

論文内容要旨

報告番号	甲 先 第 457 号	氏 名	上池 亮太
学位論文題目	NMRスペクトルの多変量解析によるコポリマーブレンドの構造解析		
<p>内容要旨</p> <p>高分子材料の多くは数種類のモノマーから合成されるコポリマーであり、これらは目的の物性に応じてブレンドして使用されることがある。そのコポリマーブレンドの物性は構成コポリマーの組成などの分子構造だけでなく、そのブレンド比率にも依存する。コポリマーの組成やブレンド比率などのブレンドパラメータを定量的に解析することは物性向上のために重要となる。</p> <p>コポリマーブレンドの分析法として最初に候補に挙げられる手法は、サイズ排除クロマトグラフィーやグラジエントポリマー溶出クロマトグラフィーなどの分離分析である。これらの分析法は高分子特性解析の非常に有力なツールの1つであるが、コポリマーブレンドに適用する場合には構成コポリマーの分子量や溶解度といった化学的性質がある程度異なっていることが要求される。化学的性質に大きな差がない場合や、広い分布がある場合には、従来の分析手法を用いてコポリマーブレンドの構造解析を行うことには限界があり、新たな分析手法を確立することが必須である。</p> <p>核磁気共鳴 (NMR) は高分子構造解析の有力なツールとして知られている。申請者らの研究グループはこれまで、合成高分子の NMR スペクトルを多変量解析すると従来の解析法では得ることのできない情報が抽出できることを報告してきた。例えば、アクリル系ポリマーについて、ホモポリマー、コポリマーおよびホモポリマーブレンドの ^{13}C NMR スペクトルに多変量解析を適用すれば、個々のシグナルを帰属しなくても組成やモノマー連鎖に関する情報を抽出することに成功した。また、共重合体の組成を精度よく推定できることも見出した。さらに、^{13}C NMR スペクトルよりもスペクトル幅の狭い ^1H NMR スペクトルを用いても同様の解析が可能であることもわかってきている。</p> <p>そこで本研究では、NMR スペクトルの多変量解析がコポリマーの構造解析だけでなく、コポリマーブレンドの構造解析にも適用できるかを明らかにすることを目的とした。</p> <p>第2章では、本研究で用いた NMR の測定条件、NMR スペクトルを多変量解析する手順を示した。</p> <p>第3章では、アクリロニトリル、スチレンおよび α-メチルスチレンのうちの2種類のモノマーからなる2元コポリマーを2種類ブレンドしたバイナリーブレンドの ^1H NMR スペクトルに多変量解析を適用することでブレンドパラメータを良好な精度で推定できることを明らかにした。</p> <p>第4章では、上記2元コポリマーを3種類ブレンドしたターナリーブレンドへの解析範囲の拡張を行った。バイナリーブレンドをトレーニングデータセットとして用いることで、ターナリーブレンドのブレンドパラメータが推定できることを明らかにした。</p>			

第5章では、多元コポリマーへの拡張性を確認するために、アクリロニトリル、スチレンおよび α -メチルスチレンからなる3元コポリマーを含んだターナリーブレンドでの検討を行った。 ^1H NMRでは定量的な分析が困難であったが、より詳細な構造情報が得られる ^{13}C NMRを用いれば達成できることを見出した。このときトレーニングデータセットとしてコポリマーブレンドの実測のスペクトルが必ずしも必要ではないこともわかった。

第6章では、本研究を総括するとともにNMRスペクトルの多変量解析の今後の展望について述べた。

高分子材料は性能の向上や新しい機能の付与にともなって分子構造や配合設計が多様化し、さらに複雑になることが予想される。今回検討した多変量解析をはじめとした統計的な手法をNMRや質量スペクトルなどの様々な構造解析法と組み合わせることで、複雑化する構造と物性の相関を把握することが可能になり、本研究がその一助になるものと考えている。