

グラフェン/水界面相互作用に関する理論解析

○石元孝佳¹、古山通久^{1,2}

¹九州大学稲盛フロンティア研究センター

²九州大学カーボンニュートラル・エネルギー国際研究所
(〒819-0395 福岡市西区元岡 744)

【緒言】

熱エネルギー輸送特性の向上を目指し、nm オーダーで濡れ性を制御する研究が盛んに行われている。近年グラフェン表面では水の濡れ性がナノスケールで変化するという実験結果が報告されている[1]。このようにナノスケールで初めて発現する界面特有の濡れ性は界面での電子物性変化に由来するため、電子状態理論に立脚したアプローチが不可欠である。一方、水のナノ液滴に着目すると、水の沸点・融点はバルク状態に比べて著しく低下する[2]。つまりナノスケールでの水の濡れ性にはバルクとは異なり界面近傍での水の不均一な水素結合ネットワークが強く影響していることを示唆している。しかしながら、原子スケールでのグラフェンと水の界面での電子状態と相互作用構造や、ナノ液滴の水素結合構造など十分に理解されたとは言い難く、より詳細な現象理解が電子状態による濡れ性制御という新たなナノ界面技術の実現を可能にする。そこで本研究では、グラフェンモデル構造と水の相互作用構造や電子状態変化について量子化学計算を用いて解析した。

【方法】

本研究では、グラフェンのモデル化合物として C_6H_6 、 $C_{24}H_{12}$ 、 $C_{54}H_{18}$ 、 $C_{96}H_{24}$ を取り上げ、これら多環芳香族化合物と水界面における相互作用の詳細を解析した。水同位体の影響を取り扱うためにプロトンの量子効果を顕に考慮した多成分分子軌道(MC_MO)法を GAMESS プログラムに実装し使用した。電子の基底関数には 6-31G**、プロトンの基底関数には [1s]GTF を用いて MP2 および DFT レベルでの MC_MO 計算を実行した。

【結果】

多環芳香族化合物の水の界面モデルとして図 1 には $C_{24}H_{12}$ に対する水の安定構造を示す。水分子は片方の水素が π 共役部分と相互作用した構造を取っていた。次に水の重水素置換体 (HDO、 D_2O) と $C_{24}H_{12}$ との相互作用エネルギーを解析した(表 1)。全ての系で安定構造に違いが見られなかったが、相互作用エネルギーは H_2O より D_2O の方が小さくなった。また HDO 分子については異方性が確認できた。相互作用の詳細な解析や水のナノクラスターに関する計算結果については当日報告する。

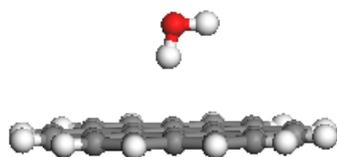


Fig.1 Optimized structure of $C_{24}H_{12}$ and H_2O complex.

Table 1. Interaction energy (kcal/mol) between $C_{24}H_{12}$ and H_2O

water	interaction energy
H_2O	-3.68
HDO	-3.68
DHO	-3.65
D_2O	-3.65

【謝辞】

九州大学稲盛フロンティア研究センターの研究活動は京セラ(株)の支援により行われた。また本研究の一部は科研費(25709012)の助成により行われた。関係各位に感謝する。

【参考文献】

- [1] J. Rafiee, X. Mi, H. Gullapalli, A. V. Thomas, F. Yavari, Y. Shi, P. M. Ajayan, and N. A. Koratkar, *Nat. Mat.*, **11**, 217 (2012).
[2] A. Endo, T. Yamamoto, Y. Inagi, K. Iwakabe, and T. Ohmori, *J. Phys. Chem. C*, **112**, 9034 (2008).