

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 5 年 6 月 10 日現在

機関番号：37111

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2022

課題番号：19K05551

研究課題名(和文) 空気中に浮揚させた液滴のin situ構造解析法の開発とエアロゾル反応への展開

研究課題名(英文) Development of in situ structure analysis of single droplet levitated in air and application to aerosol reactions

研究代表者

山口 敏男 (Yamaguchi, Toshio)

福岡大学・公私立大学の部局等・研究特任教授

研究者番号：70158111

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：超音波浮揚装置により空気中に浮揚させた直径1mmの液滴のラマン散乱とシンクロトロンX線散乱装置を開発した。硝酸マグネシウム、硫酸マグネシウム、酢酸水溶液各液滴のラマン散乱測定から、液滴の濃度はバルクの数倍濃縮された過飽和状態であることを明らかにした。液滴からの結晶化過程の観測から析出した結晶を同定した。液滴のX線散乱データをEPSR計算により解析して、イオン溶媒和・会合、溶媒水の3次元構造を決定した。243Kまで測定できる低温チャンバーを制作して硫酸マグネシウム水溶液およびエチレングリコール-水混合溶液各液滴の過冷却状態におけるイオン溶媒和・会合・溶媒水の3次元構造を明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では超音波浮揚法により空気中に浮揚させた1mmサイズの単一液滴のラマン散乱とX線散乱法を開発した。マイクロL単位の微小体積を対象とするので希少タンパク質や高価な溶液構造解析に適用できる。セルフリーのために溶液の過飽和・過冷却現象や、融解・結晶化現象の構造を決定できる。液滴にオゾンガスなどを反応させることにより、雲中のエアロゾル反応を構造化学に研究できる。本手法は、液滴のミクロ構造と物性を明らかにすることにより、分析化学、物理化学、地球化学、生物化学、大気化学における種々の化学プロセスを3次元構造から解明できる。地球温暖化などのエアロゾル由来の気候変動を研究する基礎的指針を提供する。

研究成果の概要(英文)：Raman scattering and synchrotron X-ray scattering methods of liquid droplets with diameters of 600micron to 1mm levitated in the air ultrasonically have been developed. From Raman scattering measurements of droplets of magnesium nitrate, magnesium sulfate, and acetic acid aqueous solutions, it was clarified that the concentrations of the droplets were in a supersaturated state several times higher than that of the bulk. The precipitated crystals were identified by observation of the crystallization process from droplets. The droplet X-ray scattering data were analyzed by EPSR calculations to determine the three-dimensional structure of the ionic solvation/association, and solvent water. A low-temperature chamber capable of measuring up to 243 K was constructed, and the three-dimensional structure of ionic solvation, association, and solvent water in the supercooled state of each droplet of magnesium sulfate aqueous solution and ethylene glycol-water mixed solution was clarified.

研究分野：溶液化学

キーワード：エアロゾル液滴 溶液構造 ラマン散乱 イオン溶媒和 超音波浮揚 過飽和 イオン会合 X線散乱

## 1. 研究開始当初の背景

地球の気候変動を評価するためには、雲を構成しているエアロゾルの特性やその中で進行する化学プロセスを明らかにすることが不可欠である[1]。したがって、エアロゾル特性や化学プロセスを反映しているエアロゾル液滴のマイクロ構造を解析することは極めて重要である。近年、質量分析装置によるエアロゾル粒子の化学組成分析[2]や電子顕微鏡によるエアロゾル粒子の氷晶形成が観測されているが[3]、マイクロ構造は解明されていない。歴史的には硫酸アンモニウムや塩化ナトリウムに代表される無機物が雲凝結核と考えられてきた。近年、地球上における人間活動の活発化に伴い、水に溶けにくい有機カルボン酸などの有機エアロゾルが大気中でオゾン(O<sub>3</sub>)やOHラジカルにより酸化されて水に溶けやすい物質に変わり雲凝結核になると考えられているが、構造化学的には未解明である。近年、レーザー捕捉や超音波浮揚により空中に非接触で静止させた数ミクロンからミリメートルサイズの液滴が、自然界における雲粒(5~20ミクロン)のモデル系として注目されている。20ミクロンの硫酸アンモニウム水溶液の液滴は233Kまで過冷却液体であることが報告された[4]。近年、強力なX線源であるシンクロトロン光施設が国内外で建設され、マイクロメートルサイズの液滴のX線散乱実験が可能となった。さらに、実験で得られた構造因子を用いて二体ポテンシャルを改良したEmpirical Potential Structure Refinement (EPSR)計算により溶液の3次元構造を可視化することが可能となった[5]。国内外でレーザー捕捉による液滴の捕捉、形状観察、液滴表面への有機物吸着、ラマン分光による相分離・相転移の研究は行われている。国外では、超音波浮揚によるミリメートルサイズの液滴のシンクロトロンX線散乱実験が報告されている。2017年に超音波浮揚による60~100ミクロンサイズのアレイン酸水溶液のラマン散乱とシンクロトロンX線散乱の研究が初めて報告されたが、X線散乱は小角データに限定されており、広角X線散乱による液滴のマイクロ構造の決定には至っていない。10ミクロンサイズの水滴を連続的に真空中に生成させたX線自由電子レーザーの研究報告はあるが、小角X線散乱のみの測定であり、水滴のマイクロ構造は決定されていない。

