



Title	Associative Behavior of Polyelectrolytes Covalently-Modified with Various Types of Bulky Hydrocarbons
Author(s)	山本, 洋史
Citation	大阪大学, 2000, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/41908
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、 〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉 大阪大学の博士論文について 〈/a〉 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

氏名	やまもと ひろし 山本 洋 史
博士の専攻分野の名称	博 士 (理 学)
学位記番号	第 15196 号
学位授与年月日	平成12年3月24日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当 理学研究科高分子科学専攻
学位論文名	Associative Behavior of Polyelectrolytes Covalently-Modified with Various Types of Bulky Hydrocarbons (長鎖アルキル鎖で化学修飾した両親媒性高分子電解質の会合挙動)
論文審査委員	(主査) 教授 森島洋太郎 (副査) 教授 足立桂一郎 助教授 佐藤 尚弘 助教授 四方 俊幸

論 文 内 容 の 要 旨

電解質モノマーと疎水性モノマーからなる両親媒性高分子電解質は水溶液中で様々な会合挙動を示す。そして、この会合挙動は、ポリマーの化学構造に大きく依存することが知られている。我々は疎水基の種類、その含量と会合挙動との関係に注目した。また化学構造以外に、サンプルの調製法も会合挙動に大きな影響を及ぼすと考えられる。なぜなら、凍結乾燥によって得られた固体のポリマーは絡み合いを有していると考えられ、この状態で水溶液中で疎水基会合が起こると、たとえ分子内会合性が強いポリマーであっても、分子間会合体が形成されると考えられるからである。本研究では電解質モノマーとして強酸である AMPS を、また疎水性モノマーとして鎖長の異なるヘキシル、ドデシル、オクタデシル基を有するメタクリルアミド誘導体のランダム共重合体を合成した。この学位論文における研究の主な目的は、サンプルの調製法を確立することと、疎水基の鎖長と会合挙動との関係を明らかにすることである。また、オレイル基を有するポリマーについても研究を行ない、オクタデシル基で得られた結果と比較し、疎水基中の二重結合が会合挙動に及ぼす影響について検討した。

蛍光法、GPC、光散乱法、NMR の緩和時間測定、キャピラリー電気泳動等の手法を用いてキャラクターゼーションを行なった結果、サンプルの調製法については、まず固体のポリマーを純水中で90度以上で加熱し、その後に必要であれば塩を添加するという過程が、もっともポリマー鎖間の絡み合いを解消することがわかった。これは90度以上で加熱することによって疎水性相互作用を減少させ、また塩を最初に加えなかったのは、絡み合いの解消に電解質モノマー間の反発を利用するためである。また異なる疎水基を有する4種類のポリマーはいずれも強い分子内会合性を有しており、ある疎水基コンテンツでポリマー鎖の二次構造の折りたたみが起こり、形と大きさの整った三次構造体、ユニマーミセルが形成される。また、疎水基のコンテンツが非常に低い領域と、反対に非常に高い領域において分子間会合体が形成するが、この両者は性質が異なり、前者は分子内会合体と分子間会合体が混在したものであるが、後者はすべてのポリマーが分子間会合体を形成していた。また、ヘキシルポリマーは他の2種類のポリマーと比べ疎水基会合がより高コンテンツで起こり始めることがわかった。これは、ヘキシル基は疎水性会合に対してあまり効果的でないことを示す。一方、ドデシル基とオクタデシル基の間にはあまり差が見られなかった。また、オレイルポリマー中の二重結合は疎水性ドメイン内でクラスターを形成し、このために鎖長が同じオクタデシルポリマーとは異なる会合挙動を示した。

論文審査の結果の要旨

山本君は鎖長の異なる一連のアルキル基を側鎖結合したメタクリルアミドをモノマーとする両親媒性高分子電解質共重合体を合成し、高分子内疎水基会合性とアルキル鎖長の関係を系統的に明らかにするとともに、光散乱、蛍光、NMR、電気泳動などからの知見を総合して、優先的な分子内自己会合により、単一高分子ミセルが形成される構造要因と処理条件を確立した。この成果は高分子機能研究に大きく寄与するものであり、本論文は博士（理学）の学位論文として十分価値あるものと認める。