博士論文を要約したもの

博士論文題目 Chirality Controlled Energy Transfer on Supramolecular Assembly (超分子組織構造における励起エネルギー移動とキラル制御に関する研究) 氏 名 Sethy Ramarani

(要約)

本論文は、Sethy Ramarani が本学物質創成科学研究科博士後期課程において実施し た上記の論文題目にかかる博士論文研究の成果についてまとめられている。全5章より 構成されており、第1章では本論文の背景となるπ共役系分子を中心とする分子の自己 組織化により構成されるナノ構造に関するこれまでの研究を概観したうえで、自己組織 構造の光学特性の特異性と特に光学活性の関係に関する従来の研究を総括し、さらにキ ラルな超分子組織構造における特異なエネルギー移動現象とキラル分子認識の相関の 解明を目指す本研究の目的を明らかにしている。第2章では水素結合を駆動力とする自 己組織化によるナノワイヤー構造形成に関するこれまでの研究の知見に基づき、キラル な発光性ナフタレンビスイミドユニットを有する新規の発光性ナノワイヤーにおける 励起エネルギー輸送と特異なキラル分子認識能について検討している。ナフタレンビス イミドの発光波長に対して共鳴励起エネルギー移動に有効な吸収波長を有するキラル ペリレンビスイミド分子を励起エネルギーアクセプターとしてドーピングした系にお いて、99%以上の高い選択性を有するキラル分子認識能を見出している。1.5mo1%と いう微量のアクセプターの添加で高効率のエネルギー移動が可能であることや、このエ ネルギー移動発光において円偏光発光性の光学反転が起こることなどが示されている。 第3章では第2章で取り上げたキラルな発光性ナフタレンビスイミドについてキラル 分率に依存した自己組織現象を調べた結果をまとめている。キラル分率が高い場合には ほぼ直線状のナノワイヤーが形成するのに対して、キラル分率が低下するとカールした 構造を有するナノワイヤーが形成することを見出している。さらに時間分解蛍光偏光解 消計測の結果から、ナノワイヤー内における励起エネルギー輸送速度とそのキラル分率 依存性を明らかにしている。分子動力学計算などの結果とも合わせて、光学純度が高い 場合と低い場合において形成されるナノワイヤーの構造の違いを推定し、光学特性の違 いを矛盾なく説明することに成功している。第4章では石英基板上に形成されたナノワ イヤー構造における高分解能蛍光顕微鏡観察と原子間力顕微鏡観察を同一試料に対し てして実施し、ナノワイヤーの形態と発光強度や発光波長に関する相関を解明している。 特に溶液中の計測では見出されない、アクセプターの自己会合構造が偏在する特異な現 象を見出している。第5章では本研究の内容を総括するとともに、キラルな超分子組織 構造における特異な発光特性に関するこれまでの研究成果と比較し、本研究成果の意義 を論じている。さらに今後の研究課題について展望し本論文の総括としている。