## 2. 研究の目的

(1) 超音波浮揚装置と連続液滴生成装置を組み合わせ、空気中に非接触で浮揚させた600ミクロンから1mmサイズの液滴のラマン散乱とシンクロトロンX線散乱装置を開発する。また、過冷却状態の液滴を観測できる低温試料チャンバーを制作する。

(2) 測定する試料は、水、1M(=mol/L)硫酸アンモニウム、1M塩化ナトリウム、1M酢酸各水溶液、およびエチレングリコール-水(1:1)二成分溶液とする。測定温度は室温から243Kまでとする。

(3) ラマンスペクトル測定から液滴中の化学種の組成と濃度を定量する。

(4) X線散乱データを基に二体ポテンシャルを改良したEPSR計算を行い、液滴のマイクロ構造情報(原子間距離、配位数)を決定し3次元構造を可視化する。液滴のマイクロ構造を室温から243Kまで決定することにより、過冷却液滴の構造を決定する、

(5) 液滴からの結晶化過程のin situ X線散乱測定を行い、生成結晶を同定する。

## 3. 研究の方法

連続液滴生成装置により吐出させた単一液滴を超音波浮揚装置により空気中に浮揚させる。浮揚液滴のラマン散乱(波長532nm)により、液滴の濃度と化学種(イオン対)を決定する。シンクロトロン

放射光施設SPring-8のビームラインBL08W(ウイグラーライン)に超音波浮揚装置と連続液滴生成装置を設置してX線散乱測定を行う。浮揚液滴のサイズは望遠鏡により観察する。得られたX線構造因子をEPSR計算により解析して、液滴中の3次元構造(イオン溶媒和、イオン会合、溶媒水)を決定する。また、低温試料チャンバーを制作して、過冷却温度で液滴のX線散乱測定を行い、低温構造を決定する。開発した装置の概念図を図1に示す。

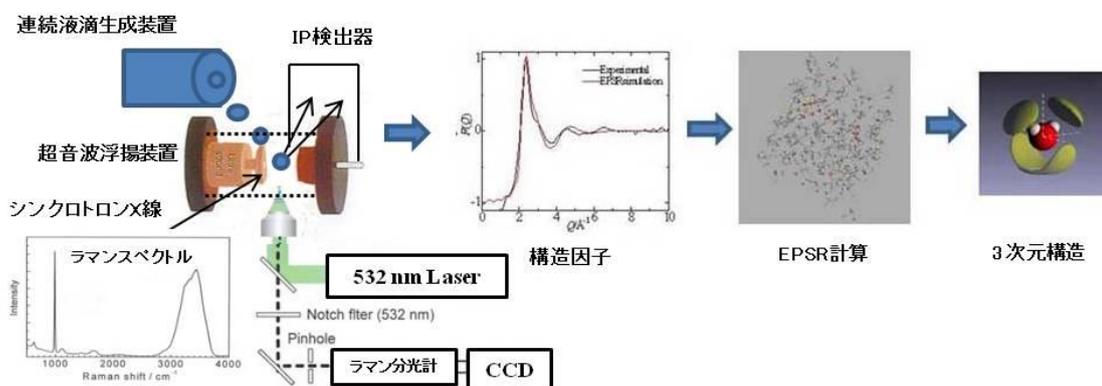


図1 超音波浮揚により空气中に浮揚させた単一液滴のラマン散乱・X線散乱装置および解析法の概念図

#### 4. 研究成果

##### (1) 超音波浮揚装置

超音波浮揚装置(本多電子株式会社)は、共振周波数60 kHzの超音波振動子(トランスデューサ)と凹面反射鏡で構成されている(図2と3)。トランスデューサと反射器の間の空間で超音波の半波長の整数倍である節点で液滴が捕捉される。直径1~2 mmの単一液滴はシリンジを使って手動で注入される。直径数十から数百 $\mu\text{m}$ の液滴はノズル直径15 $\mu\text{m}$ のインクジェット液滴生成装置(SIJ Technology)を使用して生成した。液滴を内径48 mm、高さ60 mmのアルミニウム製試料チャンバー内に保持し、内部に湿った綿を入れ、チャンバー内をほぼ飽和相対湿度に保った。入射X線、散乱X線、ラマン散乱用の3つの窓と顕微鏡窓を開けた。窓には厚さ25 $\mu\text{m}$ のカプトンフィルムを使用した。試料チャンバー内の相対湿度(RH)と温度は、温度および湿度トランスデューサー(EE23、E+E Elektronik)を使用して測定した。相対湿度は80~90%、温度は298 Kであった。

