

論文審査の結果の要旨

氏名 宮地 麻里子

本論文は4章からなり、第1章は研究の背景と目的、第2章は分子連結系を用いた人工系光電極の構築、第3章は分子連結系を用いた生体系光電極の構築、第4章は研究成果のまとめについて述べられている。以下に各章の概要を記す。

第1章では研究の背景を述べている。本研究で行われている光電変換のモデルとなる自然界での光合成について解説し、光合成を模倣した人工系光電変換モデルや電極作製法として分子連結系を用いたボトムアップ法について紹介している。加えて、生体系光受容体である Photosystem I (PSI) を用いた光センサーについて紹介している。本研究では、上記の人工系光電変換モデル、ボトムアップ法、光センサーの技術を踏まえて、分子連結系を用いた人工系、生体系での光電変換システム構築を目的としている。

第2章では、分子連結系を用いた人工系光電極の構築について述べている。光受容体としてポルフィリンを、分子連結系としてテルピリジン錯体を用いて透明 ITO (Indium tin oxide) 基板上に自己組織化した光電極を作製し、光電変換システムを構築している。作製した光電極について電気化学測定および紫外可視吸収測定を行い、電極上の自己組織化膜のキャラクタリゼーションを行った上で、構築したシステムを用いて光電変換に及ぼすテルピリジン錯体部位のレドックスの影響について考察している。本章において、テルピリジン錯体を分子連結系として用いた光電変換システムは、従来のアルキル鎖を用いた光電変換システムより良好な特性が得られることを見出している。更に、テルピリジン錯体の中心金属にコバルトイオンを用いた際に、*d* 軌道のレドックスが光電変換特性に良好な影響を及ぼすことを実証したことから、人工系光電変換系での分子連結系の有用性を明らかにしている。

第3章では、分子連結系を用いた生体系光電極の構築について述べている。光受容体として、シアノバクテリアから抽出した PSI を用いて、新規コネクターとして開発したビタミン K₁ 類縁体とテルピリジン錯体とで分子連結系を構築し、PSI を ITO 基板に連結した光電変換システムを構築している。開発したビタミン K₁ 類縁体を組み込んだ PSI は、光吸収減少測定により光電子移動を起こすことが確認されている。作製した電極のキャラクタリゼーションは、2章と同様の電気化学測定および紫外可視吸収測定に加えて、透過型電子顕微鏡による直接観察により行われている。構築したシステムを用いて光電気化学測定により PSI 由来の光電変換を実証している。本章において、生体系光電変換系に分子連結系が応用可能であることを示している。

第4章では、以上の結果を総括し、今後の研究展望を述べている。

以上、本論文では、分子連結系を用いた人工系および生体系光電極を作製し、分子連結系が様々な機能性部品を連結した光電変換システムに応用できることを実証している。本博士論文において得られた分子連結系を用いた光電変換システムに関する知見は、今後の光電変換系構築のための独自の概念を提案したと考えられることから、機能性分子の開発研究において大きなインパクトを与えると期待される。なお、本論文第2章は太田麻希子、

中井美早紀、窪田吉紘、山野井慶徳、米澤 徹、西原 寛との共同研究、第 3 章は山野井慶徳、米澤 徹、西原 寛、井上康則との共同研究であり、一部は既に学術雑誌として出版されたものであるが、論文提出者が主体となって実験及び解析を行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。