

氏名(本籍)	きたむらなおかず 北村直和(東京都)
学位の種類	博士(理学)
学位記番号	博甲第2566号
学位授与年月日	平成13年3月23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	物理学研究科
学位論文題目	Theoretical Study for Microscopic Mechanisms of Carbon Nanotube Growth (カーボンナノチューブ成長のミクロスコピックメカニズムについての理論的研究)
主査	筑波大学教授 理学博士 押山 淳
副査	筑波大学教授 理学博士 高田 慧
副査	筑波大学教授 理学博士 中尾 憲 司
副査	筑波大学助教授 理学博士 平島 大

論文の内容の要旨

炭素原子は人類に馴染み深い原子であり周囲の原子と3配位ないし4配位の結合を作る。それに対応して、グラファイトとダイヤモンドの2つの形態が古くから知られていた。しかし1985年に籠状の分子である C_{60} (フラーレン)、1991年にその固体相、さらに同年のナノチューブの発見によって、今まで考えられなかった形態の炭素物質が存在することが明らかとなった。これらの新炭素物質は、その原子構造のミクロな違いにより、物性が大きく変化することが大きな特徴である。例えばナノチューブは、グラファイトをストロー状に丸めた形態をしているが、その丸める方向とチューブの半径に依存して、半導体から導体まで様々な電子物性を示すことが理論的に予言され、最近の走査型トンネル顕微鏡実験で確認されている。こうした興味深い諸性質のため、この10年世界中で多くの研究が行われてきた。しかしながら、なぜこのような特異な形態の物質が生成されるのかは未だ明らかではない。

本論文の目的は、計算物理学の手法によるミクロスコピックな理論計算により、炭素ナノチューブの成長機構を原子スケールで明らかにすることである。理論手法としては、量子力学の第一原理に立脚した密度汎関数法が用いられている。これは、電子同士の相互作用を量子論的効果である、交換相互作用および相関相互作用のレベルまで考慮することができる理論手法であり、実験の物質の構造的性質、安定性を精度よく求めることが可能である。本論文では密度汎関数法の局所密度近似が使われており、その精度についても詳しい議論がなされている。またより簡便な手法として、タイト・バインディング模型も併用されている。

物質の成長機構を議論するためには、様々な物質形態のエネルギー的安定性(エナージェティクス)と、成長過程における飛来原子の吸着および拡散機構の解明が不可欠である。本論文においても、この2つの側面が議論されている。まずエナージェティクスの側面では、様々な構造、半径、炭素原子数の有限長ナノチューブの全エネルギーがタイト・バインディング模型によって計算されている。その結果、ある特徴的なチューブ端の形態(アームチェア型とよんでいる)をもつものが、最もエネルギー的に安定であることがわかった。また計算結果から、チューブのエナージェティクスは、グラファイトを丸めたことによる歪エネルギーとチューブ端での電子的エネルギーの競合によって決定されることを見出した。

さらに本論文では、アームチェア型ナノチューブに着目し、第2の側面、すなわち飛来炭素原子の吸着と拡散の機構が密度汎関数法によって調べられている。ナノチューブの端に飛来原子が1個、2個、3個と近づいた場

合の安定吸着位置とそこでの吸着エネルギー, さらに端を経巡る拡散の経路と対応する拡散障壁エネルギーが, 詳しくかつ定量的に計算されている。ナノチューブ成長のためには炭素原子でできた6員環が次々と形成される必要があるが, その形成反応の過程が原子スケールで明らかになっている。また細いチューブでは6員環の代わりに5員環が形成される傾向があり, その場合にはチューブが閉じて成長が止まる可能性が高いことも見出した。更に飛来原子がナノチューブの壁面に吸着し, その炭素原子が壁面を伝わって端まで拡散し, 6員環を形成する反応経路も明らかにした。反応障壁エネルギーの定量的計算より, ナノチューブ成長は, 飛来原子がチューブの壁面に吸着・拡散し, チューブ端に取り込まれる過程が最も重要であると結論している。

審 査 の 結 果 の 要 旨

本研究は, 新物質として重要なカーボンナノチューブの成長機構を, 密度汎関数法に立脚した第一原理計算によって初めて明らかにしたものである。成長減少そのものは, 成長条件に依存した複雑現象であるが, その素過程を量子力学に基づいたアプローチにより解明したことは, 物理学, 材料科学の分野での大きな学術的貢献と認められる。また世界的に見ても萌芽的かつ独創的な研究といえる。

本研究で得られた成長素過程での反応経路, 反応障壁エネルギーの詳細な結果は, カーボンナノチューブ成長実験に対して極めて重要な情報をもたらしている。特にチューブ壁面を反応舞台とした素過程の重要性の指摘は初めてのものであり, 実験的研究に大きなインパクトを与えるものと期待される。また成長素過程での原子スケールの反応が, 炭素原子固有の結合形態とナノチューブの構造特異性に深く関係していることを見出したことは物性物理学の立場からも意義深い。さらに量子力学の第一原理に立脚した計算により, 成長現象という複雑現象の微視的側面を明らかにしたことは, 量子物理学の適用範囲を広げたという意味でも重要である。

よって, 著者は博士(理学)の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。