##### (2) 空气中に浮揚させた単一液滴のラマン散乱装置の開発

図2は、空气中の単一液滴のラマンスペクトル測定装置の概略図を示す。超音波浮揚装置は、倒立光学顕微鏡(Olympus、IX73)のステージ上に水平に設置された。CW-Nd:YVO4(SDL-532-300T、Shanghai Dream Lasers)のレーザー光源で生成された波長532 nmのレーザー光を対物レンズ(MTI SLWD EPI Plan 50XA、50X、N.A.=0.45、ニコン)で集光させた。180°後方散乱光はラマン分光計(SOL Instrument、MS3504i)で収集され、散乱強度はCCD検出器(DU420A-BVF、ANDOR)で測定された。ラマンスペク

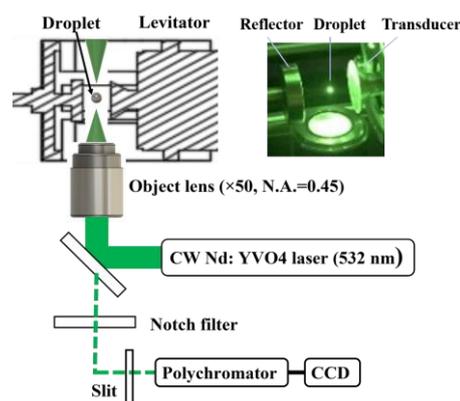


図2 空气中に浮揚させた単一液滴のラマン散乱測定装置の概念図

のレーザー光源で生成された波長532 nmのレーザー光を対物レンズ(MTI SLWD EPI Plan 50XA、50X、N.A.=0.45、ニコン)で集光させた。180°後方散乱光はラマン分光計(SOL Instrument、MS3504i)で収集され、散乱強度はCCD検出器(DU420A-BVF、ANDOR)で測定された。ラマンスペク

トルは 1 分間の積分時間で測定された。ラマンシフトの校正はレイリー線を使用した。ラマンスペクトルは、波数の広い範囲と中程度の範囲でそれぞれ測定するために、2 つの異なる回折格子 (300 本/mm と 1800 本/mm) を用いた。

### (3) 空気中に浮揚させた単一液滴のX線散乱装置の開発

超音波浮揚装置はSPring-8のウィグラービームラインBL08Wに設置された。図3は、単一液滴のX線散乱装置の概略図を示す。超音波浮遊装置を x-y-z ステージ上に置き、高さ 3 mm、幅 1 mm の X 線ビーム内で液滴の位置を調整した。Si(440) 結晶モノクロメーターにより単色化したX線 (波長  $\lambda=0.108 \text{ \AA}$ ) を使用した。散乱強度は、二次元 X 線検出器 (XRD1621 CN3、Varex Imaging、CCD 2048 × 2048 ピクセル) で収集された。CCD カメラ付き望遠鏡を用いてPCモニター上で液滴の形状とサイズを測定した。液滴の位置調整は以下のように行った。まず、レーザービームを使用して液滴のz位置を調整した。次に、浮遊装置をx方向 (X 線ビームに垂直) に走査してビームストッパー内検出器の透過X線強度の最小値を見つけることによって、液滴のx位置を決定した。試料から検出器までの距離は、チャンバー内に浮遊させたイオン液体液滴中に分散させたCeO<sub>2</sub>粉末のBragg ピークを文献値と比較することにより算出し、587.73 mm であった。空気散乱を最小限に抑えるために、サンプルチャンバーと検出器の間に真空チャンバーを設置した。

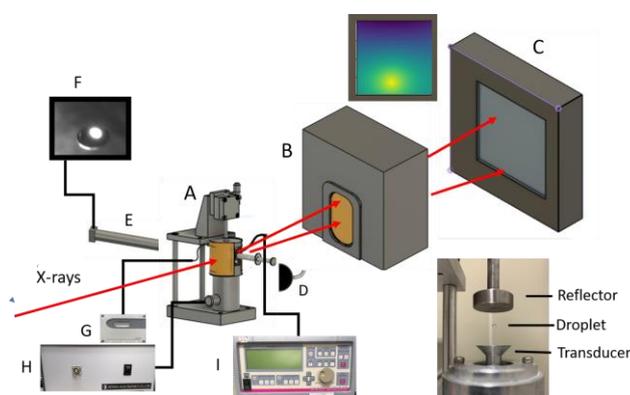


図3 空気中に浮揚させた液滴のX線散乱測定装置の概念図。A: 超音波浮揚装置、B:真空チャンバー、C:CCD検出器、D:LEDライト、E:望遠鏡+CCDカメラ、F:PCモニター、G:湿度計+温度計、H:超音波発生装置、G:液滴生成装置

### (4) 空気中に浮揚させた単一液滴の過冷却構造解析用低温チャンバーの開発

液滴を冷却させてラマン散乱とX線散乱測定できる試料チャンバーを制作した (理学部工場で作成)。チャンバーの冷却には低温バスサーキュレーター (Thermo scientific、G50、SPring-8所蔵、冷媒はメタノール) を用いた。最低到達温度は243 Kであった。

