

氏名(本籍)	ふじ た た ろう 藤 田 太 郎 (千葉県)		
学位の種類	博 士 (工 学)		
学位記番号	博 甲 第 3933 号		
学位授与年月日	平成 18 年 3 月 24 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	数理解物質科学研究科		
学位論文題目	スクロース結晶の結晶-非結晶相転移のカイネティクス		
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	竹 森 直
副査	筑波大学助教授	理学博士	野 口 巧
副査	筑波大学講師	博士(理学)	高 橋 美和子

論 文 の 内 容 の 要 旨

スクロースは α -グルコースの基と β -フルクトースの基が角度 90° でグリコシド結合した構造をとる二糖類の有機物である。これを主成分とする砂糖の利用は食品にとどまらず、古くから医薬品、保存剤としても用いられてきた。近年では酵素や微生物、光触媒技術との関係を用いて環境志向の電池材料等の研究開発も行われ、注目を集めている物質である。スクロースは純度が高いのにも関わらず、基本的な物性量の融点の報告値は $160\text{-}180^\circ\text{C}$ と大きな幅で存在する。その理由について、これまでは含水量や微量不純物、製法などの原因が上げられているが、明快な解は報告されていない。

最近、時分割に優れた検出器や高温試料台を容易に利用できるX線回折装置により、融解に関する微視的解明が可能になってきた。従って、本研究では未だに融点が定まっていないスクロース結晶の結晶-非結晶相転移のカイネティクスを明らかにするために、粉末結晶及び単結晶を用いた高温時分割X線回折実験を行った。

本実験では結晶から非結晶への相転移に必要な経過時間（ここでは潜伏時間と呼ぶ）を測定するために、融点近傍（ $152\text{-}175^\circ\text{C}$ ）のある定まった温度までに急速加熱し、その温度で回折強度の時間変化を測定した。この際、潜伏時間は回折強度が半減する時間 t_h 、面間隔が増大する時間 t_d およびバックグラウンドが増大する時間 t_d から求めた。また、粉末回折図形の標準的解析法となっているリートベルト法を用いて格子定数、結晶パラメーターを求め、原子間距離の評価を行った。

その結果、以下の実験事実が得られた。まず、3つの潜伏時間は誤差の範囲で一致した。さらに、設定温度の関数で整理すると、 152°C から 160°C の温度範囲で潜伏時間は減少するが、 160°C を越えると増加することが判った。これは温度 T と時間 t のC曲線として表現できる。一方、 170°C 以上では非晶質状態ではなく、カラメル化が急速に進行し、融解すると思われる。同様に、単結晶を用いた測定では潜伏時間の極小を示す温度が異なるもののC曲線は観測された。

粉末X線構造解析から以下の結果が得られた。時間の経過と共に、単位胞の中の6員環と5員環との結合が弱くなり、さらに6員環の形状が変形する。しかし、転移温度附近まで5員環の形状は存在する。

さらに、本研究ではスクロース結晶の結晶-非結晶相転移のカイネティクスを無機材料の場合と比較検討し、微視的な観点で考察した。

審査の結果の要旨

本研究では最も一般的な物質の一つであるスクロース結晶の非晶質化の潜伏時間と保持温度の関係が152℃から170℃にかけて単調減少ではなく、160℃附近に潜伏時間の極小を持つことを始めて見出した。また、X線構造解析の結果から分子間結合の変化の様子を明らかにしたことは特質できる。そして、スクロース結晶の結晶-非結晶相転移の微視的理解、さらには融解に関する考察が可能になったことは今後のこの種の研究に多いに役に立つ。

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。