

氏 名 ARIFIN, Rizal

主論文審査の要旨

本論文は、グラフェンの生成初期において金属触媒表面で起こる炭素源分子の反応過程および、金属表面上でのグラフェンの形成条件等について、第一原理的手法に基づく計算機シミュレーションを用いて詳細に検討している。各章の内容は以下の通りである。

序論として、第 1 章では本論文の背景と目的が述べられている。

第一原理分子動力学法の基礎理論と計算法の詳細については第 2 章で説明される。

第 3 章ではニッケル(111)表面におけるメタン (CH_4) 分子の解離過程について議論されている。動的なシミュレーションの結果から CH_4 分子が金属表面上で C 原子と 4 つの H 原子に解離する機構が解明される。C 原子は表面に留まらずにニッケル基盤内部に拡散していく様子が見出されている。また、解離現象に対しては有限温度の影響が重要であることが示され、従来の静的な理論計算からは知られていない知見が得られている。

第 4 章ではニッケル(111)表面におけるエチレン (C_2H_4) 分子の解離過程が議論されている。動的なシミュレーションにおいて C_2H_4 分子から金属表面上で H 原子が解離する様子が再現される。重要な知見のひとつは、C-H 結合の解離反応が進んでも C-C 結合の解離は起こらないということである。つまり、エチレンを炭素源分子として用いた場合は C_2 分子からグラフェンが生成されることが示唆される。C 原子と異なり C_2 分子は基盤内部に拡散することは無く表面に留まり炭素鎖を形成することが示される。

第 5 章ではニッケル(111)表面におけるグラフェンの生成過程が議論されている。第 3 章で明らかになったように炭素源分子としてメタンを用いた場合、解離反応で生じた C 原子は基盤内部に拡散する。多数の C 原子を予め表面直下の基盤内部に配置して動的シミュレーションを実行し、C 原子から炭素鎖が形成される様子と表面に析出する機構が解析されている。更に、表面に析出した炭素鎖からグラフェンが形成される機構に対する温度や表面被覆率の影響が調べられ、金属表面上でのグラフェン形成条件等が論じられる。

第 6 章には本論文のまとめと今後の展望が記されている。

本研究では、メタンおよびエチレンがニッケル表面上で解離する微視的機構を活性化自由エネルギーの観点から系統的、俯瞰的に解析することにより解明しており、学術的に重要な基礎研究である。更に、金属表面上でグラフェンが効率良く形成される条件等を第一原理的に提案しており今後の展開が期待される。これらの研究成果は査読付き論文 4 編 (筆頭著者論文 1 編) として発表されている。よって、本審査委員会は、本論文が博士(学術)の学位を授与すべき十分な内容を有するものと判断した。

最終試験の結果の要旨

審査委員会は学位論文提出者に対して、本論文の内容及び専門分野についての口頭試験を行った。その結果、論文提出者は当該研究分野について十分な知識、理解力、研究遂行

能力を備えていることを認めた。論文提出者は筆頭著者での論文公表など物理科学講座における学位審査基準を満たしている。外国語については、英文による論文作成及び国際学会における口頭発表実績などから、十分な英語能力があると認められる。以上の結果に基づき、最終試験は合格と判定した。また、学位論文の公表方法については、第 3 章と第 5 章に未公表結果を含んでおり、それらについて投稿(準備)中であるため、学位論文のインターネット公表は要約のみとすることとした。

審査委員 理学専攻物理科学講座 教授 下條 冬樹

審査委員 理学専攻物理科学講座 教授 安仁屋 勝

審査委員 理学専攻物理科学講座 教授 細川 伸也

審査委員 理学専攻物理科学講座 教授 市川 聡夫

審査委員 複合新領域科学専攻複合新領域科学講座 教授 吉朝 朗