### (5) 空気中に浮揚させた過飽和硝酸マグネシウム水溶液液滴の構造と結晶化[6]

0.9~3.2 mol/Lの標準Mg(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>水溶液のラマン散乱測定を行い、硝酸イオンの N-O および水分子の O-H 伸縮振動ラマンバンドの面積比を溶質濃度に対してプロットして検量線を求めた。0.9 mol/L溶液の液滴 (1mm) のラマン散乱測定した結果、液滴濃度は3.50 mol/Lであり過飽和 Mg(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> 液滴の生成を確認した。この液滴の X 線散乱データを用いてEPSR計算を行い、Mg<sup>2+</sup>には4個の水分子と2個の硝酸イオンが単座で結合した八面体構造をとり、Mg<sup>2+</sup>-O距離は2.08-2.10 Åである。NO<sub>3</sub><sup>-</sup>の周りには平均13個の水分子が取り囲み、N-O距離は3.72 Åである。溶媒水分子の平均配位数は7.4であり、バルク水に比べて四面体構造が大きく歪んでいる。3.2 mol/L飽和溶液の液滴から結晶化を観測した結果、液滴表面でMg(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>・2H<sub>2</sub>Oが生成した後にMg(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>・6H<sub>2</sub>O結晶が生成することが明らかになった。

### (6) 空気中に浮揚させた硫酸マグネシウム水溶液液滴の過飽和と結晶化[7]

0.50~2.03 mol/Lの標準MgSO<sub>4</sub>水溶液のラマン散乱測定を行い、硫酸イオンの S-O および水分子の O-H 伸縮振動ラマンバンドの面積比を溶質濃度に対してプロットして検量線を求めた。1.0 mol/L溶液の液滴 (1mm) のラマン散乱測定し検量線を用いて液滴濃度は4.94 mol/Lであり過飽和MgSO<sub>4</sub>液滴の生成

を確認した。この液滴の X 線散乱データを用いてEPSR計算を行い、 $Mg^{2+}$ には4個の水分子と2個の硫酸イオンが単座で結合した八面体構造をとり、 $Mg^{2+}$ -O距離は2.00 Åである。 $SO_4^{2-}$ の周りには平均14個の水分子が取り囲み、S-O距離は3.81 Åである。溶媒水分子の平均配位数は6.8であり、バルク水に比べて四面体構造が大きく歪んでいる。2.0 mol/L飽和溶液の液滴から結晶化を観測した結果、 $MgSO_4 \cdot 1.5H_2O$ が生成した後に $MgSO_4 \cdot 6H_2O$ 結晶が生成することが明らかになった。

#### (7) 空气中に浮揚させた酢酸水溶液滴の構造

0.989~5.89 mol/Lの各酢酸標準溶液を調製した。標準溶液のラマンスペクトルを測定して、酢酸のC=O伸縮振動 $1735\text{ mm}^{-1}$ と水分子のO-H変角振動 $1664\text{ mm}^{-1}$ の面積比vs溶質濃度の検量線を作成した。

0.989 mol/L標準試料液滴のラマンスペクトルの解析から液滴濃度は0.814 mol/Lであった。液滴のX線散乱測定を行い、散乱データをEPSR計算で解析した。酢酸の濃度の増加につれて、酢酸分子同士の配位数は2.2 (0.81 mol/L) から6.9 (5.39 mol/L) に増加した。バルク試料では酢酸の水酸基の酸素原子とカルボニル基の酸素原子の結合が2.6 Åに観測されるが、液滴では観測されない。この結果は、酢酸のメチル基が疎水性のために液滴の気液界面付近に集まり水素結合が形成されにくいためと考察した。

#### (8) 空气中に浮揚させた硫酸マグネシウム水溶液液滴の過冷却状態の構造

0.3 mmキャピラリー中に封じ込めた1 mol/L 硫酸マグネシウムバルク試料について、298~253 KのX線散乱実験をSPring-8 BL08Wで行った。溶媒水では水素結合に関与していない貫入水分子が減少し、水素結合性四面体ネットワーク構造が増加した。温度の低下とともに直接イオン対の減少が見られ、水和 $Mg^{2+}$ が増加した。低温液滴のラマン散乱実験より温度低下とともに液滴の濃度が減少することが分かった。液滴周囲の温度が低下し、飽和水蒸気量が小さくなり液滴の蒸発が抑制されたためであると考えられる。液滴の低温X線散乱実験より277 Kに比べて265 Kでは直接イオン対が減少した。また溶媒水の構造は265 Kの方が中心水分子の酸素原子側に第二配位圏の水分子が集まり四面体構造の形成が進むことがわかった。

#### (9) エチレングリコール-水 (1 : 1) 二成分溶液液滴の過冷却状態の構造

エチレングリコール-水 (1 : 1) 二成分液滴のX線散乱を293~238 Kまで測定した。温度低下とともに四面体状の水素結合ネットワークが徐々に成長することが観測された。

#### 文献

[1] IPCC: Climate Change; Fourth Assessment Report; Climate Change, Cambridge University Press, USA (2007)

[2] T. Sakamoto, et al. Appl. Surf. Sci. **255**, 1617 (2008)

[3] Z. Shi, et al. Atmos. Environ. **42**, 822 (2008)

[4] S. Ishizaka, et al. Phys. Chem. Chem. Phys. **12**, 9852 (2010)

[5] 山口敏男ら, 分析化学, **60**, 115 (2011); T. Yamaguchi, et al. J. Mol. Liq. **176**, 44 (2012).

