

様式 8

論文内容要旨

報告番号	甲先第 441 号	氏名	渡邊 一也
学位論文題目	高分子量アクリルアミド系共重合体の高磁場勾配DOSY測定及び排水処理効果の検証		

内容要旨

[2-(acryloyloxy)ethyl]trimethylammonium chloride (AETAC)とacrylamide (AAm)の共重合体 (AETAC-*co*-AAm) は、製紙産業、鉱業でのミネラル濃縮/回収、排水処理などの様々な産業用途で重要である。AETAC-*co*-AAmは高分子電解質であるため、非電解質のpolyacrylamideよりも優れた凝集効果を示す。近年、排水の有機物や再生原料の比率が増加していることから排水処理が困難になっているため、従来品に代わり分岐型や2種類以上の混合品が開発されている。しかし、高分子凝集剤のキャラクタリゼーションが十分に行われていないため、分子構造が排水処理の性能に及ぼす影響は明らかとは言えない。

Diffusion-ordered two-dimensional NMR spectroscopy (DOSY)は、パルス磁場勾配 (PFG) を利用した一種の二次元NMRである。混合物のNMRスペクトルを、それぞれの化学種の自己拡散係数 (D) の大小に従って分離できる。DOSYは、ホスト-ゲスト化学における標準的な研究手法として既に定着しており、合成高分子の分野でもDOSYの有用性が広く認識されるようになってきた。多分散ポリマーのDOSYによる平均分子量と分子量分布の測定に関する研究も進んでいる。また、高分子分野におけるDOSYの応用に関する総説が発表されている。それにも関わらず、分子量が100万を超える高分子電解質であるAETAC-*co*-AAmの場合、 D は $10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ 以下と小さく、かつ、高分子鎖の分子運動性が制限され、 ^1H の共鳴線はブロードニングするため、DOSY測定は容易ではない。

本学位論文では、AETAC-*co*-AAmのキャラクタリゼーションに向けたDOSY技術の可能性を明らかにした。これまであまり研究されてこなかった高分子凝集剤のキャラクタリゼーションにより、高分子凝集剤の分子構造と排水処理効果の関係を考察した。

第1章 序論では、排水処理の概要ならびに排水処理における高分子凝集剤の役割を述べ、DOSYの測定原理ならびに研究の進展状況を概観した。

第2章では、インバース型拡散プローブ Diff BBI (最大PFG強度 1,800 G/cm) を装着したBruker Avance NEO400型NMR装置を用いて、 M_w 130万のpolyacrylamideおよび M_w 190万から390万のAETAC-*co*-AAmの高磁場勾配DOSY測定を重水および0.1または1 M NaClの重水溶液中で行った。DOSY-CONTIN法によって得られた二次元スペクトルの D 軸への投影曲線には、それぞれAETACおよびAAm由来のピークが観測された。それぞれの極大点における D (D_p) は、動的光散乱 (DLS) -CONTIN法によって決定された値と良く一致した。

第3、4章では、食品工場の汚泥ならびに紙・パルプ工場のパルプスラリーを対象に直鎖状AETAC-*co*-AAmならびに N, N' -methylenebisacrylamide (MBA) を共重合させた分岐型AETAC-*co*-AAmの排水処理効果を評価した。食品工場の汚

二次元スペクトルのD軸への投影曲線には、それぞれAETACおよびAAm由来のピークが観測された。それぞれの極大点におけるD (D_p) は、動的光散乱 (DLS) -CONTIN法によって決定された値と良く一致した。

第3、4章では、直鎖状AETAC-*co*-AAmならびに*N,N'*-methylenebisacrylamide (MBA) を共重合させた分岐型AETAC-*co*-AAmの排水処理効果を評価した。食品工場の汚泥ならびに紙パルプ工場のパルプスラリーに対して、分岐型AETAC-*co*-AAmが良好な排水処理効果を示した。

第5章では、DOSYによるキャラクタリゼーションにより、第3、4章で実施した排水処理効果の要因解析を行った。DOSYデータから抽出した主鎖近傍の1D NMRスペクトルが減少したこと、0 M NaClと1 M NaClのDがほとんど同じであったことから、分岐型AETAC-*co*-AAmは架橋構造を有し、その分子鎖が剛直であることが示唆された。

以上のように、本研究は実用上重要な排水処理用高分子凝集剤の水溶液中における分子構造と溶液物性について、パルス磁場勾配核磁気共鳴分光法の新しい測定法であるDOSY法を主とするアプローチによって基礎・応用の両面から意欲的に取り組んだ成果を含む学術的価値があることから、本論文は博士（工学）の学位授与に値するものと判定する。