

専攻		学籍番号		指導教官氏名
申請者氏名	太田 初 一			

論 文 要 旨

論文題目	Retention Mechanism of Fullerenes Separation in Liquid Chromatography with Alkyl Bonded Stationary Phases. (アルキル鎖化学結合型固定相を用いた液体クロマトグラフィにおけるフラレン分離の保持メカニズム)
------	--

(要旨 和文 1,200字程度)

(1)

5	液体クロマトグラフィ (LC) は化学のみならず、医、
	薬、生化学など様々な分野において広く用いられている。
	LCでは固定相による溶質保持の差により混合物から個
	々の成分を分離することができる。しかしながら、溶質
	の保持をコントロールする機構、特に溶質の保持に関す
	る固定相の寄与については詳細な説明は未だ十分なされ
	ていない。そこで一般的な固定相であるオクタデシルシ
	リカ (ODS) などのアルキル鎖化学結合型固定相を用
10	いたLCでの保持機構に対して、バルキーな形状を有す
	るフラレン類と平面的な形状を有する多環芳香族炭化
	水素 (PAH) を溶質に用いて解析を試みた。
	液体クロマトグラフィにおける温度効果については、
	多くの報告があり、一般的には、温度の低下とともに溶
	質の保持は、増加するとされている。ところが、我々は
15	ODSを使用したフラレンの分離において異常な温度
	効果のあることを見い出した。n-ヘキサンを移動相と
	して使用し、カラム温度を変化させてフラレンの保持
	を測定すると、ある温度で保持が最大となり、平面的な
	溶質の保持が、温度低下に対して単調に増加する傾向を
20	有するのとは異なる傾向が存在することがわかった。こ
	の原因を解析するため、被覆率やアルキル鎖長の異なる
22	固定相を用いたフラレンのLCでの保持の温度に対する

変化を測定することとした。固体 N M R スペクトル法を用いて O D S とその他のアルキル鎖化学結合型固定相のスペクトルの温度変化も測定した。その結果を基に、溶質保持をコントロールする機構について考察した。固体 N M R での 3 0 p p m 付近のオクタデシル鎖の中ほどの - C H ₂ (メチレン) による信号に着目すると、このスペクトルの温度変化がよりよく解析できる。フラーレンの保持が最大になる温度と固体 N M R でのスピンスピン緩和時間の最小になる温度が、種々のアルキル鎖化学結合型固定相で非常によく一致し、温度変化によるアルキル鎖のコンフォメーション変化がフラーレン類の保持の変化に大きく寄与していることがわかった。

本論文の構成は以下の通りである。第 1 章では、本研究を行うに至った背景および目的を述べる。第 2 章から 4 章では、種々の O D S 固定相、特にポリメリック O D S 固定相の有する分子形状認識能に着目してフラーレン類の分離を行った結果を述べる。第 5 章ではメトキシフエニルプロピル固定相を用いてフラーレンの分離を行い、O D S 固定相とは異なった分子形状認識能について述べる。第 6 章から 8 章では種々のアルキル鎖化学結合型固定相を用いてフラーレン類の分離における温度効果を調べた。この結果を固定相アルキル鎖結合相の温度変化に対する固体 N M R スペクトル変化を調べた結果と合せ検討し、アルキル鎖化学結合型固定相を用いた L C におけるフラーレン類の保持をコントロールする機構についての考察を行った。最後に 9 章では本論文の結論を述べる。