 MLF Experimental Report	提出日 Date of Report 2015/2/10
課題番号 Project No. 2014AM0007 実験課題名 Title of experiment 逆浸透ポリアミド膜における水分子の分布状態 実験責任者名 Name of principal investigator 大川 敏 所属 Affiliation 東レリサーチセンター	装置責任者 Name of responsible person 石垣 徹 装置名 Name of Instrument/(BL No.) iMATERIA/BL20 実施日 Date of Experiment 2014/12/1-12/2

試料、実験方法、利用の結果得られた主なデータ、考察、結論等を、記述して下さい。(適宜、図表添付のこと)
 Please report your samples, experimental method and results, discussion and conclusions. Please add figures and tables for better explanation.

1. 試料 Name of sample(s) and chemical formula, or compositions including physical form.
ポリアミド/軽水、ポリアミド/重水

2. 実験方法及び結果 (実験がうまくいかなかった場合、その理由を記述してください。) Experimental method and results. If you failed to conduct experiment as planned, please describe reasons.
<p>ポリアミド試料をグローブボックス内で軽水(H₂O)、あるいは重水(D₂O)の雰囲気下で調湿し、目的の含水率(n=3,6, 11.5)に調製したものをV製円筒セルにInシールで封じた。各水準の試料について、4時間積算して全散乱測定を行った。</p> <p>得られた Time-of-Flight データから構造因子 S(Q)を導出した(図 1)。いずれの水準についても概ね良好な S(Q)を得ることができたと考えられるが、H₂O 試料については H 組成が高いため、D₂O 試料に比べて統計精度が低い結果であった。図 1 の S(Q)をフーリエ変換し対分布関数 g(r)を求めた(図 2)。さらに g(r)を逆フーリエ変換して S(Q)再計算した(図 3)。なお、2014AM0006 課題で実施した M₂O 試料の結果も掲載してある。</p> <p>試料密度(充填率)の値が決定できないため、吸収や多重散乱、非干渉性散乱およびリコイル補正の確度が不明であり、ピーク強度に関する詳細な考察は難しいが、横軸については十分精度良く S(Q)を解析できたと考えている。また、ピークの有無についても判断は可能であると考えている。</p> <p>図 3 の S(Q)で 4.6Å⁻¹にピークが観測されていることが確認できた。このピークは r=約 1.8Å、すなわち水素結合相関に対応していると考えられる。このピークの観測は中性子散乱による重要な成果である。</p>

2. 実験方法及び結果(つづき) Experimental method and results (continued)

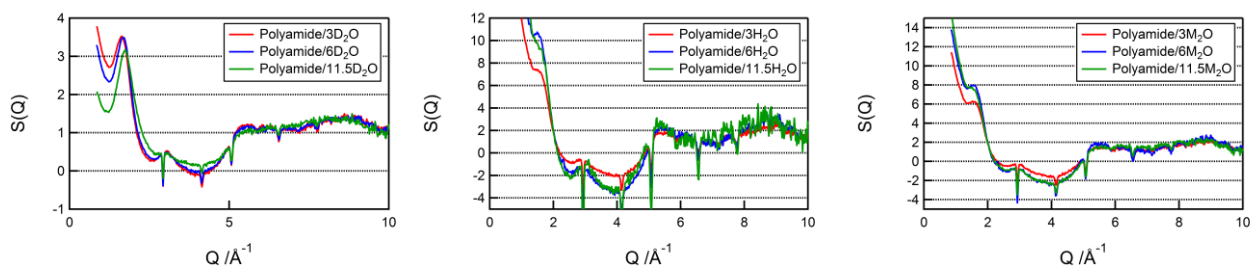


図1 各 H/D コントラストでの構造因子 $S(Q)$

Left: Polyamide- nD_2O , Center: Polyamide- nH_2O , Left: Polyamide- nM_2O

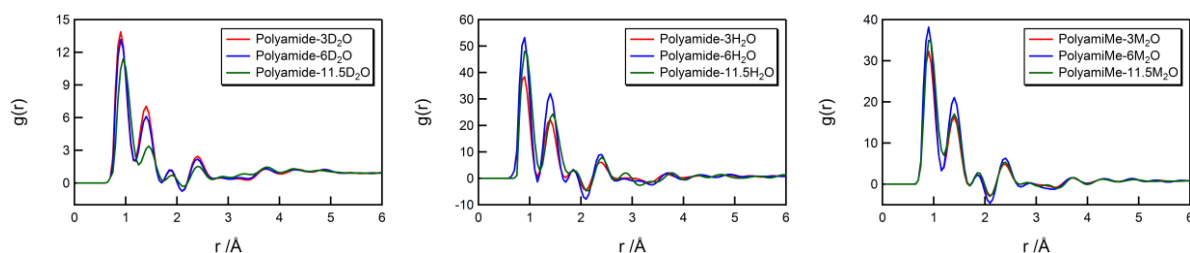


図2 各 H/D コントラストでの対分布関数 $g(r)$

Left: Polyamide- nD_2O , Center: Polyamide- nH_2O , Left: Polyamide- nM_2O

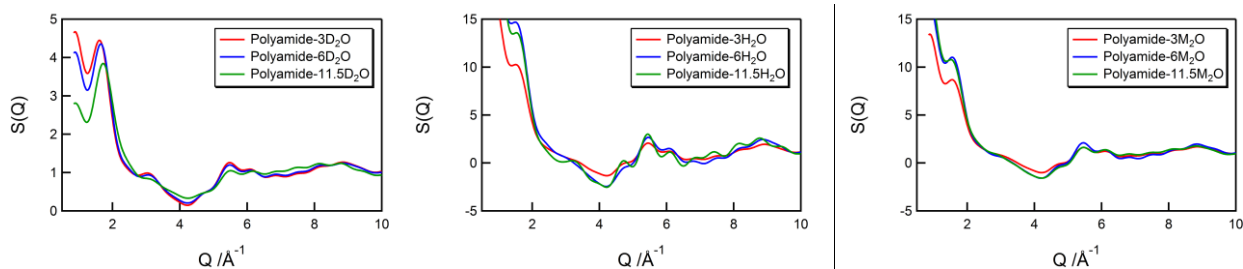


図3 各 H/D コントラストでの $S(Q)$ (逆フーリエ変換後)

Left: Polyamide- nD_2O , Center: Polyamide- nH_2O , Left: Polyamide- nM_2O

H/D コントラストや含水率が異なる $S(Q)$ について、ピーク形状が変化していることが確認できており、これらを各原子相関のコントラストを考慮しながら解析することで、ポリアミドネットワークにおける水和構造を議論することができるかと期待している。ポリアミド鎖のみを観測している M_2O 試料で含水率間でほとんど差がなかったにも関わらず、 D_2O および H_2O 試料では含水率間で有意な差を確認できており、特に $Q \approx 4.3 \text{ \AA}^{-1}$ のピークの差は水和構造が含水率により変化していることを示唆しており、興味深い結果である。

縦軸の精度向上のため、試料密度(充填率)を決定する必要があるが、これは現実的に困難である。代替策として試料前後での中性子数をモニターすることで透過率を直接的に測定できる機構が整備されることを希望する。また、Hの多い試料では多重散乱が問題になるため、試料組成に合せて適切なVセルのサイズを選択したい。可能であれば、今回測定した H_2O 試料について $1 \sim 2 \text{ mm}$ φのVセルを用いて検証実験を行いたい。