

氏名(本籍)	崔 星 集 (韓 国)
学位の種類	博士(工学)
学位記番号	博 甲 第 6029 号
学位授与年月日	平成 24 年 3 月 23 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
審査研究科	数理物質科学研究科
学位論文題目	水素結合による機能性分子の自己集合化に関する研究 - 固体状態での電子及び発光機能制御への展開 -
主査	筑波大学教授 博士(工学) 神原 貴 樹
副査	筑波大学教授 博士(工学) 長崎 幸 夫
副査	筑波大学准教授 博士(理学) 木島 正 志
副査	筑波大学准教授 博士(理学) 山本 洋 平

論 文 の 内 容 の 要 旨

本論文は分子間相互作用の一つである水素結合を用いて、機能性分子の自己集合化と機能発現を目指した研究をまとめたものである。この研究では自発的に分子を自己集合させるユニットを導入し、機能性分子の配列を制御する超分子化学的手法を材料開発に利用している。本論文は5章から構成され、二つの機能に着目し、まとめられている。一つは導電性であり、もう一方は発光特性である。まず、導電性を示す化合物に水素結合部位を連結した新たな化合物の設計と合成、物性評価を行った。その結果、小分子でありながら、水素結合ネットワークが存在するために簡便な操作でフィルム形成が可能になり、さらに適切な条件下で導電性を発現することを見出している。また、発光性錯体に水素結合部位を導入した化合物の合成と評価を行っている。合成した錯体は水素結合の連結の違いによって、発光特性が大きく変化することを見出している。

以下に各章の要旨を記述する。

第1章、「序論」では研究の背景として水素結合が持つ意味や水素結合の有用性、また水素結合を有する機能性分子に関する例を紹介した後、研究の意義と研究全般の目標を述べている。

第2章、「テトラチアフルバレン部位を導入した水素結合性超分子ポリマーの設計及び合成」では、新規の機能性超分子の開発を目的として、分子の設計と合成に関して述べている。導電機能が期待される有機分子であるテトラチアフルバレン(TTF)に着目し、水素結合ネットワーク形成が可能なユニットとしてグアノシンを結合させる合成法を提案している。さらに、合成した化合物の溶液中におけるそれぞれの機能を確認した結果を述べている。その結果、グアノシン部位が水素結合ネットワークを形成し、TTF部位が可逆な酸化還元特性を示すことが明らかになった。このことから、グアノシンおよびTTFが、本来持つ性質を失うことなく連結されていることを示し、導電性超分子体への可能性を述べている。

第3章、「テトラチアフルバレン部位を導入した水素結合性超分子ポリマーの固体物性」では、第2章で合成した4つの超分子体の固体物性評価を行うことで、設計した超分子体の評価について述べている。ここでは、水素結合を利用することでTTFを含む超分子ポリマーがフィルムを形成し、そのフィルムが従来の高分子のような柔軟性と強度を有していることを示している。また、適切な酸化剤を用いて導電性を発現さ

せ、導電性超分子ポリマーとしての評価を行っている。また、固体状態の配列と導電性についても考察している。

第4章、「アミド基を持つ N^CN ピンサー型白金錯体の合成と発光性質」では、水素結合を導入した新たな発光性金属錯体に関して述べている。固体状態で効率的に発光する錯体を対象とし、固体状態における配列が制御可能な分子設計と合成を行っている。さらに、これらの発光特性について述べている。合成した錯体は、水素結合によって固体状態における配列が制御できることを確認し、配列と発光の相関について明らかにした。また、外部刺激によってこの配列を変化させることで、三つの発光色に変化させる非常に特徴的な発光特性を見出し、その詳細について述べている。

第5章、「総論」では本研究における適切な分子設計によって、水素結合による機能性分子の超分子化が可能であることを述べている。さらに、超分子化によって新たな機能の発現が可能になったことで、機能を持った超分子体の開発の基礎となる知見が得られたことを述べている。

審査の結果の要旨

本博士論文は、水素結合の特質を活かし、機能性分子を自己集合化した超分子体の設計や合成を行ったものである。この研究における固体状態での超分子の物性評価は、十分な新規性と学術的な意義が認められる。またその研究成果は学術論文として掲載されており、国内外で行った関連学会においてポスター並びに口頭発表したことから、本研究を通して学術並びに社会的貢献を十分に行ったと考えられる。

以下に各章における批評をまとめる。

第1章では、水素結合を持った超分子が示す機能性を述べることで、水素結合を有する化合物設計の有用性を説明し、本研究の目的を明確に示していると判断する。

第2章では、導電性を有する超分子の分子設計と合成を行い、その基礎物性を評価したことを明記している。本研究の根幹をなす成果であり意義があるものと判断する。

第3章では、これまでほとんど検討がなされていなかった水素結合性超分子の力学特性を示しており、さらに導電性の発現についても述べられていることから、新規性並びに学術的に意義のある成果であると判断する。

第4章では、発光性分子の固体発光を水素結合で制御するという新しい試みをしており、一つの錯体から三種類の発光を得ることに成功しており、学術的に意義のある成果と考えられる。

第5章では、機能性分子の自己集合化を検討した成果をまとめ、本研究における水素結合を導入した分子設計が新たな機能の発現につながることを明確にした点において評価できる。

審査会では、本研究における機能性超分子の分子設計及び構造と物性・機能の相関関係についての詳細な説明が求められた。第2、3章の導電性超分子体については、導電性の発現機構と分子の構造及び配列の関係について質疑応答が行われた。第4章の発光性金属錯体については、水素結合による配列制御と発光特性の関係について議論された。これらの質疑に対して、いずれも自らの実験結果に基づく論理的な回答をしており、博士の学位にふさわしいレベルのプレゼンテーション能力を備えているものと判断される。

平成24年2月16日、数理工学科学研究科学学位論文審査委員会において審査委員の全員出席のもと、著者に論文について説明を求め、関連事項につき質疑応答を行った。その結果、審査委員全員によって、合格と判定された。

上記の論文審査ならびに最終試験の結果に基づき、著者は博士（工学）の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。