

氏名	濱田 嘉信
授与した学位	博士
専攻分野の名称	理学
学位授与番号	博甲第3895号
学位授与の日付	平成21年 3月25日
学位授与の要件	自然科学研究科 機能分子化学専攻 (学位規則第5条第1項該当)
学位論文の題目	Effects of the pore size, dimensionality, and wall-particle interaction on confined fluids (細孔サイズ、形状、壁-粒子間相互作用の細孔内流体に対する効果)
論文審査委員	准教授 甲賀 研一郎 教授 田中 秀樹 教授 石田 祐之

### 学位論文内容の要旨

本論文は、細孔内に閉じ込められた流体の挙動について、細孔の物理的、化学的性質による挙動の変化を対象とした理論研究に関する報告である。

第一章では、細孔内における流体の挙動と、細孔の形状、サイズとの相関を探ることを目的とした。細孔壁表面の化学的性質である壁-粒子間相互作用は、引力のない剛体相互作用を用いた。準一次元系と準二次元系の様々なサイズの細孔内の流体と、バルク相における密度、圧力を含む熱力学的性質を、シミュレーションを用いて計算し、それらを比較することで形状、サイズと挙動の相関を調べた。平衡状態のバルク相と細孔内の熱力学的性質を結びつけることで、バルク相の変化に対する細孔内の挙動について調べた。また一様ポテンシャルを加えることにより、平行同士のバルク相と細孔内の熱力学的性質の関係がどのようにどのように変化するかを調べた。

第二章では、壁-粒子間相互作用の細孔内流体に対する効果を調べることを目的とした。壁-粒子間相互作用には吸着のある現実的なポテンシャルを用いた。準一次元細孔の壁-粒子間ポテンシャルには、単層カーボンナノチューブと多層カーボンナノチューブを想定した壁-粒子間相互作用、準二次元系には、LJ9-3ポテンシャルと10-4-3ポテンシャルを用いて、第一章の剛体壁における計算と同様の計算を行い、壁-粒子間相互作用による細孔内流体の挙動の変化について調べた。また一様ポテンシャルを加えることによって、さらに細孔内の挙動について調査した。

## 論文審査結果の要旨

濱田氏の研究は、分子シミュレーションの一手法である大正準モンテカルロ法(Grand canonical Monte Carlo method)によって、円筒状細孔およびスリット状細孔内部における流体の相挙動を調べたものである。細孔内流体の平衡物性の理解は、細孔内化学反応、表面間の接着、レオロジー、吸着、摩擦などの研究の発展に欠かすことのできない重要課題である。

細孔内流体の平衡状態を決定する因子には、温度・圧力等の熱力学変数に加え、細孔の形状、大きさ、細孔表面の構造・化学的性質なども含まれる。現実には、細孔サイズおよび構造が完全に均一な細孔は存在せず、サンプルに依存する複雑な因子が加わる。したがって、多くの実験結果が報告されているにも拘らず、細孔内流体の相挙動について基礎的知見または統一的理解が進んでいるとはいいがたい。濱田氏はこの問題に分子シミュレーションを用いて取り組み、カーボンナノチューブおよびスリット状細孔に関して、平衡にあるバルクの温度、圧力、および細孔サイズの3因子の関数としてアルゴン等の単純液体の相挙動を調べ、多くの基礎的知見を得ることに成功している。特に、バルクの圧力と細孔内流体の圧力(テンソル)との相関を明らかにし、細孔内で固液および気液相変化の起こる条件(温度・圧力)のバルク系からの解離を定量的に評価した点、および連続的相変化の生じる条件を決定した点は高く評価できる。得られた結果には普遍性があり、今後の実験に対して示唆に富むものである。論文発表会における発表および質疑応答も学位取得に十分な内容であった。

以上のことを考慮して最終試験の結果を合とした。