

論文審査の結果の要旨および担当者

報告番号	※ 甲 第 号
------	---------

氏 名 松尾 恭平

論 文 題 目 Chemistry of Boron-Embedded Polycyclic π -Electron Systems

(ホウ素を中心に組み込んだ縮合多環式 π 電子系化合物の化学)

論文審査担当者

主査 名古屋大学トランスフォーマティブ生命分子研究所

教授 博士 (工学) 山口 茂弘

委員 名古屋大学トランスフォーマティブ生命分子研究所

教授 博士 (工学) 伊丹 健一郎

委員 名古屋大学大学院工学研究科

教授 博士 (工学) 忍久保 洋

論文審査の結果の要旨

別紙 1-2

優れた光・電子物性を示す π 電子系有機化合物の開発は、有機エレクトロニクスへの応用という観点から重要である。特異な電子物性を実現する一つの方法論として、 π 共役骨格への電子欠損性の三配位ホウ素の導入が挙げられる。しかし、有機ホウ素化合物は一般に酸素や水に対して不安定であり、材料への応用には安定化が必須である。申請者は、そのアプローチとしてトリアリールボラン骨格の平面固定化による安定化に着目し、ホウ素を中心に組み込んだ縮合多環式 π 電子系の合成と、それらの特徴的な物性・動的挙動の解明、そして有機薄膜トランジスタへの応用に取り組んだ。

まず、ホウ素上に 2 つのベンゾチオフェンと 1 つのアントラセンを導入したトリアリールボランの平面固定化に取り組み、ホウ素を中心にもつ平面 π 電子系の合成に成功した。得られた化合物は、空気、水に対して高い安定性を示し、X 線結晶構造解析により、これまで実現不可能であった face-to-face 型の π スタック構造を形成することを見出した。さらに骨格に埋め込まれたホウ素原子は元来のルイス酸性を保持しており、弱いルイス塩基であるピリジンとも錯形成を起こした。その可逆な錯形成挙動を生かすことにより、サーモクロミズムを実現することに成功した。

次に、ホウ素を組み込んだ新たな平面 π 電子系として、部分的な縮環構造をもつ平面化トリナフチルボランの合成を達成し、そのピリジン錯体の光励起状態での動的挙動を明らかにした。部分的に縮環した平面化トリナフチルボランは酸素や水に対して高い安定性を示す一方で、分子の柔軟性の向上に伴い、比較的高いルイス酸性を示した。この化合物とピリジンとの錯体の蛍光特性を詳細に検討し、特異な二重発光性を示すことを見出した。ピリジン錯体からの蛍光とともに、励起状態でピリジンの解離が促進され生じた三配位ボランからの蛍光が見られるという現象である。この特性は、ピリジン誘導体のルイス塩基性に依存しており、その調節により大きく発光色を変えられることを示した。

さらに、平面化トリナフチルボランの有機半導体材料としての応用についても検討し、溶液プロセスでの素子作製の新たな手法を提案した。平面化トリナフチルボランの溶解度はピリジンの添加によって格段に向上することを見出した。また、スピコート法で成膜したピリジン錯体の薄膜は、加熱によって元の三配位ボランの薄膜に変換できることを示した。得られた平面化トリナフチルボラン薄膜を用いた電界効果トランジスタ素子は p 型半導体特性を示した。

以上のように、申請者はホウ素を中心に組み込んだ縮合多環式 π 電子系分子の開発を基盤とし、その特異な物性を解明するとともに、機能性材料への応用の可能性を示した。これらの知見は、有機ホウ素化学のみならず、材料化学においても新たな分子設計指針を与える重要な結果である。よって申請者は博士(理学)の学位を授与される十分な資格があるものと認められる。