[6] T. Yamaguchi, N. Hata, S. Matsuo, K. Yoshida, S. Ishizaka, K. Ohara, Anal. Sci. **39**, 977 (2023).

[7] T. Yamaguchi, S. Matsuo, K. Yoshida, S. Ishizaka, K. Ohara, J. Solution Chem. In press.

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計34件（うち査読付論文 34件 / うち国際共著 14件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 T. Yamaguchi, N. Fukuyama, K. Yoshida, Y. Katayama	4. 巻 12
2. 論文標題 Ion Solvation and Water Structure in an Aqueous Sodium Chloride Solution in the Gigapascal Pressure Range	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 J. Phys. Chem. Lett.	6. 最初と最後の頁 250-256
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcllett.0c03147	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 K. Yoshida, T. Yamaguchi, D. T. Bowron, J. L. Finney	4. 巻 23
2. 論文標題 The structure of aqueous solutions of hexafluoro-iso-propanol studied by neutron diffraction with hydrogen/deuterium isotope substitution and empirical potential structure refinement modeling	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Chemistry Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 13561-13573
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/d1cp00950h	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Shinya Hosokawa, Takashi Kamiyama, Koji Yoshida, Toshio Yamaguchi, Satoshi Tsutsui, Alfred Q.R. Baron	4. 巻 332
2. 論文標題 Collective dynamics of liquid acetone investigated by inelastic X-ray scattering	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Molecular Liquids	6. 最初と最後の頁 115825
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.molliq.2021.115825	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Toshio YAMAGUCHI, Nami FUKUYAMA, Koji YOSHIDA, Yoshinori KATAYAMA	4. 巻 38
2. 論文標題 Ion Solvation and Association and Water Structure in an Aqueous Cerium(III) Chloride Solution in the Gigapascal Pressure Range	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Analytical Sciences	6. 最初と最後の頁 409-417
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2116/analsci.21P297	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 W.Q. Zhang, T. Yamaguchi, C.H. Fang, K. Yoshida, Y.Q. Zhou, F.Y. Zhu, S. Machida, T. Hattori, W. Li	4. 巻 348
2. 論文標題 Structure of an aqueous RbCl solution in the gigapascal pressure range by neutron diffraction combined with empirical potential structure refinement modeling	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Molecular Liquids	6. 最初と最後の頁 118080-118080
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.molliq.2021.118080	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Jun Shirai, Koji Yoshida, Hiroki Koreeda, Takehiko Kitamori, Toshio Yamaguchi, Kazuma Mawatari	4. 巻 350
2. 論文標題 Water structure in 100 nm nanochannels revealed by nano X-ray diffractometry and Raman spectroscopy	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Molecular Liquids	6. 最初と最後の頁 118567-118567
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.molliq.2022.118567	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Toshio Yamaguchi, Sota Higa, Koji Yoshida, Kazushi Sumitani, Tsutomu Kurisaki	4. 巻 95
2. 論文標題 Structure of Aqueous Scandium(III) Nitrate Solution by Large-Angle X-ray Scattering Combined with Empirical Potential Refinement Modeling, X-ray Absorption Fine Structure, and Discrete Variational X Calculations	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Bulletin of the Chemical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 673-679
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/bcsj.20220007	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 山口敏男	4. 巻 50
2. 論文標題 高圧下の水の構造	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 福岡大学理学集報	6. 最初と最後の頁 78 ~ 91
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Zhou Yongquan, Yamaguchi Toshio, Zhang Wenqian, Ikeda Kazutaka, Yoshida Koji, Zhu Fayan, Liu Hongyan	4. 巻 22
2. 論文標題 The structural elucidation of aqueous H3B03 solutions by DFT and neutron scattering studies	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Chemistry Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 17160 ~ 17170
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/d0cp02306j	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Zhou Yongquan, Yamaguchi Toshio, Ikeda Kazutaka, Fang Chunhui, Yoshida Koji, Zhang Wenqian, Zhu Fayan, Liu Hongyan, Wang Guangguo	4. 巻 83
2. 論文標題 Structure of liquid water studied by neutron and x-ray scattering: temperature effects	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Chemical Report	6. 最初と最後の頁 434 ~ 441
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Sakamoto Ryo, Yamashita Maho, Nakamoto Kosuke, Zhou Yongquan, Yoshimoto Nobuko, Fujii Kenta, Yamaguchi Toshio, Kitajou Ayuko, Okada Shigeto	4. 巻 22
