

## 界面不均一水素結合構造に関する理論解析

○石元孝佳<sup>1</sup>、古山通久<sup>1,2</sup><sup>1</sup>九州大学稲盛フロンティア研究センター(〒819-0395 福岡市西区元岡 744)<sup>2</sup>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おり、例えばグラフェン表面では水の濡れ性が nm スケールで変化するという研究成果が報告されている[1]。このような nm で初めて発現する界面特有の濡れ性は界面近傍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、沸点・融点がバルク状態とは大きく異なっており[2]、ナノスケールの水物性には不均一な水素結合ネットワークが強く影響を及ぼしていると考えられる。本研究では様々な水のモデル構造とグラフェンと水からなる界面モデル構造を作成し、水の水素結合構造と熱伝達に関連する水の振動数について密度汎関数理論(DFT)を用いて解析した。

## 【方法】

本研究では、水分子に加え、液体、固体のモデルとして(H<sub>2</sub>O)<sub>33</sub>、(H<sub>2</sub>O)<sub>8</sub>を取り上げた。また水のナノ液滴モデルとして水 44、182 分子からなる粒径約 1.4、2.4 nm のモデルを作成した。グラフェン-水界面構造モデルとして 2.5、3.5 nm<sup>2</sup>のグラフェン上に粒径約 1.2、2.4 nm の水のナノ液滴を配置したモデル構造を作成した(図 1)。計算には DFT に基づく VASP を使用し、交換相関汎関数には GGA-PBE を用い、カットオフエネルギーは 400eV とした。

## 【結果】

はじめにモデル全体の構造最適化計算を行った。水素結合構造については固体よりも液体やナノ液滴モデルのほうが O-H および O··H 結合長に大きなばらつきが見られ、特にナノ液滴モデルの表面付近に位置する水素結合長は液体モデルの場合に比べて短くなる傾向が見られた。またナノ液滴モデルでは表面近傍の水分子が負の電荷を持つ傾向が示唆された。続いて得られた安定構造を用いて各水分子に対する振動数の計算を行った。水素結合構造同様に例えば図 2 に示すように液体モデルやナノ液滴モデルでは水の変角振動において大きなばらつきが見られた。水の均一、不均一構造と振動数の関係性やグラフェン-水界面近傍の詳細な解析については当日報告する。

## 【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。本研究は科研費(25709012)の助成により行われた。また本研究は九州大学情報基盤開発研究センターの高性能演算サーバ(CX400)を用いて行われた。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).

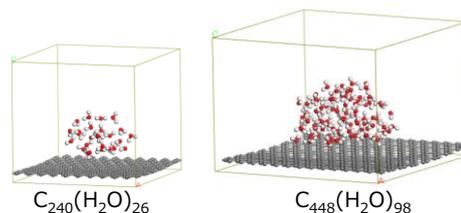


図 1. 本研究で取り上げた界面モデル構造

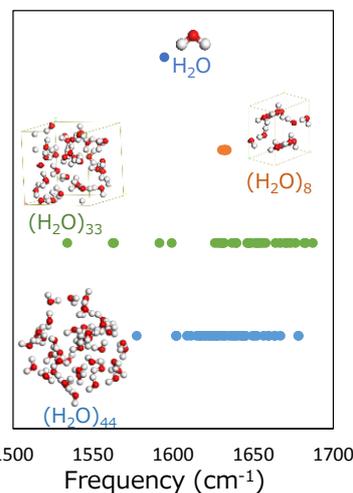


図 2. 各モデルにおける水の変角振動数の分布