

論文審査の結果の要旨

氏名 林 賢

本論文は、近赤外ラマン分光法によるイオン液体 bmimCl (1-n-butyl-3-methyl imidazolium chloride) の結晶多形の発見ならびにイオン液体の液体構造の研究を主題として、6章から構成されている。

第1章では導入として、イオン液体の特徴と興味のポイント、これまでのイオン液体の研究など、本研究の背景ならびに本研究の目的が述べられている。第2章では、一般的イオン液体の合成法に加え、本研究に用いられたイオン液体の合成に関する詳細が述べられている。第3章は、近赤外ラマン分光法による bmimCl の結晶多形の発見に関する記述である。近赤外ラマン分光法の採用により、不純物からの蛍光や、試料からの非弾性散乱によるラマンスペクトル測定の妨害を低減させることに成功した。その結果、固体粉末および液体状態の bmimCl のラマン測定を精度よく行うことが可能となり、結晶多形 (Crystal(1)および Crystal(2)) の発見につながった。さらに、Crystal(1)と Crystal(2) には、そのカチオンのイオン構造の差異を鋭敏に反映するマーカーバンドが存在することを見出した。第4章では、Crystal(1)および、Crystal(2)と同形である bmimBr の単結晶 X 線構造解析の結果が記述されており、結晶多形がイミダゾリウムカチオンのブチル基の内部回転異性によるものであることが示されている。結晶と液体のラマンスペクトルの比較から、液体中には2種の回転異性体が共存することも示された。第5章には、近赤外ラマン分光法を用いた Crystal(1)から液体への融解過程の実時間観測実験の結果が示されている。融解した液体中の回転異性体の緩和が著しく遅いことを明らかにし、イオン液体中には、それぞれの異性体に対応した局所構造が存在するという仮説を導いている。第6章では、研究の過程で見出された磁性イオン液体に関する実験と結果が記述されている。

本研究において提出者は、近赤外ラマン分光法を用いることで、イオン液体 bmimCl の結晶多形を発見し、それぞれの結晶と液体中のカチオンの構造を明らかにした。さらに融解過程の時間分解ラマンスペクトル測定を行い、その結果に基づいて、イオン液体の液体構造に関する作業仮説を提出した。これらの業績は独創性に富み、また丁寧に実行された実験に基づいており、高く評価される。

本論文第3章、第4章、第6章は Chemistry Letters の速報3編として公表済み (小沢亮

介、Satyen Saha、小林昭子、瀧口宏夫との共著)であるが、論文提出者が主体となって実験および解析を行っており、その寄与が十分であるので、学位論文の一部とすることに何ら問題はないと判断する。

以上の理由から、論文提出者林賢に博士(理学)の学位を授与することが適当であると認める。