2. 論文標題 Local structure of a highly concentrated NaClO4 aqueous solution-type electrolyte for sodium ion batteries	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Chemistry Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 26452 ~ 26458
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/d0cp04376a	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Zhou Yongquan, Yamaguchi Toshio, Ikeda Kazutaka, Yoshida Koji, Otomo Toshiya, Fang Chunhui, Zhang Wenqian, Zhu Fayan	4. 巻 11
2. 論文標題 Dihydrogen Bonds in Aqueous NaBD4 Solution by Neutron and X-ray Diffraction	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 1622 ~ 1628
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcllett.9b03183	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Toshio Yamaguchi;Natsuki Hata;Shun-ichiro Matsuo;Koji Yoshida;Tsutomu Kurisaki;Shoji Ishizaka;Koji Ohara	4. 巻 39
2. 論文標題 In situ Raman and X-ray scattering of a single supersaturated aqueous Mg(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> droplet ultrasonically levitated	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Analytical Sciences	6. 最初と最後の頁 977-987
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s44211-023-00306-8	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Toshio Yamaguchi	4. 巻 2022
2. 論文標題 Structure and Dynamics of Solutions Studied by X Ray and Neutron Scattering	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Encyclopedia of Analytical Chemistry	6. 最初と最後の頁 1-26
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 K. Yoshida;Y. Sanada;T. Yamaguchi;M. Matsuura;H. Tamatsukuri;H. Uchiyama	4. 巻 366
2. 論文標題 The translational, rotational, and phonon dynamics of water in ZrO <sub>2</sub> /water nanofluid	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Molecular Liquids	6. 最初と最後の頁 120218
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.molliq.2022.120218	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Z. Jing;Y. Zhou;W. Zhang;T. Yamaguchi;K. Yoshida;G. Wang;L. Han	4. 巻 360
2. 論文標題 Structures of 18-Crown-6/Cs <sup>+</sup> Complexes in Aqueous Solutions by Wide Angle X-Ray Scattering and Density Functional Theory	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Molecular Liquids	6. 最初と最後の頁 119477
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.molliq.2022.119477	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 K. Yoshida;S. Nishimoto;T. Yamaguchi	4. 巻 353
2. 論文標題 Structural analysis of hydrazinium trifluoroacetate aqueous solution by X-ray diffraction and empirical potential structure refinement modeling in the temperature range of 25 ~ -125 °C	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Molecular Liquids	6. 最初と最後の頁 118802
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.molliq.2022.11880	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Guangguo Wang;Yongquan Zhou;Yamaguchi Toshio;Hongyan Liu;Fayan Zhu;Zhijian Wu	4. 巻 96
2. 論文標題 Structure of Aqueous CaCl <sub>2</sub> Solutions by X-ray Scattering and Density Functional Theory	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Russian Journal of Physical Chemistry A	6. 最初と最後の頁 S68-S76
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1134/s00360244221402	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 H. Liu;Y. Zhou;D. An;G. Wang;F. Zhu;T. Yamaguchi	4. 巻 126
2. 論文標題 Structure of aqueous KNO <sub>3</sub> solutions by wide-angle x-ray scattering and density functional theory	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry B	6. 最初と最後の頁 5866-5875
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.2c02247	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Y. Wang;F. Zhu;T. Yamaguchi;K. Yoshida;G. Wang;R. Liu;L. Song;Y. Zhou;H. Liu	4. 巻 356
2. 論文標題 Structure of phase change energy storage material Ca(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> ·4H <sub>2</sub> O solution	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Molecular Liquids	6. 最初と最後の頁 119010
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.molliq.2022.119010	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 吉田亨次;山口敏男	4. 巻 49
2. 論文標題 多孔性シリカおよび高分子ゲルに閉じ込められた水の熱的性質・構造・ダイナミクス	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 熱測定	6. 最初と最後の頁 95-101
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.11311/jscta.49.3_95	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Shinya Hosokawa;Takashi Kamiyama;Koji Yoshida;Toshio Yamaguchi;Satoshi Tsutsui;Alfred Q.R. Baron	4. 巻 332
2. 論文標題 Collective dynamics of liquid acetone investigated by inelastic X-ray scattering	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Molecular Liquids	6. 最初と最後の頁 115825-115825
