

論文審査の結果の要旨

氏名 吉野 徹

本論文は5章からなる。第1章はイントロダクション、第2章は表面律速条件でのカルサイト溶解過程の観察、第3章は Mixed kinetics 条件でのカルサイト溶解過程の観察、第4章は表面律速条件でのカルサイト結晶成長過程の観察、第5章は結論について述べられている。

第1章はイントロダクションであり、過去の研究をレビューすることで本論文の学問的位置づけを明確にし、本研究の目的、意義について述べている。

第2章では表面律速条件でのカルサイトの溶解過程に及ぼすアスパラギン酸 (Asp) の影響について述べられている。著者はメニスカスタイプの測定セルを用いることで、表面律速条件での原子間力顕微鏡 (AFM) によるその場観察を可能とした。さらに、AFM 観察特有のドリフト効果を補正する新たな解析手法の開発及び ex-situ での走査型共焦点レーザー顕微鏡観察を行うことにより、従来の手法に比べ、より確度の高いステップ速度測定及びエッチピットの形態測定を実現している。これらの測定結果を TLK モデルに基づき考察することで、カルサイトの表面において Asp が作用し易いサイトを特定することに成功している。また、カルサイトの溶解素過程の内、水和過程もしくは表面拡散過程に対する Asp の促進効果を明らかにしている。

第3章では Mixed kinetics 条件でのカルサイトの溶解過程に及ぼす Asp の影響について述べられている。容積の大きいガラスシャーレ型の測定セルを用いることで、Mixed kinetics 条件での AFM によるその場観察を可能とした。第2章の結果と併せて考察することで、Asp はカルサイトの溶解素過程のうち、輸送過程を促進する効果があることを明らかにしている。

第4章では表面律速条件でカルサイトが結晶成長する際に及ぼす Asp の影響について述べられている。従来は考慮されていなかった様々な溶存種も考慮し平衡計算を行うことで、Asp-CaCO₃系におけるカルサイトの飽和度の算出方法を確立した。それにより、カルサイトのステップ速度の過飽和度依存性に及ぼす Asp の影響を AFM によるその場観察から求めることに成功し、Asp は kink-site をブロックすることでステップの進行を阻害すること (Kink-blocking 効果) を明らかにしている。また、併せて行われた飛行時間型二次イオン質量分析から、層成長において Asp はカルサイトの結晶内部へは取り込まれにくいと結論付けている。

第5章では第2章、第3章、第4章から得られた新たな知見をまとめるとともに、本論文が今後のバイオミネラリゼーション研究に及ぼす波及効果について述べている。

なお、本論文の第2章、第3章、第4章のそれぞれ一部は、鍵裕之教授との共著論文として、第2章、第3章の一部は神谷奈津美博士、粉川良平氏、鍵裕之教授との共著論文として既に出版されているが、いずれも論文提出者が主体となって実施したものであり、論文提出者の寄与が十分であると判断できる。

本研究は、アスパラギン酸がカルサイト結晶の溶解ならびに成長にもたらす影響について、結晶表面の微細な形状変化を丹念に調べることで、より深い理解を与えることに寄与した。研究成果のオリジナリティを審査委員会一同で高く評価した。

したがって、博士（理学）の学位を授与できると認める。