

審査の結果の要旨

氏名 山根祥吾

有機機能材料の物性は分子の集合状態に強く依存するため、自己組織性材料を用いて機能部位の集合状態を精密に制御することは材料の高機能化のために重要である。液晶は、結晶の秩序性と液体の流動性を併せ持つ自己組織性機能材料であるため、液晶を用いることは集合構造を制御するための手段として注目されている。中でも広い π 共役部位を有する有機材料は発光特性や電荷輸送特性を有することから、液晶性を付与することでより優れた機能を示す材料として注目を集めている。本研究では光機能に着目して、 π 共役部位を導入したスメクチック液晶の集合構造制御に基づく発光特性の制御と刺激応答性を示す新規光機能性液晶材料の合成と機能について述べており、五章で構成されている。

第一章では、以上の本研究に至るまでの背景と本研究における目的を概説している。

第二章では、熱的刺激に応答して層構造が変化し、それに伴い発光特性が変化するスメクチック液晶材料の合成と機能について述べている。分子設計指針として、発光特性を有する広い π 共役分子の両末端に、極性・非極性部位を有するかさ高いメソゲン部位を導入することを提案している。この分子設計に基づいて合成された分子が、温度変化によるスメクチック-スメクチック液晶相転移を示す事を報告している。最適な発光部位を選択することで、その相転移に伴ってエキシマー発光とモノマー発光の割合が変化し、発光特性が変化することが示されている。加えて、適切な置換基を発光部位に導入することで、エキシマーの構造を制御可能であることを見出している。また、この光機能性液晶をポリイミド配向膜を用いて一軸に配向させることで、偏光発光特性を示す素子が得られる事を報告している。冷却過程においてこの素子が偏光発光特性を維持したまま発光色を変化させることが可能であることが述べられている。

第三章では、機械的刺激および熱的刺激に応答して発光特性が変化する光機

能性スメクチック液晶について述べている。分子間の相互作用を弱めるため、ねじれた構造を有するビアントリル部位を発光部位に導入することを提案している。メソゲン部位を発光部位の両末端に二本ずつ導入した分子が、高温でアニールすることで、発光色が青緑色から緑色に変化することを報告している。この緑色発光を示す状態のサンプルに対して室温において機械的刺激を印加することで、発光色が青緑色に変化することを見出している。加えて機械的刺激を印加した後の化合物を加熱することで、等方相状態を経ることなく再び緑色発光を示すことを報告している。さらに、メソゲン部位の体積を変化させることで、同じ発光部位を用いてもある程度メカノクロミック発光特性を制御することが可能であることを見出している。

第四章では、異種の発光分子を混合することによる、発光のより大きな長波長シフトを示すメカノクロミック発光材料の作製について述べている。前章で用いた両端に二本ずつメソゲン部位を有するビアントリル誘導体に、添加物としてペリレンビスイミド誘導体を添加した混合物について報告している。両者を適当な割合で混合した混合物は、ビアントリル誘導体が等方相を示す温度においてペリレンビスイミド誘導体の固体が相分離していることを確認している。この状態から急冷、加熱処理をした後再び室温に冷却した混合物は青緑色の発光を示す一方、これに機械的刺激を印加することで、発光色が赤色に変化することを見出している。

第五章は結言であり、第四章までの研究結果を総括し、今後の展望について述べている。

以上、本論文では外部刺激によって発光部位の集合状態が変化することで材料全体の発光特性が変化するスメクチック液晶材料の開発について述べている。これらの研究は、センサー・メモリ等への応用のみならず、超分子化学や光化学の分野に広く貢献するものである。

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。