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.molliq.2021.115825	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Fayan Zhu;Toshio Yamaguchi;Koji Yoshida;Wenqian Zhang;Hongyan Liu;Yongquan Zhou;Chunhui Fang	4. 巻 145
2. 論文標題 Ion hydration and association in aqueous potassium tetrahydroxyborate solutions	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 The Analyst	6. 最初と最後の頁 2245-2255
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c9an01662g	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 山口敏男	4. 巻 50
2. 論文標題 高圧下の水の構造	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 福岡大学理学集報	6. 最初と最後の頁 78-91
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Y. Zhou;T. Yamaguchi;K. Ikeda;C. Fang;K. Yoshida;W. Zhang;F. Zhu;H. Liu;G Wang	4. 巻 83
2. 論文標題 Structure of liquid water studied by neutron and x-ray scattering; temperature effects	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Chemical Report	6. 最初と最後の頁 434-441
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Toshio Yamaguchi;Masaaki Nishino;Koji Yoshida;Masaharu Takumi;Kiyofumi Nagata;Takanori Hattori	4. 巻 2019
2. 論文標題 Ion Hydration and Association in an Aqueous Calcium Chloride Solution in the GPa Range	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 European Journal of Inorganic Chemistry	6. 最初と最後の頁 1170-1177
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/ejic.201900016	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 K. Yoshida;H. Uchiyama;T. Yamaguchi	4. 巻 291
2. 論文標題 Structure and dynamical properties of hydrated F-actin investigated by X-ray scattering	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Molecular Liquids	6. 最初と最後の頁 111265-111265
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.molliq.2019.111265	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Koji Yoshida;Toshio Yamaguchi	4. 巻 718
2. 論文標題 Generalized Langevin analysis of inelastic X-ray scattering for copper/ethylene glycol nanofluid	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Chemical Physics Letters	6. 最初と最後の頁 74-79
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cplett.2019.01.024	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yongquan Zhou;Toshio Yamaguchi;Koji Yoshida;Chunhui Fang;Yan Fang;Fayan Zhu	4. 巻 274
2. 論文標題 Structure of alkaline aqueous NaBH <sub>4</sub> solutions by X-ray scattering and empirical potential structure refinement	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Molecular Liquids	6. 最初と最後の頁 173-182
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.molliq.2018.10.124	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 K. Ito;A. Faraone;M. Tyagi;T. Yamaguchi;S.H. Chen	4. 巻 21
2. 論文標題 Nanoscale Dynamics of Water Confined in Ordered Mesoporous Carbon	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Chemistry Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 8517-8528
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c8cp07704e	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Koji Yoshida;Toshio Yamaguchi	4. 巻 29
2. 論文標題 Structure and Dynamics of Water Investigated in a Wide Energy Range	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 hamon	6. 最初と最後の頁 86-90
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.5611/hamon.29.2_86	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Koji Yoshida;Shigeru Ishida;Toshio Yamaguchi	4. 巻 117
2. 論文標題 Hydrogen bonding and clusters in supercritical methanol-water mixture by neutron diffraction with H/D substitution combined with empirical potential structure refinement modelling	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Molecular Physics	6. 最初と最後の頁 3297-3310
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/00268976.2019.1633481	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 K. Yoshida;T. Zenin;A. Fujiyoshi;Y. Sanada;T. Yamaguchi;K. Murata;S. Tanaka;K. Hiroi;T. Takekiyo;Y. Yoshimura	4. 巻 293
2. 論文標題 The effect of alkyl ammonium ionic liquids on thermal denaturation aggregation of lactoglobulin	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Molecular Liquids	6. 最初と最後の頁 111477-111477
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.molliq.2019.111477	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 坂本 遼;中本 康介;喜多條 鮎子;村上 大樹;平井 晴香;田中 賢;周 永全;山口 敏男;岡田 重人	4. 巻 87
2. 論文標題 高電圧水系電池の確立を目指した濃厚水系電解液	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Denki Kagaku	6. 最初と最後の頁 220-226
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.5796/denkikagaku.19-fe0022	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計26件 (うち招待講演 10件 / うち国際学会 5件)

