

専攻	材料工学	学籍番号	903738	指導教官氏名	大澤 映二
申請者氏名	吉田 満帆				阿部 英次
					榊原 建樹

論 文 要 旨

論文題目	Application of a Formalized Net Diagram Method to the Studies of Structure, Stability and Electronic States of Fullerenes (展開図法的应用によるフラーレンの構造, 安定性および電子状態の研究)
------	---

(要旨 和文 1,200 字程度)

(1)

本研究の目的は,複雑で,見分けのつきにくい球殻炭素クラスタ“フラーレン”の構造を展開図を用いて平面で表現し,その幾何学的特徴を利用した全異性体の発生,エネルギー計算,電子状態の予測,フラーレン生成機構解明を行なうことである. 5, 6員環のみからなる球形のフラーレンに加えて,7または 8員環を持つ螺旋状チューブやスポンジ状グラファイトを,活性炭やカーボンブラックなどの炭素材料のミクロな構造のモデルとして提案し,その電子状態や超芳香族性についても議論した.

サッカーボール分子 C_{60} に代表されるフラーレンは, sp^2 炭素原子による五および六員環で構成されている. 本研究ではまず,フラーレンの幾何学的特徴—三価の頂点が構成する五角形と六角形からなる閉じた多面体と等価であること—を利用して,その構造を平面に展開した. ここでは,各々の五・六員環の替わりに,12個の五員環を頂点とみる仮想的な多面体(20面体)を展開図の構成要素として扱った. フラーレン構造は,この仮想的な20面体を構成する20枚の三角形で展開される. それらは,10枚の三角形からなる帯と,その上下に5つつ並ぶキャップと呼ばれる三角形とに分割される. このように展開方法を定めることによって,コンピュータを利用した展開図の自動発生(異性体発生,3章)が可能となるだけでなく,pyracylene 変換や C_2 付加といった炭素骨格が組み変わる

反応の追跡(4章)が可能である。本論文では、 C_2 付加反応が、フラーレン成長モデルとして重要であることを明らかにした(4章)。さらに C_{84} の 24 種類の IPR 異性体(五員環が縮合していない構造)から、一段階の pyracylene 変換によって作られる非 IPR 異性体の安定性についても議論し、IPR が必ずしも安定異性体の条件ではないことを見出した(5章)。

第 6 章では、五員環の配置の違いがどのようにフラーレンの安定性に寄与するかを調べるために、新しい幾何学的な概念「フェイゾンライン」を導入した。フェイゾンラインの長さや分岐点の数によって、これまで点群対称性でしか分類されなかったフラーレン構造は、より詳細に分類された。さらに、フェイゾンラインが分子の安定性と大きく関わっていることを利用して、これまであまり議論されなかった C_{100} 以上の構造の安定性を予測した。 C_{100} までの構造では、 σ 骨格の歪みが大きく安定性に関与しているが、 C_{100} 以降では π 電子のエネルギーが、支配的となることが明らかとなった。

炭素材料のモデルとして提案する構造は、入れ子構造を持つハイパーフラーレン(2章)、5,6,7員環を持つフラーレンドーナツおよび螺旋構造(7,9章)、空間的に広がったグラファイトスポンジ(7,8章)の3種類である。後二者のように負の曲率を持った構造が、展開図法と多面体パッキングの組合せで表現されることについて述べ、それらの電子状態と超芳香族性についても議論した。