

# X線散乱装置及び液体構造決定のための解析手法の開発並びにそれらの数種の純液体と液体混合物への応用

片山 真祥

液体の構造は溶液中で起こる反応を微視的に議論する際には、欠かすことのできない情報である。分子性液体の構造解析に対しては様々な実験手法が適用されてきたが、中でもX線散乱法は分子間の相互作用を直接的に得ることのできる非常に有効な手法である。本論文ではCCD検出器を用いた液体試料測定用の透過型X線散乱測定装置を新たに開発し、測定データに対する補正法を確立した。本装置は従来 of 反射型装置に比べ非常に短時間での測定を可能とし、得られるデータも同等あるいはそれ以上の精度を達成した。

X線散乱法により得られた実験値から液体構造を解析するにはいくつかの手法が用いられている。本論文では構造モデルの組立を必要とせず、混合系のような複雑な系にも対応できる新たな手法の構築を行った。この解析方法は、分子間の配向を取り扱うために極座標とオイラー角を分子間相互作用の構造パラメータとして導入し、これらを実験値に対する最小自乗計算により決定し、液体構造を得るものである。この方法の妥当性は広く受け入れられているアセトニトリルの液体構造が極めてよく再現されることにより確認された。また、この解析方法を数種の極性液体、無極性液体に対して適用し、非常に有効な構造解析手法であることを確認した。

混合液体の液体構造は異なる種類の分子間相互作用が存在するため純液体に比べて複雑である。本論文ではテトラヒドロフランあるいはアセトンと水の二成分混合液体について混合比を変化させて測定を行い、水-有機液体分子間の相互作用に関する構造パラメータとともに水-水、有機液体分子-有機液体分子および水-有機液体分子間相互作用の濃度をパラメータとして取り入れ、得られた複数の実験値に対して最小自乗計算を用いることで、混合液体中での分子間相互作用について解析を行った。その結果、混合により生じた異種分子間の相互作用についての構造パラメータおよび各モル分率における分子間相互作用の濃度を得ることに成功した。特に、得られた水-水間相互作用の濃度から混合液体中における水分子間の水素結合数を初めて実験的に決定することに成功した。