1. 発表者名 伊藤華苗, Antonio Faraone, Madhusudan Tyagi, 山口敏男, Sow-Hsin Chen
2. 発表標題 メソポーラスカーボンに閉じ込められた水のダイナミクス
3. 学会等名 J-PARC MLF 液体・非晶質研究会 (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山口 敏男, 福山 菜美, 吉田 亨次, 片山 芳則
2. 発表標題 ギガパスカル圧力領域の塩化マグネシウム水溶液中のイオンの溶媒和、会合、および溶媒水の構造
3. 学会等名 日本化学会 第101春季年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山口 敏男
2. 発表標題 量子ビームと溶液化学
3. 学会等名 電気化学会第88回年会（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 W.Q. Zhang, T. Yamaguchi, C.H. Fang, K. Yoshida, Y.Q. Zhou, F.Y. Zhu, S. Machida, T. Hattori, W. Li
2. 発表標題 ギガバscal圧力下のRbCl水溶液の構造
3. 学会等名 第81回分析化学討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 松尾俊一郎, 中里駿太郎, 秦菜月, 山口敏男, 吉田亨次, 栗崎敏, 石坂昌司, 尾原幸治
2. 発表標題 ラマン散乱とX線回折による硫酸マグネシウム水溶液液滴の濃縮及び結晶化過程のその場観測
3. 学会等名 第81回分析化学討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山口敏男, 中里駿太郎, 秦菜月, 松尾俊一郎, 吉田亨次, 栗崎敏, 石坂昌司, 尾原幸治
2. 発表標題 空気中に浮揚させた単一液滴の構造と性質（1）硫酸アンモニウム及び硝酸マグネシウム水溶液液滴
3. 学会等名 第43回溶液化学シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 松尾俊一郎, 山口敏男, 中里駿太郎, 秦菜月, 吉田亨次, 栗崎敏, 石坂昌司, 尾原幸治
2. 発表標題 空気中に浮揚させた単一液滴の構造解析法の開発とその応用(2) 硫酸マグネシウム水溶液液滴
3. 学会等名 第43回溶液化学シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 吉田亨次, 山口敏男, 尾原幸治, 白井洵, 北森武彦, 馬渡和馬
2. 発表標題 300 nmのナノ空間に閉じ込められた水のX線回折測定
3. 学会等名 第43回溶液化学シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山口敏男
2. 発表標題 量子ビームを用いた液体・溶液の構造とダイナミクスの研究
3. 学会等名 第57回X線分析討論会(招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Toshio Yamaguchi, Nami Fukuyama, Koji Yoshida, Yoshinori Katayama, Takanori Hattori
2. 発表標題 Ion solvation and water structure of aqueous NaCl solutions in the gigapascal pressure range
3. 学会等名 PACIFICHEM 2021(招待講演)(国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 T. Yamaguchi, S. Matsuo, S. Nakasato, N. Hata, K. Yoshida, S. Ishizaka, K. Ohara
2. 発表標題 Structure and properties of a single aqueous electrolyte droplet in the air by Raman spectroscopy and X-ray diffraction
3. 学会等名 PACIFICHEM 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山口 敏男, 中里 駿太郎, 秦 菜月, 松尾 俊一郎, 吉田 亨次, 栗崎 敏, 石坂 昌司, 尾原 幸治
2. 発表標題 ラマン散乱およびX線回折法による空気中の単一電解質水溶液液滴の構造と性質
3. 学会等名 日本分析化学会第69年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 松尾 俊一郎, 中里 駿太郎, 秦 菜月, 山口 敏男, 吉田 亨次, 栗崎 敏, 石坂 昌司, 尾原 幸治
2. 発表標題 超音波浮揚法を用いた硫酸マグネシウム水溶液液滴のラマン散乱とX線回折
3. 学会等名 日本分析化学会第69年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 伊藤華苗, Antonio Faraone, Madhusudan Tyagi, 山口敏男, Sow-Hsin Chen
2. 発表標題 メソポーラスカーボンに閉じ込められた水のダイナミクス
3. 学会等名 J-PARC MLF 液体・非晶質研究会 (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山口 敏男, 福山 菜美, 吉田 亨次, 片山 芳則
2. 発表標題 ギガバscal圧力領域の塩化マグネシウム水溶液中のイオンの溶媒和、会合、および溶媒水の構造
3. 学会等名 日本化学会 第101春季年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山口 敏男
2. 発表標題 量子ビームと溶液化学
3. 学会等名 電気化学会第88回年会(招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 T. Yamaguchi, S. Matsuo, S. Nakazato, N. Hata, K. Yoshida, S. Ishizaka, K. Ohara
2. 発表標題 Structure and properties of a single aqueous electrolyte droplet in the air by Raman spectroscopy and X-ray diffraction
3. 学会等名 The International Chemical Congress of Pacific Basin Societies 2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 山口敏男、中里駿太郎、秦菜月、松尾俊一郎、吉田亨次、栗崎敏、石坂昌司、尾原幸治
2. 発表標題 ラマン散乱およびX線回折法による空気中の単一電解質水溶液液滴の構造と性質
3. 学会等名 日本分析化学会第69年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 松尾俊一郎、中里駿太郎、秦菜月、山口敏男、吉田亨次、栗崎敏、石坂昌司、尾原幸治
2. 発表標題 超音波浮揚法を用いた硫酸マグネシウム水溶液液滴のラマン散乱とX線回折
3. 学会等名 日本分析化学会第69年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Toshio Yamaguchi
2. 発表標題 X-ray and neutron scattering of water and electrolyte solutions in the gigapascal pressure range
3. 学会等名 The Xth International Meeting of the Spanish Society of Neutron Techniques (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 T. Yamaguchi, S. Matsuo, S. Nakasato, N. Hata, K. Yoshida, S. Ishizaka, K. Ohara
2. 発表標題 Structure and properties of a single aqueous electrolyte droplet in the air
3. 学会等名 The 37th International Conference of Solution Chemistry (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 山口敏男
2. 発表標題 ギガパスカル圧力下における水および電解質水溶液の構造
3. 学会等名 第63回高圧討論会 (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 山口敏男
2. 発表標題 液体・溶液の構造とダイナミクス研究の歴史的発展
3. 学会等名 第44回溶液化学シンポジウム（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 山口敏男、木下、松尾俊一郎、吉田亨次、尾原幸治
2. 発表標題 空気中に浮揚させた酢酸水溶液の構造
3. 学会等名 第71回日本分析化学会年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 山口敏男
2. 発表標題 量子ビームを用いた液体・溶液の構造・ダイナミクスの研究
3. 学会等名 日本化学会中国四国支部、化学系地区講演会（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 山口敏男、吉田亨次、服部高典、町田真一
2. 発表標題 ギガパスカル圧力下の塩化ナトリウム水溶液中のイオン溶媒和・会合および溶媒水の構造
3. 学会等名 第82回分析化学討論会
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 山口敏男	4. 発行年 2020年
2. 出版社 丸善	5. 総ページ数 2
3. 書名 化学便覧 基礎編 改訂6版	

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担 者	吉田 亨次  (Yoshida Koji)  (00309890)	福岡大学・理学部・准教授   (37111)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------