The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	STUDIES ON INCLUSION PHENOMENA AND PACKING COEFFICIENT OF CHOLIC ACID WITH DIFFERENT SIDE CHAIN FUNCTIONAL GROUPS
Author(s)	Yoswathananont, Nungruethai
Citation	大阪大学, 2003, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/44214
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、大阪大学の博士論文についてをご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

【5】

氏　　名	Yoswathananont（ヨスパタナノン）, Nungruethai（ヌンルタイ）
博士の専攻分野の名称	博　士（工　学）
学　位　記　番　号	第　17792　号
学位授与年月日	平成15年3月25日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当 工学研究科物質・生命工学専攻
学　位　論　文　名	STUDIES ON INCLUSION PHENOMENA AND PACKING COEFFICIENT OF CHOLIC ACID WITH DIFFERENT SIDE CHAIN FUNCTIONAL GROUPS （側鎖官能基の異なるコール酸の包接現象と空孔充填率に関する研究）
論　文　審　査　委　員	（主査） 教　授　宮田　幹二 （副査） 教　授　金谷　茂則　　教　授　福住　俊一　　教　授　柳田　祥三 教　授　横山　正明　　教　授　高井　義造　　教　授　伊東　一良

論　文　内　容　の　要　旨

本論文は、側鎖官能基の異なるコール酸の包接現象と空孔充填率を明らかにすることを目的として行われた。緒言、第1章～第6章および総括より構成されている。

緒言では、本研究の意義と目的について述べた。

第1章では、側鎖官能基の異なる四種類のコール酸誘導体の分子構造を紹介し、それら各誘導体の包接能、結晶構造、分子間水素結合、および分子集合様式についてまとめた。そして、他のホストに比べて、コール酸とコール酸アミドが非常に多数のゲストを包接することを述べた。

第2章では、コール酸が広範囲の有機化合物を包接する原因は、ゲスト分子体積に依存する包接結晶の融通性にあることを述べた。この融通性のある多形現象は、ホスト空孔充填率、すなわちホスト空孔中のゲスト成分の充填率、と深い関係をもつことを明らかにした。さらに、分子体積の増加に伴う包接様式の系統的変化、境界における多形現象の出現、包接結晶形成に用いる溶媒の選択法などを示した。

第3章では、コール酸によるゲストの選択的分離について、分子認識の観点から、ゲスト依存的多形との相関について述べた。ゲストとして各種芳香族化合物を用いる場合、ゲスト選択と優先的コール酸多形結晶との相関が合理的に説明できることを示した。

第4章では、コール酸アミドが各種アルコールを包接する原因は包接結晶の融通性にあることを述べた。コール酸と同様に、コール酸アミドの場合も、ホスト空孔充填率によりこの融通性が説明できることを示した。また、水素結合ドナーの増加により、包接されるゲストの種類が変化することを合理的に説明し、ホストゲスト関係を大きく変化させる水素結合一個の増減の意義を明確にした。

第5章では、コール酸アミドが有機ゲストと同時に水を包接し、しかもその水のモル量が異なる三成分結晶を形成することを述べた。この新規擬多形結晶の構造をX線解析により決定し、結晶化する際に水が多い時はらせん状結晶、少ない時は層状結晶が形成することを明らかにした。

第6章では、この研究で用いたホスト空孔充填率に対して、従来使用されてきた結晶充填率との関係について述べた。包接結晶のゲスト依存多形を説明するには前者が適し、後者は不適であることを論理的に明らかにした。さらに、

両方のデータを包含する考えを導き、包接化合物が固体と液体の中間に位置する分子集合体であることを立証した。

総括では、本研究によって得られた成果を要約し、本論文の結論とした。

論文審査の結果の要旨

本論文は、分子量400程度の有機分子の分子集合体の設計方法を確立することを大きな目的としている。この設計方法の確立には、分子間相互作用に関する系統的なデータの蓄積を必要とする。そのため本研究では、側鎖官能基の異なるコール酸誘導体を用い、それらの包接能を詳細に検討するとともに、単結晶X線解析などにより分子配列及び分子間相互作用を調べている。これらの結果に基づき、分子集合と包接能の設計に関する新しい概念と方法が提出され、我々の提唱する「有機小分子の情報と表現」に関する概念の確立に対して、本研究は大きく寄与するものである。本論文の主な成果を次に要約する。

(1)側鎖官能基の異なる四種類のコール酸誘導体の包接能、結晶構造、分子間水素結合、および分子集合様式を比較検討し、他のホストに比べて、コール酸とコール酸アミドが非常に多数のゲストを包接することを明らかにしている。

(2)コール酸が広範囲の有機化合物を包接する原因は、ゲスト分子体積に依存する包接結晶の融通性にあり、この融通性多形現象が、ホスト空孔充填率、すなわちホスト空孔中のゲスト成分の充填率、と密接な関係をもつことを明確にしている。さらに、分子体積の増加に伴う包接様式の系統的変化、境界における多形現象の出現、包接結晶形成に用いる溶媒の選択法などについても多くの新しい知見を得ており、注目に値する。

(3)コール酸によるゲストの選択的分離について、分子認識の観点から、ゲスト依存的多形との相関関係を明らかにすることに成功している。ゲスト選択と優先的コール酸多形結晶との相関が合理的に説明できることを示している。

(4)コール酸と同様に、コール酸アミドの場合も、ホスト空孔充填率により包接形成の融通性が説明できることを明らかにしている。水素結合一個の増減に基づく分子認識は、超分子化学における重要な課題の一つであり、本研究がそれを対象として進められていることからも価値あるものと認められる。

(5)コール酸アミドが有機ゲストと同時に水を包接し、しかもその水のモル量が異なる三成分結晶を形成することを初めて見出している。

(6)この研究で用いたホスト空孔充填率に対して、従来使用されてきた結晶充填率との関係を調べ、新しい包括的な考えを提唱している。すなわち、包接結晶のゲスト依存多形を説明するには前者が適し、後者は不適であることを論理的に明らかにし、包接化合物が固体と液体の中間に位置する分子集合体であることを立証している。

以上のように本論文は、異なる官能基をもつコール酸誘導体の包接能と分子集合様式を系統的に研究し、ゲスト依存性ホスト多形およびホスト空孔充填率について多くの新しい知見を得ている。これらの成果は、超分子化学、分子認識化学、有機化学の発展に寄与するところが大きい。よって、本論分は、博士論文として価値あるものと認める。