

フラーレン生成のシミュレーション

東京大学大学院 工学系研究科 機械工学専攻

山口 康隆, 丸山 茂夫

中空のフラーレン生成モデル　これまで、フラーレン構造の形成過程に関して、ペンタゴンロード、フラーレンロード、リングスタッキングなどといった様々なモデルが提案されてきた。しかしこれらのモデルはいずれも一部の実験結果を説明しうるものの、どのモデルが現実的であるかの判断は容易でない。

著者らはフラーレン構造形成過程追求の一方法として分子動力学法によるシミュレーションを試みてきた^(1,2)。これまでに、孤立炭素原子状態からのクラスタリングにより、特定の温度、密度条件下において C_{60} 、 C_{70} などのケージ構造が形成されることをシミュレートし、更にこれらを単独でアニールすることにより、IPR (Isolated Pentagon Rule) を満たす完全なフラーレン構造を得ることに成功した⁽²⁾。また、これらのケージ構造に至る前段階のクラスターについても同様のアニールを行い、各サイズでのクラスターの安定性を分析し、Fig. 1 示すフラーレン生成機構の新しいモデルを提案した。アーク放電、レーザー照射などにより一旦原子状態にまで分解されたクラスターは、 C_{10} 程度までは鎖状、 C_{10} から C_{20} 程度までは環状構造をとりながら成長する。その後、 C_{30} 程度までは平面的構造が大半となるが、少しずつ三次元的な構造が増えてゆき、およそ C_{30} を境に今度は三次元的な構造が平面的なものを凌駕し、不完全ケージ的な三次元構造を好むようになる。ここで、このサイズでの構造の選択がその後の流れを大きく変える。すなわち、系の温度が低い場合には、次の衝突までに三次元的な形状へ移行するためのエネルギー障壁を越えられないため、平面的なまま順次成長してしまい、最終的にグラファイトとなって

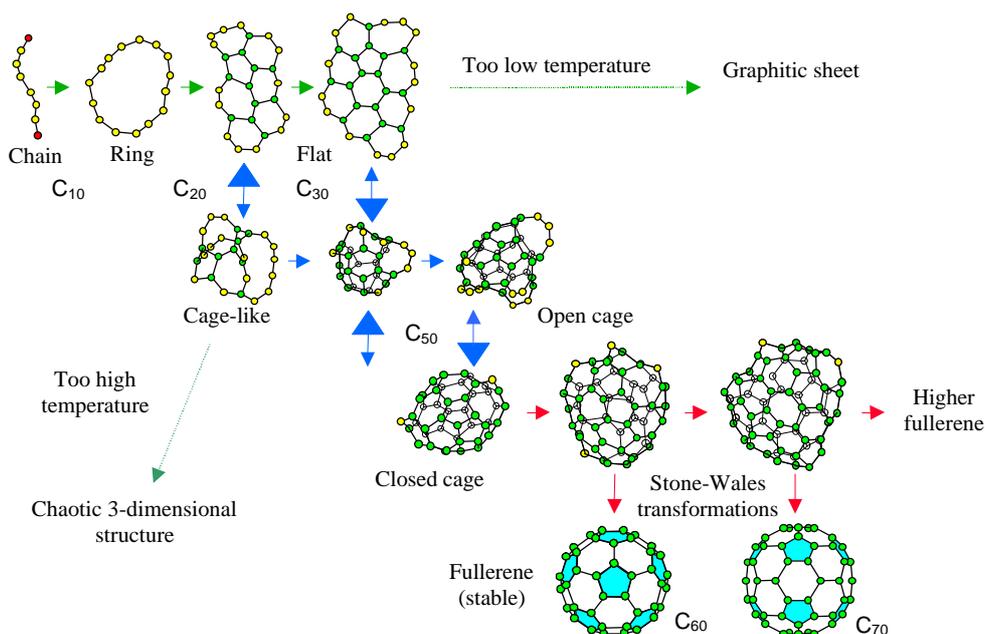


Fig. 1 Present fullerene formation model

しまう⁽¹⁾。逆に温度が高い場合には三次元的で、よりランダムな形状になり、その後もこれを解きほぐすことが困難となる⁽¹⁾。この中間の適当な温度条件でのみ三次元的なランダム形状から不完全なケージ構造へと変換されるが、 C_{50} 程度の大きさまでは原子数が足りないため殻を閉じることができず大穴が残ることになる。ここに更に小さなクラスターが加わり、アニールしながらほぼ閉じたケージ構造に成長する。この際、ちょうど C_{60} となると初めて IPR を満たすフラレーン構造をとりうる。十分にアニリングが可能な温度で比較的小さなクラスターの付加反応が頻繁に起こると考えると、ほとんどのクラスターが C_{60} まで成長し、ここでフラレーン構造にアニールすることで、それ以上の付加反応を拒否する。ちょうど C_{60} とならなかった場合には更に反応が進み、次に IPR を満たす C_{70} まで成長し、これも失敗すると高次フラレーンとなる。

金属内包フラレーン生成のシミュレーション フラレーン類の中でも最も興味深いものの一つとして金属内包フラレーンが挙げられるが、現状では中空のフラレーンと異なり生成効率が極めて低い。このため、実験用としても十分なサンプルを得るのが困難な状況にあり、生成効率向上の実現無くしてはその応用は考え難いものである。これら金属内包フラレーンについても生成機構を吟味することにより、生成の最適条件に関して極めて有用な知見が得られると推察される。現在、これまでと同様の分子動力学シミュレーションを行い、金属内包フラレーンの生成機構を模索している。Fig. 2 は初期条件として 200 個の孤立炭素原子と 5 個の金属原子を一辺 252 Å の立方体のセルに配置し、制御温度 $T_c = 3000$ K で計算を行った系での代表的なクラスターの成長過程を示したものである。ここではシミュレーションの第一歩として、金属 - 炭素、金属 - 金属間に単純に等方的な二体ポテンシャルを仮定しているが、金属原子を中心にケージ構造が成長していく様子が伺える。

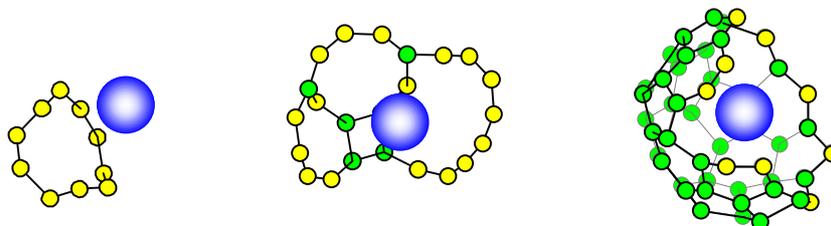


Fig. 2 Growing process of a metallo-fullerene

参考文献 (1) 山口・丸山, “フラレーン生成過程の分子動力学 (第 1 報, ケージ構造の形成と制御温度),” 機論, vol. 63, No. 611B (1997), 印刷中. (2) 丸山・山口, “フラレーン生成過程の分子動力学 (第 2 報, 完全な C_{60} へのアニーリング),” 機論, vol. 63, No. 611B (1997), 印刷中.

連絡先

〒113 東京都文京区本郷 7-3-1 東京大学大学院 工学系研究科 機械工学専攻 丸山茂夫
TEL: 03-3812-2111 (内線 6421) FAX: 03-5800-6983 E-Mail: maruyama@photon.t.u-tokyo.ac.jp