

審査の結果の要旨

氏名 平井友樹

刺激応答性、環境適合性、多機能性などを有する次世代材料開発に向けて、分子間相互作用の適切な設計・制御、および分子の集合構造の階層化が重要であると考えられる。

本論文では、液晶と自己組織化ファイバーの複合化によって、階層構造を有する新しい超分子材料を開発する手法が述べられている。液晶、低分子ゲル化剤といった有機分子は非共有結合によって多様な自己組織体を形成する。これらの複合化により得られる液晶物理ゲルは、液晶と低分子ゲル化剤の可逆的な自己組織化、およびそれらのマイクロ相分離界面における相互作用により、従来の液晶複合材料には見られない動的で高い機能を発現する。本論文では、液晶やゲル化剤に π 共役部位、光反応性部位、親イオン性部位といった様々な機能性官能基を導入することにより、光学・電子・イオン機能性を有する新しい複合材料を構築するアプローチが述べられている。本論文は以下の七章から構成されている。

第一章は序論であり、本研究に至る背景を概観し、目的と戦略について述べている。また、関連する超分子材料についての基礎的事項が概説されている。

第二章では、発光性分子集合ファイバーの配向制御について述べている。液晶中でオリゴパラフェニレンビニレン誘導体の自己組織化を行うと、巨視的に配向した発光性ファイバーが得られることを見出している。各種偏光分光測定によ、液晶中で配向したファイバーが特異な偏光発光挙動を示すことを明らかにし、この特異な発光のメカニズムについて考察を加えている。

第三章では、イオン伝導性液晶と光応答性ファイバーの複合化について述べている。イオン伝導性を示すスメクチック液晶を光応答性のアゾベンゼン基を有する水素結合性分子と複合化することにより液晶物理ゲルが作製できると述べている。複合体の偏光顕微鏡観察および各種吸収スペクトル測定から、液晶物理ゲルの構造が紫外光照射により変化することを明らかにしている。紫外光照射前後の液晶ゲルについて交流インピーダンス法による測定を行い、複合体の構造変化に伴ってイオン伝導性が変化することを示している。これらの結果から、複合化により階層性を導入するアプローチが、材料に刺激応答性を付与する上で有用であると結論している。

第四章では、液晶性半導体と自己組織化ファイバーの複合化について論じている。液晶とファイバーの界面における物理的な相互作用が、液晶の分子運動性や電荷輸送特性に与える効果について述べている。ホール輸送特性を示すトリフェニレン誘導体と水素結合性ゲル化剤を複合化することによって液晶物理ゲルを作製し、得られた複合体のホール移動度を Time-of-Flight 法により調べている。その結果、ファイバーの導入によって、ホール移動度が最大で液晶単独の 30 倍近くまで増大することを見出している。さらに、ホール輸送性向上のメカニズムについて考察するために、ホール移動度の電場強度および温度に対する依存性を調べ、分散したファイバーによる液晶分子の運動性抑制が移動度の増加に重要であると考察している。

第五章では、液晶とファイバーの自己組織化を利用した、バルクでの p-n 接合の構造制御について述べている。p 型の半導体特性を有する液晶性オリゴチオフェン誘導体と n 型の半導体特性を有する水素結合性ペリレンビスイミド誘導体を設計・合成し、これらの複合化を検討している。複合体においては、オリゴチオフェン誘導体とペリレンビスイミド誘導体がそれぞれ独立に自己集合し、液晶とファイバーからなる双連続構造が形成されることを明らかにしている。複合体の光導電性について検討し、マイクロ相分離した液晶とファイバーの界面で電荷の生成が効率的に促進されること、また、自己組織的に形成された双連続な電荷輸送経路を通して、分離した電荷が効率的に輸送されることを見出している。これらの結果に基づき、低分子の自己組織化を利用したアプローチが光電変換材料における p-n 接合の構造制御に有用であると結論している。

第六章では、光重合を用いた液晶物理ゲルの安定化について述べている。メタクリロイル基を導入した重合性ゲル化剤とネマチック液晶の複合化により形成される液晶物理ゲルにおいて、紫外光照射により効果的に構造が固定化できることを示している。重合により得られた複合体は光散乱モードにおける電気光学応答特性を示し、その安定性が非共有結合型の複合体と比べて大きく向上すると述べている。

第七章は本論文の結論であり、本研究を通して得られた新しい知見と階層性を有する超分子複合材料の開発指針について述べている。

以上、本論文では液晶や自己組織化ファイバーといった超分子材料の複合化が、光・イオン・電子機能を有するソフトマテリアル開発に有用であることを示している。本研究の成果は今後の有機機能材料・超分子材料開発に新たな指針を与えるものと期待される。

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。