

審査の結果の要旨

論文提出者氏名

井上 修平

本論文は「FT-ICR による金属・炭素クラスターの生成と反応」と題し、金属内包フラーレンや単層カーボンナノチューブ(SWNT)の生成機構を解明すべく、これらが生成する反応の初期段階に生成される金属・炭素混合クラスターの構造や金属触媒クラスターの素反応に注目し、FT-ICR 質量分析装置を用いて研究したものであり、論文は全6章よりなっている。

第1章は、「序論」であり、本研究と関連して、フラーレンとナノチューブの発見、これらの新素材に期待されている工学的応用例などを述べるとともに、従来の生成メカニズムに関する研究をレビューし、本論文の研究目的について述べている。

第2章は、「実験装置・原理」であり、本研究で用いたレーザー蒸発・クラスター生成装置と FT-ICR 質量分析装置の概要や計測システム全体についての説明、及び信号検出の原理について詳細に述べている。

第3章は、「金属内包フラーレン」であり、フラーレンの内部に金属原子を含む金属内包フラーレンの生成前駆体である金属・炭素クラスターをレーザー蒸発クラスター生成装置で生成し、その質量分析及び一酸化窒素との化学反応を観察することに成功している。特に負イオンクラスターの実験では従来では困難であった高質量領域でのクラスターの反応についての知見を得ており、負イオン炭素クラスターがその生成初期段階からケージ構造を取ることを初めて実験的に示している。また、従来では単離することが困難なため、金属が内包しているか否かについて議論が別れていた比較的小さなサイズの金属・炭素混合クラスターについて、金属が内包していることを実験的に明らかとしている。

第4章は、「SWNTs 前駆体クラスター」であり、アーク放電法やレーザーオープン法と呼ばれる単層カーボンナノチューブ(SWNT)生成方法で用いられる金属含有炭素材料をレーザー蒸発させたときに生成するクラスターを観察し、SWNT 生成メカニズムに迫っている。

この結果、SWNT 生成時の触媒金属は炭素のケージ構造に内包されず、ケージの外に存在することにより触媒作用を持つということが明らかとしている。また、触媒金属の種類により生成されるクラスターの大きさが異なることを示し、クラスター直径がその触媒金属を用いた時にできる SWNT の直径におおよそ等しいということを述べている。以上より、SWNT に成長する前段階の前駆体クラスターを議論し、SWNT 成長モデルの一つである“フラーレンキャップモデル”を支持する実験的な知見を得ている。

第 5 章は「金属クラスター」であり、アルコールを炭素原料ガスとする触媒 CVD 法による SWNT 生成の初期触媒反応に注目し、一般に触媒として広く利用されている鉄、コバルト、ニッケルなどの遷移金属クラスターとエタノールとの反応実験を行っている。コバルトクラスターについては、エタノールの吸着と水素原子の脱離などの詳細な反応プロセスを明らかとするとともに、反応速度や水素原子解離傾向のクラスターサイズ依存性について明らかとしている。さらに、鉄クラスターに対する反応は単純な吸着であり、ニッケルクラスターとの反応では水素原子が 4 つ脱離し、コバルトクラスターでは、単純吸着領域と脱水素領域がクラスターサイズに依存して混在することを明らかとしている。

第 6 章は「結論」であり、上記の研究結果をまとめたものである。

以上要するに、本論文は FT-ICR 質量分析装置を用いたクラスターの研究によって、ナノテク新素材と期待されている金属内包フラーレンや単層カーボンナノチューブの生成機構に対して重要な知見を与えており、分子熱工学の発展に寄与するものと考えられる。よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。