

### 1. 試料の形態について

本研究でガラスと中間膜の界面に形成される水クラスターを解析するために、ガラス(1mm)、中間膜(0.8mm)、石英基板(10mm)をラミネートした試料を準備した (Fig.1)。ラミネート後に過剰量の軽水と重水に1週間浸漬し、中間膜に軽水と重水をそれぞれ導入した。

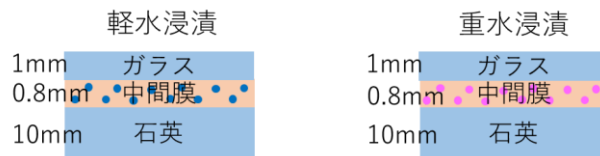


Fig.1 試料形態

### 2. 散乱プロファイルのシミュレーションについて

中性子反射率測定に先立って、事前に反射率プロファイルのシミュレーションを実施した。シミュレーションには motofit を用いて、散乱長密度 (SLD) は石英 2.07、中間膜 0.526、重水 3.47 を用いた。中性子は石英の中を通して中間膜にすれすれ角入射することを想定する。ガラスを模した石英/中間膜界面に重水の偏析による薄膜が形成されたとして、その膜厚ごとにプロファイルシミュレーションの結果を Fig.2 に示す。

Fig.2b は重水と中間膜の間の界面ラフネスを 1nm と想定したときのシミュレーション結果で、重水層の厚みが 2nm 以上であれば十分に重水層に由来するフリンジが観測されることがわかった。一方で、界面ラフネスを 7nm と設定した場合には重水層は 10nm 以上存在しないとフリンジの観測は困難であることがわかった。したがって、界面ラフネス以上の重水層厚みが存在する場合にフリンジが観測され、解析が可能となると考えられる。一方で、このジオメトリでの入射では全反射領域は観測されないことがわかった。

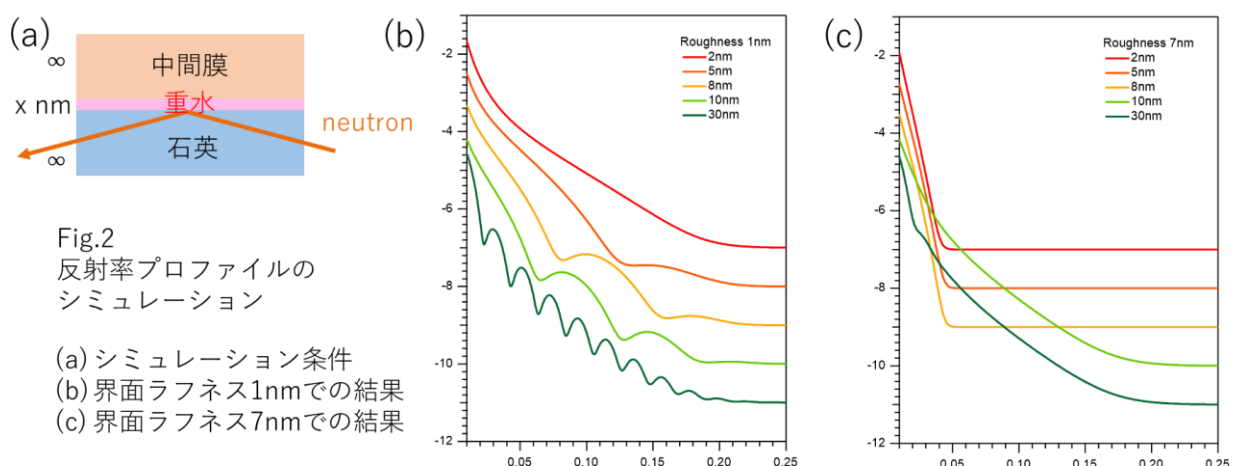


Fig.2  
 反射率プロファイルのシミュレーション

- (a) シミュレーション条件
- (b) 界面ラフネス1nmでの結果
- (c) 界面ラフネス7nmでの結果

### 3. 測定結果

中性子の入射角を変えたときの重水浸漬した試料の反射率プロファイルを示す。低入射角のプロファイルでも想定通り全反射領域は観測されていない。しかし、そこから高 q 側にプロファイルを拡張するために測定した各入射角の反射率プロファイルはすべてが重ならないことがわかった。本来は入射角違いのプロフ

