

## 審査の結果の要旨

氏名 藪内 一博

水素結合などの分子間相互作用を利用した自己組織化プロセスを人工的な材料の設計に効果的に組み込むことにより、新しい動的機能材料への展開が期待できる。本論文では、有機溶媒中で水素結合や $\pi$ - $\pi$ 相互作用により自己組織性ファイバーを形成する分子複合材料に注目し、それを形成する新規低分子ゲル化剤の開発とその集合構造の解明、およびそのような低分子ゲル化剤を利用した機能性分子複合体構築の手法の開拓について述べており、5章から構成されている。

第1章は序論であり、自己組織化プロセスを材料設計に組み込む意義、水素結合を効果的に材料設計に取り入れた最初の例である超分子液晶に関する研究例、および、本論文と関わりの深い、低分子ゲル化剤に関する研究のこれまでの流れと報告例について、分子構造と機能化の手法の2点に注目して述べている。さらに、本研究の目的と意義について述べている。

第2章では、ピリジン環を有するビスウレア型ゲル化剤の開発とその物理ゲル形成挙動、および自己組織性ファイバー中における集合構造について調べた結果について述べている。ピリジン環の2,6-位にウレア部位を導入した化合物が、広範な有機溶媒に対する良好なゲル化剤として機能することを示している。従来報告されている水素結合性の低分子ゲル化剤においては、1次元的に分子間水素結合が伸びることのみを考慮して分子設計がなされていたが、ここで開発したゲル化剤においては、1次元的に伸びる分子間水素結合のほかに、ピリジン環の水素結合能が効果的に働くことにより形成される分子内水素結合や一次元分子鎖に対して側方に伸びる分子間水素結合が、繊維状自己集合とゲル形成に重要な役割を果たしているとしている。

第3章では、ピリジン環を有する低分子ゲル化剤に金属塩を添加することによる、ゲル化剤の集合構造や、形成する物理ゲルの安定性の変化について調べた結果について述べている。ピリジン環の金属配位能に注目し、第2章で開発したゲル化剤および新たに開発したアミド型のゲル化剤の中で、ピリジン環の3,5-位にアミド部位を導入したゲル化剤のみが、銀イオンとの良好な複合体形成能を示すことを見出している。複合化により、ゲル化剤分子は単独で液晶性を示すようになり、また、ゲル化剤としては、一部の溶媒に対するゲル化能が向上し、さらに、形成するゲルの長期安定性が大幅に向上することを見出している。この複合系においては、水素結合と配位結合に加えて、アニオンとゲル化剤分子の間の相互作用が自己組織性ファイバーの安定化に寄与していることも示している。

第4章では、低分子ゲル化剤からなる機能性分子複合体構築のアプローチの一つとして、溶媒に異方的機能性溶媒である液晶を利用する系について、その複合体の示す相分離構造や、動的特性を調べた結果について述べている。第2章で開発したピリジン環を有するゲル化剤およびピリジン環に代えてベンゼン環を導入した化合物は、ネマチック液晶に対して良好なゲル形成能を示したが、これらのゲル化剤が液晶中で形成する自己組織性ファイ

バーの形態や形成温度は大きく異なっていることを見出している。また、ピリジン環を有するゲル化剤を含む系は良好な電場応答特性を示し、過去に報告されているアミノ酸誘導型ゲル化剤の系よりも優れた高速応答性を有していることを見出している。糖誘導型ゲル化剤とネマチック液晶の複合系についても同様に相分離構造と電場応答性について調べ、細かな自己組織性ファイバーが液晶中に均一に分散することが、良好な電場応答特性を得ることに必要であると結論づけている。

第5章では、一様に配向させた液晶相中で、機能性ゲル化剤を会合させることにより得られる機能性分子複合体について、その異方的な秩序構造や、機能性部位の集合状態について調べた結果について述べている。 $\pi$ 共役系の集積が繊維状自己集合の駆動力である系と、水素結合による繊維状自己集合にともない光導電性部位が集積する系の2つの系を得ることに成功している。ゲル化剤分子の選択により、液晶中で、ファイバーが同一方向にのみ成長した構造や、格子状の構造が得られており、自己組織性ファイバーの機能化にとどまらず、集積回路のような、さまざまなナノスケールのデバイスへの展開の可能性を示している。

以上のように、本論文は、ゲル化剤分子の集合構造の調節と機能性の付与の二方向からの視点に基づいて、低分子ゲル化剤からなる機能性分子複合体の構築について述べたものである。本論文で得られた、低分子ゲル化剤の分子設計や、機能性分子複合体構築の手法に関する知見は、自己組織化プロセスを利用した機能性材料開発の発展に寄与するところが大きい。

よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。