

審査の結果の要旨

氏 名 澁 田 靖

本論文は「単層カーボンナノチューブ生成初期過程の分子動力学」と題し、ナノテクノロジーの中心素材として注目を集めている単層カーボンナノチューブの生成機構に関して、特に実験的観察が困難な生成初期過程の分子動力学法を用いた解明を試みたものであり、論文は全5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、単層カーボンナノチューブ発見の経緯、合成方法、応用などについて述べるとともに、これまでに提案されている単層カーボンナノチューブの生成モデルを系統的に整理している。また、炭素と遷移金属を含む分子シミュレーションに関して、計算手法、ポテンシャル関数などをレビューし、本論文の研究目的について述べている。

第2章は、「分子動力学法の概要とポテンシャル関数の構築」であり、本研究で用いた分子動力学法シミュレーションの概要と実際に計算で用いた既存のポテンシャル関数、温度制御法について述べている。さらに、炭素とさまざまな触媒金属の相互作用を検討するための手段を提案するため、密度汎関数法による小型クラスターの量子化学計算から得られた一連のエネルギー値を一般化 Tersoff 型関数にフィッティングすることによって新たなポテンシャル関数を構築している。

第3章は、「単層カーボンナノチューブ生成初期過程の分子動力学法シミュレーション」であり、上記の計算手法を用いることによって、レーザーオープン法と触媒CVD法それぞれの生成初期過程のシミュレーションを行い、計算結果から両過程の違いについて検討している。この結果、レーザーオープン法では、数個の金属をもつランダムケージ状クラスターが生成され、これらの衝突によってナノチューブ状物質に成長する一方、触媒CVD法では、金属炭素混合クラスターから、炭素が飽和、析出する過程でナノチューブのキャップ構造が生成されるとの結果を得ている。

また計算結果と相図や実験結果と比較することにより、新たな触媒 CVD 過程の単層カ

ーボンナノチューブ生成モデルについて検討している。この結果、触媒CVD過程では、クラスター内で飽和したグラファイト構造は、ランダムに析出するのではなく、特定の結晶構造の隙間から連続的に析出し、さらに適度な結晶を囲むように円筒状に析出したグラファイト構造が、先端を閉じてキャップ構造を形成し、その後も炭素が連続的に供給されることによって、キャップ構造が徐々に持ち上げられ、単層カーボンナノチューブへと成長するとのモデルを提案している。

第4章は、「遷移金属クラスターと炭素の相互作用に関する分子動力学法シミュレーション」であり、第2章で構築したポテンシャル関数により触媒金属と炭素の混合クラスターからの炭素の析出過程の分子動力学法シミュレーションを行い、触媒金属の違いが単層カーボンナノチューブ生成に与える影響について検討している。各金属が炭素をグラファイト化する能力の違いから、触媒能の違いについて議論しているが、実際に動力学的に孤立炭素が触媒金属の作用によってグラファイト化していく過程の再現に成功した例はなく、非常に有益な知見が得られている。さらに構築したポテンシャル関数を用いてカーバイド結晶構造を再現することでポテンシャル関数の一般性を検証を行っている。

第5章は「結論」であり、上記の研究結果をまとめたものである。

以上を要するに、本論文は分子動力学法を用いて単層カーボンナノチューブ生成初期過程についてシミュレーションを行い、その結果に基づき、新たな単層カーボンナノチューブ生成モデルを提案したものであり、ナノスケールの核生成に関する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。