接合したシリカガラス間の水の拡散 Diffusion of Water in Vitreous Silica Through the Binding Interface 福井大院エ¹ ⁰葛生 伸¹

Univ. of Fukui¹, [°]Nobu Kuzuu

E-mail: kuzuu@u-fukui.ac.jp

【はじめに】シリカガラスは、高温での熱処理や酸水素火炎加 工に伴い、表面から水酸基が出入する.この現象は、シリカガ ラス内部での水酸基(水)の拡散と表面での水蒸気分圧に関係 していることが知られている.シリカガラス中では、OH 基が

 $\equiv Si - 0 - Si \equiv + H_2 0 \rightleftharpoons \equiv Si - 0H HO - Si \equiv (1)$

に従って拡散する場合, OH 基の拡散係数は OH 基の濃度に比例することが理論的に示されていた.しかし, 明確に OH 濃度 に比例するデータは得られていなかった.我々は, OH 濃度の 異なるシリカガラスの表面を鏡面に研磨して接合したものを 熱処理することによる OH 濃度分布変化をもとに, OH 基の拡 散係数を求め, 拡散係数が OH 濃度に比例する結果を得た[N. Kuzuu et. al: Jpn, J. Appl. Phys. 56, 111303 (2017)]. これらの結果 を中心にシリカガラス中の OH 基の拡散に関する筆者らの研 究を紹介する.

【実験方法および結果】OH 基を 1200 wt.ppm 含む合成シリカ ガラス(ES) と OH の濃度の少ないシリカガラス(ED-A: [OH] ≈ 100 wt. ppm, ED-B: 無水 EDC 含有, ED-C: 無水 Cl 含有)を接 合したものを熱処理したものの OH 基濃度分布赤外顕微鏡付赤外 分光光度計で測定し, ボルツマン-俣野の方法[C. Matano, Japanese Journal of Physics, 8, 109 (1933)]で解析した.

Figure 1(a)に示すように拡散係数D(c)は OH 濃度 c に比例した. OH 濃度 分布の縦軸を濃度の最大値で,横軸を $x/\sqrt{D_0(c)t_0 + D(c)t}$ で規格化 ($D_0(c)t_0$: 接合の効果を表す量) すると Fig.1(b)のように,同一サンプルでは全て同一曲線に乗るとともに,拡散係数が OH 濃度に比例する場合の拡散方程式の解(白線)とも一致した.濃度に対する比例係数をアレニウスプロットしたものを Fig. 1(c)に示す. ES と ED-A に対して実験式

$$D(c_{\rm OH}) = A \exp\left(-\frac{B}{k_{\rm B}T}\right) c_{\rm OH},\tag{2}$$

を得た[1](ここで, $A = 4.9 \pm 1.0 \times 10^{-14} \text{ m}^2/\text{s} \cdot \text{wt ppm}$, $B/k_B = 8.1 \pm 0.3 \times 10^3 \text{ K}$, k_B :ボルツマン定数, T: 絶対温度). このパラメ タを用いた理論解を Behrens[H. Behrens, Chem. Geol. **272**, 40 (2010)]の論文に例示された OH 濃度分布にフィッティングし たところ, Fig. 5 のように測定上の誤差がある極表面付近を除



Fig. 1 (a) An example of the OHconc. dependence of the diffusion coefficients of OH groups (ES/ED-A). (b) Normalized OH-conc. distribution of various kinds of binding samples. (c) Arrhenius plot



Fig. 2 Theoretical curves fitting to the OH-conc. distribution measured by Behrens [5].

いてよく合った[1]. これは,解析にあたってOH濃度分布を不適切な関数でフィッティングしたためである.

【謝辞】本研究にあたりサンプル提供,接合などご援助いただいた東ソー・エスジーエム(株), 東ソー・クォーツ(株)の方々に感謝申し上げます.