

論文審査の結果の要旨

氏名 陳 藹然

本論文は、4章から構成されており、両親媒性フラレンの合成と超分子集合体の開発研究について述べられている。

第1章では、両親媒性フラレンの形成する超分子集合体について、これまでの具体的研究例を挙げ、その重要性について述べられている。

第2章では、両親媒性フラレンの自立型分子薄膜の調製方法の開発について述べられている。この研究では、両親媒性フラレンであるフラレンシクロペンタジエンの二重膜ベシクルを前駆体とすることで界面を必要としない自立型分子薄膜を調製した。自立型分子薄膜の透過型電子顕微鏡による構造解析により、最密充填膜が AB 周期により重なった結晶膜であることを明らかにした。また、レーザー光散乱法により薄膜生成の過程の分析を行い、二重膜ベシクルが溶液中で融合、破裂することで自立型分子薄膜が得られることを見いだした。さらにフロー式粒子像分析装置による分析により、溶液中で自立型分子薄膜が生成することを確認した。これまでフラレン薄膜の調製法としてはラングミュア・プロジェット法や自己組織化膜法などが利用され、基板となる界面を必要としていた。この研究で見いだされた自立型分子薄膜の調製法は、基板を必要としないことから、今後、フラレン分子薄膜を利用した機能性物質の合成法として展開されることが期待される。またこの研究では、種々の構造分析手法を有機的に組み合わせることで、本来構造解析が困難なナノメートルサイズの物質の構造を明らかにしたことも特筆に値する。

第3章では、ヒドロホスフォリル化フラレンの合成反応の開発について述べられている。リンを含む官能基は、両親媒性分子の親水性官能基として広く天然に見いだされる官能基である。しかし、フラレンに含リン官能基を導入する手法は、これまで数少なく、さらに親水性の高い含リン官能基を導入することは困難であった。この研究では、ジメチ

ルスルホキシドを補溶媒とすることで、中性条件下、リン化合物の C60 への付加反応が良好に進行することを見いだした。本反応ではリン化合物としては第 2 級ホスフィン、ホスフィンオキシド、ホスフィン酸誘導体やホスフィン酸誘導体などさまざまな化合物が反応活性であることが見いだされ、種々の置換基をもつヒドロホスフォル化フラレンを合成した。この研究では、いくつかの補溶媒について検討が行われ、電荷移動を経た反応機構が提唱されている。またこの合成手法は多種多様な置換基を許容し、ヌクレオシドをもつヒドロホスフォル化フラレンの合成に成功している。この研究では、さらにヒドロホスフォル化フラレンを利用し、水中分子集合体の構築についても検討が行われている。

第 4 章では、本論文の総括と今後の展望が述べられている。

なお、本論文第 2 章は、磯部寛之氏、中村栄一氏、安永卓夫氏、若林健之氏との共同実験、第 3 章は、磯部寛之氏、ニクラスソリン氏、中村栄一氏との共同実験であるが、論文提出者が主体となって検討を行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

本研究は両親媒性フラレンの自立型薄膜集合体の合成および新規両親媒性骨格をもつヒドロホスフォル化フラレンの簡便な合成手法の開発に成功し、炭素クラスターを利用する超分子化学や材料化学分野に多くの知見を与えた。したがって、本論文は博士(理学)を授与できる学位論文として価値のあるものと認める。