

論文審査の結果の要旨

氏名 高田 健司

本論文は全 6 章からなる。第 1 章は研究背景と目的、第 2 章はビステルピリジン鉄およびコバルト錯体ナノシートの合成とエレクトロクロミック特性およびエレクトロクロミックデバイスへの応用、第 3 章はビステルピリジンニッケル錯体ナノシートの合成と酸化還元特性、第 4 章は硫酸イオン架橋構造を有するテルピリジン亜鉛錯体ナノシートの合成と発光特性、第 5 章はポルフィラジン共役ジチオラト配位子を用いたメタラジチオレンナノシートの合成、第 6 章は研究結果の総括と今後の展望を述べている。以下に各章の概要を記す。

第 1 章では研究背景と目的について説明している。2004 年のグラフェンの発見以降注目を集め研究が急速に進められている二次元物質ナノシートとその物性について、グラフェンおよび無機ナノシートの例を挙げながら述べている。これらのナノシートと比較して、配位結合を利用してボトムアップ的に合成できる配位ナノシートが、構造・物性をデザインして合成できること、配位ナノシートの研究がその合成から物性へと進みつつあることを説明している。本研究では、機能性配位ナノシートとして、テルピリジンおよびジチオラト配位子と 4 種の金属イオンを用いた配位ナノシートの合成を行い、その電気化学または光化学物性の評価を行った。

第 2 章では、ビステルピリジン鉄およびコバルト錯体ナノシートの界面合成とエレクトロクロミズム、そしてエレクトロクロミックデバイスへの応用について述べている。2 種類のテルピリジン配位子と鉄およびコバルトイオンを用いた配位ナノシートの合成・同定に成功し、各ナノシートが金属錯体部位の電気化学的酸化または還元反応によって高速応答・高耐久のエレクトロクロミズムを示すことを明らかにし、配位子や金属イオンの種類の選択がエレクトロクロミック特性に与える影響について述べている。さらに、これらのナノシートを応用したエレクトロクロミックデバイスの作製・動作にも成功している。

第 3 章では、前章で開発したビステルピリジン金属錯体ナノシートの系をニッケルイオンを用いて展開している。ビステルピリジンニッケル錯体ナノシートの界面合成・同定を行い、鉄錯体およびコバルト錯体シートと同様に酸化還元活性を示すことを明らかにし、その電気化学反応中のスペクトル変化から、可視光領域で色変化を伴わない電気化学反応であることを示している。

第 4 章では、硫酸イオンによる架橋構造を持つ亜鉛テルピリジン錯体を用いた配位ナノシートの合成と発光特性について説明している。X 線光電子スペクトル・赤外吸収スペクトルの測定から合成した配位ナノシートが硫酸イオンによる架橋構造を持つことを決定し、このナノシートが紫外線の照射下で黄色の発光を示すことを明らかにしている。さらに、この発光がソルバトクロミズムを示すことを見出した。

第 5 章では、ポルフィラジン共役型メタラジチオレン錯体の合成法に関して述べている。配位子溶液をニッケルイオン溶液に拡散させることによってシート状化合物が生成することを確認し、超音波処理により剥離できることを示している。さらに、X 線光電子スペク

トル・赤外吸収スペクトルによって目的のシートが生成していることを見出している。

第6章では、本論文全体の総括と今後の展望について述べられている。

以上、本論文では、新規な物質群である配位ナノシートとして、テルピリジン配位子およびジチオラト配位子を用いた配位ナノシートの合成を行い、テルピリジン金属錯体ナノシートの電気化学・光化学物性を明らかにし、エレクトロクロミック素子への展開を達成している。本博士論文の成果は、機能性配位ナノシートの多様性・応用性を実証するものであり、次世代の薄型・小型エレクトロニクス発展に寄与することが期待される。なお、本論文の第2章は坂本良太・Yi Shiting・片桐俊介・神戸徹也・西原 寛との共同研究であり、一部はすでに学術誌に発表したものであるが、論文提出者が主体となって実験・解析を行ったものであり、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

したがって、博士（理学）の学位を授与できると認める。