

氏名(本籍)	さいとうひろゆき 齋藤寛之(東京都)
学位の種類	博士(工学)
学位記番号	博甲第3144号
学位授与年月日	平成15年3月25日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
審査研究科	工学研究科
学位論文題目	絹フィブロインの非晶質-結晶相転移に関する構造研究
主査	筑波大学教授 理学博士 大嶋 建一
副査	筑波大学教授 理学博士 浅野 肇
副査	筑波大学教授 理学博士 植 寛素
副査	筑波大学講師 工学博士 松石 清人

論文の内容の要旨

絹に関する研究は物理学・化学・生物学的に様々な側面から行われているが、その最も興味ある問題は動物の体内で作られる液状の絹(非晶質)がどのようにして個体の絹(結晶)になるのかという問題である。紡績の過程が単純に外部応力によって決定するのではないことは、化学繊維の生成と比較したその吐糸のスピードの遅さや繊維に導入される微細構造からも明白であるが、依然として決定的な構造モデルは構築されていない。

本研究では絹フィブロインの多様な構造、特に多岐にわたる応用の期待される再生フィブロインの非晶質・結晶構造相転移を中心に、転移前後の構造の特定及び相転移のカイネティクスを明らかにすることを目的としている。また、その手法として、X線回折による動径分布関数の導出と必要なソフトウェアを開発後の計算機シミュレーションとの比較を行った。

実験ではPhilips社製粉末二軸回折計X'Pert Pro, CuのX線源及び半導体アレ検出器X'Celeratorを用いて、広角X線強度プロファイルを測定した。また、試料の温度条件を変化させる実験を行うために、Anton Paar社製高温装置HTK16を用いた。

これらの結果、室温における作製直後の再生フィブロインフィルムはシルクIシート構造を基本とするアモルファス構造であり、また再生フィブロインフィルムを無水で焼く200℃まで昇温、または約50℃で加水し生成される構造はシルクII結晶相およびシルクII微結晶から成るアモルファス構造であることが判った。さらに、時分割X線回折測定を行い、差分動径分布関数(DFRDF)の時間発展を観察することで、加水時の構造変化のカイネティクスモデルの構築を試みた。そのDRDFの時間発展はシルクIの規則化と、規則化したシルクIシートからシルクIIシートへの構造変化が説明できた。

次に、再生フィブロインの加水による結晶化を吐糸の際の分子論的な繊維化機構のモデルとして考察し、過去の報告との比較を行った。吐糸は大きく分けて2つの過程で実現され、絹糸腺前部での β 型の核の生成と、圧糸部での機械的索引による変形で説明されていた。本研究での結果から吐糸の過程で存在が予想されていた β 型の核の存在をX線回折により、直接観察することにしたが、更に議論するにはシルクIの構造の安定性を考慮し、さらなる研究が必要であることが判った。

審査の結果の要旨

本研究では軽元素を主体とする高分子の構造決定及びその変化のカイネティクスを理解する上で、X線回折測定によるDRDFの導出が有効であることが判明した。そのため、絹フィブロインの結晶化の過程がシルクⅠからシルクⅡ構造変化とシルクⅡアモルファスの結晶化によって説明できたことは高く評価できる。従来、生物学的視野に立った研究が主であったが、物理学的側面からの研究により、相補的な視野に立つ学問領域が開かれたことは今後のこの種の研究の指針となるものである。

よって、著者は博士（工学）の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。