

別紙 1 (博士論文の審査結果の要旨)

専攻名 システム創成科学専攻

氏名 JIANG XUEKAI

ドーパミンおよびセロトニンに代表されるアルキルアンモニウムイオンは生体系で重要な役割を果たしており、これらの化学種の選択的および高感度分析法の開発は特に関心が注がれている。本研究ではカリックスアレーンを基盤とする分子認識システムの開発に関する研究の一環として、生物学的に重要なアミンレセプターを開発し、構造と分子識別能との相関関係を調べることを目的とするものである。

本学位論文成果は2章から4章に著されており、5章においてそれらの総括をしている。

第1章ではカリックスアレーンを基盤とする新規蛍光性イオン化学センサーの概論、分子識別能に基づく超分子アロステリックレセプターの概論および研究の意義と目的について述べている

第2章では本研究の鍵段階となるヘキサホモトリオキサリックス[3]アレーンのフェノール性水酸基への種々の官能基の導入について論じている。本化合物群では二つの立体配座異性体存在の可能性があるが、反応溶媒の混合比(アセトン-ベンゼン)を変えることにより、各立体配座異性体の選択的合成法確立に成功している。

第3章ではアンスリル-1,2,3-トリアゾール基を置換した *cone*-ヘキサホモトリオキサリックス[3]アレーン誘導体の合成および蛍光性イオン化学センサーとしての評価を蛍光スペクトル変化から調べている。金属錯体形成によるアントラセン部位の構造変化に基づく Zn^{2+} および Cd^{2+} イオンに対する高い選択特性を明らかにしている。

第4章では本研究で開発したアルキルアンモニウムイオン蛍光性化学センサーの評価を論じている。 C_3 対称性をもつホスト分子ホモトリオキサリックス[3]アレーンが一級アンモニウムイオンに対し

高い結合能を発現し、ホスト分子とゲスト分子が同じ対称性を持つことが重要であることおよび本物質の環状部位の酸素原子に基づく分子認識能の向上を実証している。特に、ドーパミンおよびセロトニン等の生体機能物質との錯体形成による蛍光強度の増大による高選択的検出が実現できたことは特筆すべき成果であろう。

さらに、本研究で開発したレセプターは Zn^{2+} およびアルキルアンモニウムイオンと同時に錯体形成可能なヘテロダイトピックレセプターとして機能することを明らかにしている。異なったア金属イオンとの錯形成能の差に基づくアルキルアンモニウムイオン錯形成に対するアロステリック効果が観察され、アンモニウムイオンの catch and release を発光および消光で読み取り可能なシステムの開発に成功している。

第5章では、本論文の総括を示すとともに、分子認識に基づく蛍光性イオン化学センサーが関与する新しい分野への応用および今後の展望も含めて言及している。

以上、本論文では、カリックスアレーンを基盤とする新規蛍光性イオン化学センサーの新しい実用的な合成法の開発に成功するとともに、本化合物群の構造とイオン認識能との相関関係を解明および分子素子としての応用の可能性を明らかにするなど、多くの研究成果が得られている。本研究成果は、人工蛍光性アミンレセプターの構築への重要な指針を与え、今後の分子認識化学のみならず超分子化学に寄与することが大きい。

平成28年8月1日公聴会において学位論文の内容及び参考論文の関連事項などについての説明を受けるとともに、質疑応答を行った。それに対して、今後の展望も含めて同氏により明確に解説され、的確な応答があった。

よって、本論文は博士(工学)の学位を授与するに値すると判断され、審査員全員一致で合格と判定した。