



いぶし瓦炭素膜界面の Fe 元素の及ぼす影響について

村井 崇章、加藤 裕和、村瀬 晴紀、福岡 修、中尾 俊章
あいち産業科学技術総合センター

キーワード：いぶし瓦，炭素膜，界面，Fe

1. 背景と研究目的

西三河地区において生産される三州瓦のうち、いぶし瓦は、一部の製品について経年または窯出し直後に色味が変化するという技術的課題がある。平成30年度、三河窯業試験場にて企業から提供を受けた色味変化が起きたサンプルを XPS、XRD を用いて調査した結果、炭素膜の破壊・剥離が確認された。また、炭素膜界面では安定な Fe_3O_4 ができていると言われてきたが、いぶし瓦に含まれるこの2%程度の Fe 成分は結晶性が低いため XRD では検出されておらず、詳細な化学状態をこれまで調査できていない。炭素膜の強化のために焼化条件を還元がより強い方向にすると、錆などの問題が発生する可能性があるため Fe の化学状態を評価する方法が必要である。本研究ではいぶし瓦の Fe の状態をシンクロトロン光により分析評価することでいぶし瓦製造の焼化条件の最適化への指標を得ることを目指す。

2. 実験内容

いぶし瓦を模擬した試料について Fe K-edge の XAFS 測定を行い、炭素膜表面の化学状態を評価した。正常ないぶし瓦の断面を削りだし、乳鉢で粉碎した粉末を窒化ホウ素と適切な濃度になるよう混合し、ペレットを作成した。また、比較試料として、カンラン岩を同様にペレット化した試料を用意した。測定は、試料前後の X 線強度をイオンチャンバーで計測する透過法により測定を行った。

3. 結果および考察

今回の実験では、正常ないぶし瓦をペレット化し、透

過法による EXAFS 測定を行った。図1にいぶし瓦の XAENS 領域の結果を、図2に EXAFS スペクトルから、振動成分を抽出し、フーリエ変換した動径構造関数を示す。

いぶし瓦の Fe 化合物は、Fe の標準試料と比較した結果、2 価の化合物の立ち上がりに近いことが分かったが、今回用意した FeO 、 Fe_2SiO_4 (カンラン岩)の2価の Fe の標準試料とは、いずれも完全に一致はしていなかった。また、この Fe 化合物の動径構造関数の結果から、 FeO との結合距離とはあまり一致しておらず、 Fe_2SiO_4 と比較的近い傾向があることを確認した。

これらの結果から、いぶし瓦中の Fe は、2 価の Fe 化合物と考えられるが、単純な酸化鉄(FeO)の状態では存在しておらず、配位環境はシリカなどの元素を含んだ Fe 化合物の構造に近いものと推定される。今後これらの結果を含めた様々な分析を併用することで、変色におけるメカニズムの解明を進めていく。

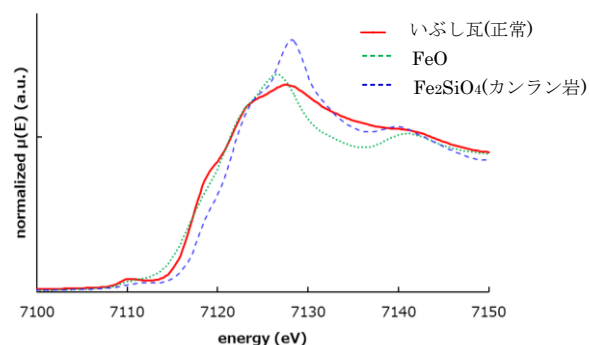


図1 いぶし瓦の XAFS 測定結果

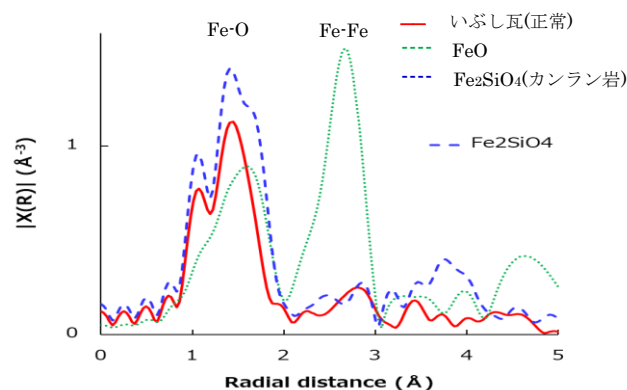


図2 いぶし瓦の動径構造関数