

Gamma Radiation Induced Functional Hydrogels for Selective Adsorption of Metal Ions

ムハマド ムシド ブヤン

<https://hdl.handle.net/2324/1959099>

出版情報 : Kyushu University, 2018, 博士 (工学) , 課程博士
バージョン :
権利関係 :

博士論文の要約

論文提出者 ムハマド ムシド ブヤン (Md Murshed Bhuyan)

論文題名 Gamma Radiation Induced Functional Hydrogels for Selective Adsorption of Metal Ions
(金属イオンの選択的吸着のためのガンマ線照射による機能性ヒドロゲル)

本研究において、多くの植物から容易に得られ非毒性・生分解性の天然素材ペクチンを主成分とし、 ^{60}Co ガンマ線照射により様々な官能基をグラフト接合した新たな有機ヒドロゲルの作製、多元素水溶液 (Li^+ , Be^{2+} , Na^+ , Mg^{2+} , Al^{3+} , K^+ , Ca^{2+} , V^{2+} , Cr^{3+} , Mn^{2+} , Fe^{2+} , Co^{2+} , Ni^{2+} , Cu^{2+} , Zn^{2+} , Ga^{3+} , Rb^+ , Sr^{2+} , Mo^{3+} , Ag^+ , Cd^{2+} , In^{3+} , Cs^+ , Ba^{2+} , Tl^+ , Pb^{2+} , Bi^{3+})からの各イオンの同時吸着観測により、複数イオンによる吸着競合が存在する状況下での実用に即した吸着能を初めて明らかにした。

まず著者は、比較的単純な構造を持ち電離度が小さい官能基 [アクリル酸 (AAc)、アクリルアミド (AAM)、*N,N*-ジメチルアクリルアミド (DMAA)] をグラフト接合した3種類のペクチンヒドロゲルを作製し、多元素吸着実験を行った結果、ペクチンゲルに接合された官能基の電離度が高いほどイオン吸着能が高くなる [AAc-ペクチンゲル > AAm-ペクチンゲル > DMAA-ペクチンゲル] 事を観測したが、それと同時に、各ヒドロゲルにおいては、27種のイオンについて価数によらずフラットな吸着特性を示す事も明らかにしている。この事は、静電相互作用とともに他の相互作用も無視できない影響を吸着に与える事を明らかにした。

次に著者は、強く負に帯電する官能基を用いるとともに、主鎖である糖鎖の影響を避け官能基の機能が効果的に発揮される様に側鎖を長鎖化・構造化する目的で、アクリルアミド-2-アクリルアミド-2-メチル-1-プロパンスルホン酸と AAm とを連結した長鎖分子を主鎖にグラフト接合したペクチンヒドロゲルを新たに作製し、多元素同時吸着実験を行った結果、イオン吸着能は、①同一価数のイオンの比較では同程度、②価数の異なるイオン間では、イオン価数の増加とともに累進的に吸着能が上昇し、特に3価のイオン、 Al^{3+} 、 Ga^{3+} 、 Fe^{3+} 、 Cr^{3+} 、 In^{3+} では他に比べ顕著な吸着能を示す事を明らかにした。これらの結果は、強く電離した末端基に起因する静電相互作用が吸着選択の主要因であることを示唆するが、同時に著者は、2 kGy のガンマ線照射線量で作製されたヒドロゲルが、より高い照射線量 (5, 10, 20, 30 kGy) で作製されたものより2倍以上の高い吸着能を示すことも観察し、ヒドロゲルの構造が吸着能に影響を及ぼす事も明らかにした。

更に著者は、より高い選択性を期待し、強く正に帯電する側鎖末端の周囲に塩素イオンが近接する (3-アクリルアミドプロピル) トリメチルアンモニウムクロライド (APTAC) と AAc とを連結した長鎖分子を主鎖にグラフト接合したペクチンヒドロゲルを作製し、多元素同時吸着実験を行った結果、ペクチン-AAc-APTAC ヒドロゲルが、銀イオンに対し他の26イオンと比べて5倍以上の高い選択的吸着能を示す事を見出した。この高い選択性について著者は、トリメチルアンモニウム末端基によって捕捉された塩素陰イオンと溶液中の他イオンに比べ高い標準電極電位 ($\sim 0.8\text{ V}$) を有する銀イオンとの強い相互作用に起因すると考察した。

加えて著者は、多元素同時吸着実験で最低吸着能を示した DMAA-ペクチンヒドロゲルのドラッグデリバリー担体としての適用可能性について初めて調査し、模擬胃液 (pH=1.2)、模擬腸液 (pH=6.8) 中で90wt%以上の5-フルオロウラシル (抗癌剤) が放出可能である事を明らかにした。