

論文審査の結果の要旨

氏名 本間 達也

本論文は六章から構成されており、化学修飾された炭素ナノクラスターを用いた溶液中および電子顕微鏡下での研究について論じている。

第一章では、研究背景として、炭素ナノクラスターの重要性と歴史的背景が述べられている。炭素ナノクラスターの化学修飾法の合成例、分子集合体の化学、および電子顕微鏡による研究について概説することで、本研究の意義を明確にしている。

第二章では、パーフルオロアルキル鎖を表面に持つフラーレン二重膜ベシクルの調製、構造同定および性質について述べられている。既存の両親媒性分子が親水-疎水構造を有しているのに対し、本研究で用いたフラーレン分子は疎水-親水-疎水という全く新しい構造モチーフを有するが故に調製されるベシクルはこれまでにない、疎水的な表面を有する水溶性ベシクルである。この特異な構造を有するベシクルは光散乱法および各種顕微鏡によって構造同定されている。また、表面の疎水的性質をいかし、フルオラス分子の吸着による水溶化および固体基板表面の撥水化を達成している。本研究は両親媒性分子の新たな構造モチーフの呈示という基礎的な側面から、バルク表面の撥水化など応用面においても有用なものである。

第三章では、第二章で提示された疎水-親水-疎水構造を有する両親媒性分子のベシクル形成を一般化すべく、同様の構造モチーフを有するフラーレン化合物でのベシクル形成について述べられている。フラーレン上に長さの異なるアルキル鎖を導入しベシクルを形成させることに成功しており、疎水-親水-疎水構造が両親媒性分子の新たなモチーフとなることを示している。また、ベシクル表面の置換基の性質は疎水表面上での安定性、バルク状態での撥水性および水溶液中での水の透過性に反映されることが明らかとなった。本研究は疎水-親水-疎水構造を有する両親媒性分子の一般性を示したのに加え、表面置換基の変換によりベシクルの性質制御が可能になったという重要な知見を与えている。

第四章では、第二章で見いだしたフルオラスベシクルについて電子顕微鏡観察下で水を保持していることを明らかにした。通常の二重膜ベシクルとことなり、フルオラスベシクルが透過型電子顕微鏡観察において強いコントラストを伴って観測されることに着目し、EDS 測定によってベシクル内部に水が保持されていることを証明した。また、フルオラス分子の添加により、内包された水が徐々に抜けて行く様子の可視化にも成功した。自己集合体であるベシクルが高真空下で水を保持できるという、常識を覆す発見であり、新たな反応場としての利用、および、数十ナノメートルの水の材料的利用など、本研究によってもたらされる知見は大きい。

第五章では、カーボンナノホーン上に有機分子を結合させ、これを単分子結晶核として結晶を成長させ、高分解能電子顕微鏡によってその初期過程について研究を行っている。結晶成長と言うきわめて一般的な現象について、これまで分子レベルでの知見は全くと言っていいほど得られていなかったが、本研究によって有機一分子レベルでの結晶成長について初めて知見を与えている。これにより、結晶成長における臨界サイズを初めて決定したのみならず、結晶核の数を分子レベルで変化させることにより、バルクサイズの結晶サイズを制御することに成功している。本研究により与えられた成果は、結晶多形が重要である製薬および工業界に大きな知見を与えると考えられる。

第六章は本研究の総括である。第二章から第五章の結果を分子集合体の化学、電子顕微鏡の化学および結晶成長の化学における意義を述べるとともに、今後の展望について述べている。

なお、本論文第二～五章は中村栄一博士、原野幸治博士、第二、三章は磯部寛之博士との共同研究であるが、研究計画および検討の主体は論文提出者であり、論文提出者の寄与が十分であると認められる。

本研究は分子集合体の化学において40年間常識とされてきた親水-疎水構造を有する両親媒性分子に加え、疎水-親水-疎水構造を有する両親媒性分子もベシクル構造を形成することを見だし、その特異な性質について多くの知見を与えた。また電子顕微鏡を駆使することで、これまで不可能であった有機単分子レベルでの結晶成長について重要な知見をもたらした。したがって、本論文は博士（理学）の学位論文として価値のあるものと認める。