

分子内水素結合を有さない温度応答性ポリアクリルアミド水溶液の分子動力学シミュレーション

(北大院総合化学¹・北大工学研究院²) ○王慧敏^{1,2}・佐藤信一郎²

Molecular dynamics simulation of temperature-responsive aqueous polyacrylamide solutions without intramolecular hydrogen bonds

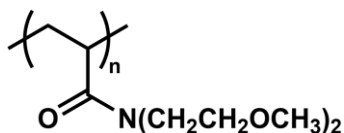
(¹Graduate School of Chemical Sciences and Engineering, Hokkaido University,² Faculty of Engineering, Hokkaido University) ○Huimin WANG¹, Shin-ichiro SATO^{1,2}

Poly(*N*-isopropylacrylamide) (PNIPAm), a typical thermoresponsive polymer, shows a sharp coil-globule type structural transition near the LCST, which is thought to be caused by an intramolecular hydrogen bond between NH and CO groups. Kakuchi et al. at Changchun Univ. of Science and Technology synthesized Poly (*N,N*-bis(2-methoxyethyl)acrylamide) (PMOEAm) and Poly (*N,N*-bis(2-ethoxyethyl)acrylamide) (PEOEAm), which are unable to form intramolecular hydrogen bonds, and experimentally found that they exhibit LCST. The LCST of PMOEAm and PEOEAm decreased with increasing degree of polymerization. For the same degree of polymerization, PMOEAm had a lower response temperature than PEOEAm. In order to systematically investigate the dependence of the coil-globule conformational transition on degree of polymerization and side chain end groups, we performed molecular dynamics simulations.

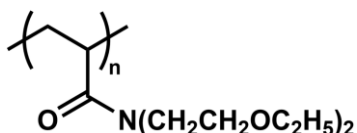
Keywords : Molecular dynamics simulation, PMOEAm, PEOEAm, PNIPAm, Temperature-responsive polymers

典型的な温度応答性高分子である poly(*N*-isopropylacrylamide)(PNIPAm)は、LCST 付近でシャープなコイル-グロビュール構造転移を示すが、この構造転移には NH と CO 間の分子内水素結合が関与していると考えられている。長春理工大の覚知らは、分子内水素結合を形成できない Poly (*N,N*-bis(2-methoxyethyl)acrylamide)(PMOEAm)および Poly(*N,N*-bis(2-ethoxyethyl)acrylamide)(PEOEAm)を合成し、LCST を示すことを実験的に見出した。PMOEAm と PEOEAm は重合度の増加とともに LCST が低下した。重合度が同じ場合、PMOEAm の方が PEOEAm よりも応答温度よりも低くなった。コイル-グロビュール構造転移と重合度、側鎖末端基の依存性を系統的に調べるために分子動力学シミュレーションをおこなった。 R_g 分布の計算結果から、LCST の側鎖末端基依存性や分子量依存性が再現でき、温度が上昇とともに、ほとんどの分子構造がコイル状態からグロビュール状態に変化することがわかった。温度が上がると側鎖メチル基の水和強度が低下し、分子が親水性から疎水性に変化することもわかった。

(a) PMOEAm



(b) PEOEAm



(c) PNIPAm

