林 宏暢

物質·材料研究機構 先端材料解析研究拠点 主任研究員

ポーラスナノシートの自己集積構造制御による機能発現

研究成果の概要

当該年度は、ポーラスナノシートの構成原料である環状分子として、芳香族部位が 2 本の結合で連結されたラダー型構造を骨格とする環状分子に着目し合成を行った。ラダー型構造を有する環状分子は合成難易度の高い化合物群である。本研究では、環状構造形成に適切な折れ曲がり部位を持つ前駆体と、ジケトンとジアミンとの脱水縮合反応とを組み合わせることで、低収率(0.8%)ながらもドナー・アクセプター部位が交互に連結した構造を有するラダー型環状分子合成を達成した。本環状分子は、構造有機化学の分野において大きな合成目標である、含窒素シクラセンの前駆体として有用である。また、本環状分子骨格への置換基導入により溶解性・合成収率を向上させ、さらにその光学特性評価の結果、ドナー・アクセプター部位を有する環状分子構造に由来する CT状態からの発光を観測した。合成したラダー型環状分子は、種々の芳香族分子をポーラス内部に取り込むことを明らかにした。このゲスト取り込みは、本環状分子を連結して合成されるポーラスナノシート中におけるゲスト精密配列に有用な知見を与えた。

さらに当該年度は、動的共有結合形成反応を利用した、ポーラスナノシート合成を検討した。その合成予備実験として、本反応を用いて環状分子合成を行った結果、良好な収率で環状分子が得られることが分かった。その後、ポーラスナノシート合成に展開した結果、原子間力顕微鏡や走査透過電子顕微鏡測定から目的のポーラスナノシート生成を示唆する結果を得た。また、ポーラスナノシート前駆体(原料)に導入した置換基構造が、ナノシートの溶解性・物性に与える影響を評価した。本成果は、溶媒に可溶なポーラスナノシート開発を行うにあたり重要な知見となった。今後、詳細な構造解析や、ポーラスナノシート前駆体構造とナノシート物性とのさらなる相関解明を行う。

【代表的な原著論文情報】

1) "Polyazaacene and Cyclazaacene Precursor Synthesized by Dehydration Condensation from a Versatile Bis-a-diketone Unit Having an Anthracene Skelton", Yee Seng Chan, <u>Hironobu Hayashi</u>, Shizuka Sato, Shoma Kasahara, Kyohei Matsuo, Naoki Aratani, and Hiroko Yamada, *European Journal of Organic Chemistry* 2022, e202200621. Selected as a *VIP paper* and a *Front Cover*. Open access.