ファイルは同一の現象に対して、観測範囲を変えているだけであるため、プロファイルが取得できている領域では重なるはずである。したがって、これはビームラインや検出器側の問題であることが考えられ、担当者に改善もしくは強度の換算によるプロファイルの連結を要望した。また、今回は全反射領域が観測されていないため、縦軸を反射率に変換することができない。その代わりとして別途測定したダイレクトビームの強度でプロファイルを割ることで、反射率に変換する手法を提案し、BL 担当者にダイレクトビーム強度の算出を依頼した。

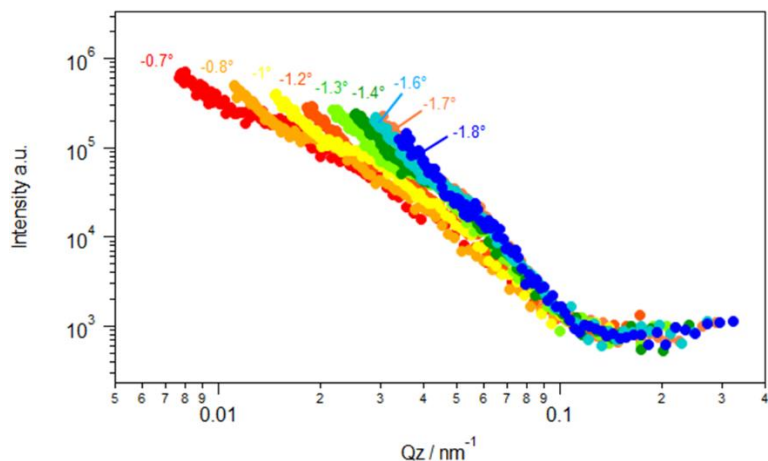


Fig.3 各入射角度での反射率プロファイル

Fig.4 に $-0.7^\circ$  入射のみの反射率プロファイルを示す。プロファイルの S/N は高くないが、プロファイルには僅かにフリンジとも解釈できる周期的な強度変化が観測された。この周期はどの周期であってもおよそ  $\Delta q = 0.008 \text{ \AA}^{-1}$  程度であり、そこから換算すると 70-80nm 程度の層が存在することを示唆する。これが本研究の狙いの重水の偏析に由来するものであるかは上記の装置由来の問題を解決した後に再検証する必要があると考えている。

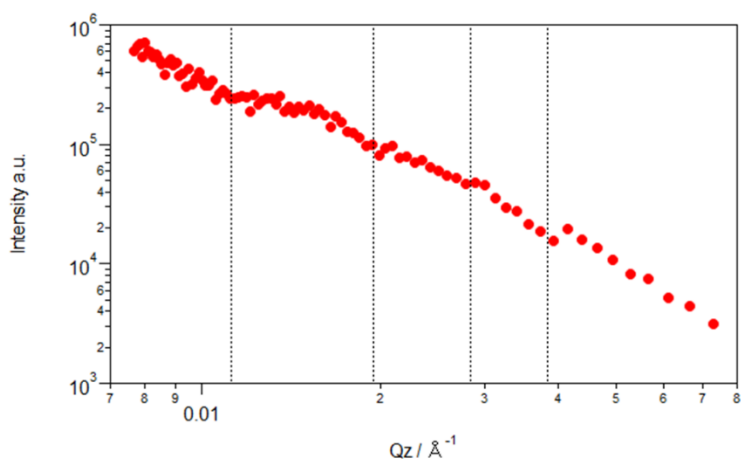


Fig.4  $-0.7^\circ$  入射の反射率プロファイル

以下、余白。