

## 論文の内容の要旨

論文題目           Virus Inspired Multi-Component Self-Assembly of  
Molecular Spheres  
(ウイルスから発想する分子球の多数成分自己集合)

氏 名           孫 慶 福

本論文では、ウイルスの球状殻構造から発想した、様々な球状分子の合成研究について述べられている。自然界では、自己組織化の原理に基づいた巨大かつ精緻な構造が数多く見受けられ、特に厳密な構成成分数のタンパク質が自己組織化したウイルスの球状殻構造は、その内部にDNAやRNAを貯蔵する機能も担うために興味深い。本研究では、このウイルス構造から発想し、複数の配位部位を有する配位子と、+2価のパラジウムイオンとの自己組織化を用いる合成化学のアプローチによって、従来法では合成しえない多数成分からなる分子球の合成法を確立した。第1章では、本論文に関連する過去の研究が総括され、本研究の新規性・重要性が述べられている。第2章では、折れ曲がった2座配位子 (ligand: L) と平面四配位性の金属イオン (metal ion: M) とを用いた自己組織化を行うと、 $M_nL_{2n}$  ( $n = 6, 12, 24, 30, \text{ and } 60$ ) 組成の分子球のみが、幾何学的な制約を受けて生成する現象が考察されている。これまでに  $n = 6$  と  $12$  の分子球は合成されているが、本研究では  $n = 24$  の新規分子の合成に成功し、世界最多の72成分からなる巨大分子球の構築を達成した。さらに、配位子の構造をわずかに変化させるだけで、 $M_{12}L_{24}$  分子と  $M_{24}L_{48}$  分子とを特異的に合成できることをつきとめ、多数成分の自己組織化に特有の構造制御現象を明らかにした。第3章では、分子球表面に新たな配位部位を導入する分子設計を行い、金属イオンの追加・除去を行うと、表面でのクロスリンク反応による表面細孔の開・閉を制御できることが述べられている。第4章では、大小2種類の配位子を共有結合で連結すると、小さい分子球を大きな分子球が包み込んでいる二重構造の分子球が合成できることが述べられている。第5章では、大小2種類の配位子を、連結することなく混合して用いると、2種類の配位子が選択的に組み込まれた新規構造の分子球を選択合成できることが述べられている。第6章では、枝分かれた側鎖を巨大な分子球内部に連結することで、「逆デンドリマー」とよぶべき特異構造を構築できることが明らかにされ、高密度にポリマー鎖が充填されたナノカプセル合成として有用であることが考察されている。第7章では、金属間結合を自己組織化の駆動力として用いることで  $Au_{36}$  集合体の合成を達成できることが述べられている。