

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 31 日現在

機関番号：13501

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2010～2012

課題番号：22760058

研究課題名（和文）曲面型ナノ構造物性における幾何曲率効果の機構解明と物性推算コード開発

研究課題名（英文）Geometry-property relation in curved nanomaterials

研究代表者

島 弘幸（SHIMA HIROYUKI）

山梨大学・大学院医学工学総合研究部・准教授

研究者番号：40312392

研究成果の概要(和文):本研究課題では、曲面型ナノ構造が普遍的に示す特異物性の発現機構、および系の曲面形状と特異物性との相関関係について、大規模数値シミュレーションと連続近似理論の併用による理論的解明を試みた。幾何学的な振れや曲がりを伴う曲面型ナノ構造の内部では、系全体の幾何形状が荷電キャリアに有効電磁場作用を供する。よって、形状効果が顕著となる低エネルギー領域では、通常の平面系では実現不可能な特異な秩序相・量子輸送が発現する。このような幾何曲率・振率に起因する異常物性の機構解明と、具体的ナノ材料に即した物性推算シミュレーションを通して、幾何形状変形を利用した新規機能性ナノ材料のデザインおよび材料合成に適する物質群の探査を行った。

研究成果の概要（英文）: This project aimed to develop the unified theory describing the geometry-property relationship of curved nanomaterials. Large-scale computations together with continuum approximation have employed to quantify the curvature/torsion effect on the quantum transport and collective excitations in the materials. The results imply the potential utility of the geometry-induced physical phenomena for developing advanced functional materials with curved geometry.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,300,000	390,000	1,690,000
2011年度	800,000	240,000	1,040,000
2012年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
総計	2,800,000	840,000	3,640,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎、工学基礎

キーワード：ナノカーボン材料、形状物性相関、微分位相幾何、液晶薄膜、発泡体

1. 研究開始当初の背景

微細加工技術の著しい進展にともない、系の幾何的性質とその基本物性が直接リンクする「曲面型ナノ構造体」の合成例が数多く報告されている。系の形状と物性が密接に関連する凝縮体の具体例は、液晶薄膜・超伝導渦

欠陥・生体薄膜・各種ナノカーボン材料など多岐に渡る。このような複雑な形状を示すナノ構造の表面では、平面系とは異なる特異な量子現象・秩序形成の発現が期待される。しかし先行研究の多くは各物質固有の各論的な議論に留まっており、多様な曲面型ナノ構造体を示す普遍的振る舞いを「幾何形状効果」

の観点から横断的に総括する試みは、研究代表者の知る限り前例がない。

2. 研究の目的

上の背景を受けて研究代表者は、多様な曲面型ナノ構造体に広く適用可能な理論手法を独自に開発し、その物性と幾何形状との相関関係を解析することで、曲面系一般に内在する異常物性の発現機構を明らかにするとともに着想を得た。特に本研究課題では、曲面型ナノ構造が普遍的に示す特異量子輸送(電子輸送・熱輸送)と秩序過程(相転移・分子配向)に焦点を絞り、曲面型ナノ物性一般を記述する基礎理論の構築と、具体的物質パラメータに基づく物性推算シミュレーションを行った。本研究の遂行により、各種ナノ構造表面で具現化する幾何形状効果の総括理解と系統分類化が成功すれば、その成果は幾何形状誘起物性を活用した新しい機能性ナノ材料創製の契機となりえる。

3. 研究の方法

(1) 各種炭素ナノ材料の外圧下における弾塑性変形を、分子・原子レベルで高速・高精度にシミュレートするための、大規模数値計算手法を整備した。既に研究代表者が開発した炭素ナノチューブの構造力学計算プログラムを基に、より一般的な計算条件で駆動する計算コードを開発した。特に、チューブ形状以外のナノ構造体の微視的変形過程を扱えるよう現有コードを拡張するとともに、炭素以外のナノ材料を高精度で解析できるように改良を施した。続いて、開発した計算コードをベクトル処理型にコーディングし、並列処理型大型計算機の効率的運用を図った。

(2) 上記で開発した数値計算コードを用いて、外力下における各種ナノ構造体の変形過程を再現し、巨視的な伸び・曲げ・捻りに起因する微視的構造変化(隣接原子間距離の変化)とその変化度合いの空間分布を数値的に調べた。さらに、同様の変形過程を連続媒質近似の範囲で解析的に求めるための数理モデルを考案した。これら一連の作業を通して、各種ナノ構造体の力学変形における微視的物質パラメータと巨視的力学定数の相関関係を定式化するとともに、考案した数理モデルの適用条件・適用範囲を同定した。

(3) 力学的応答に関する前述の数値計算手法と数理モデルを拡張し、曲面型ナノ構造体の量子状態・量子伝導を解析するための理論手法を確立した。連続的近似に基づく申請者の解析結果によれば、変形を加えた低次元ナノ構造体内部の量子コヒーレント状態は、そ

の形状変化に伴う非自明な量子状態変化・電気伝導率変化を示す。そこで、この理論予測の妥当性と近似の適用限界を定量的に明らかにする事を目的として、同様の量子系を扱うための大規模計算手法を確立し、その計算データを申請者らの理論予測と比較・検討した。

4. 研究成果

(1) 曲面型ナノ構造において観測される(もしくは観測が期待される)特異物性の発現機構、および系の曲面形状と特異物性との相関関係について、大規模数値シミュレーションによる物性推算と理論構築を行った。その結果、幾何学的な振れや曲がりに伴う曲面型ナノ構造の内部では、系全体の幾何形状が荷電キャリアに有効電磁場作用を供し、通常の平坦系とは異なる秩序相・量子輸送が発現することが明らかとなった。具体的には、周期凹凸円筒構造を有するナノカーボン材料(フラーレンポリマー)の相関電子基底状態において、系の朝永 Luttinger 指数が凹凸振幅の増加とともに顕著に増加することがわかった。また、振れ原子(分子)構造で構成される振れ量子リングに対しては、振率誘起電磁場効果による特異な量子位相干渉効果が起こることを示した。

(2) 曲面形状を示す各種のソフトマテリアル(曲面液晶薄膜・曲面発泡体等)について、その秩序過程・分子配向に対する幾何形状効果の解析を行った。力学的な柔らかさを備えた液晶薄膜については、薄膜の弾塑性変形と分子配向秩序との相関を考察するための基礎理論を整備し、有機分子の自己集合体である分子性薄膜の配向秩序機構を詳細に解析した。その結果、液晶膜内に分布する渦欠陥の安定配置が、曲面曲率の恣意的分布により外的に操作可能であることを明らかにした。さらに発泡体の曲面上粗大化過程については、曲面曲率の時間変化により気泡の動的安定性を制御できることを理論的に示した。

(3) 曲面量子系の具体例である直鎖型フラーレン重合体の光励起キャリア緩和過程を理論的に解析した。特に同材料の低温秩序相におけるキャリア緩和ダイナミクスを記述する新規理論の確立を図った。従前のボトルネック理論に関して、横波フォノンモードの寄与を取り入れて理論を再構築した結果、異なるモード間のエネルギー散逸量の増加に伴い、緩和時間の温度依存性が転移温度直下で発散する「発散型」から「非発散型」へと変化することがわかった。また、従来のキャリア緩和理論で導出されていた衝突積分を正しく評価することにより、緩和時間の単調増

大現象が再現されることが明らかになった。ギャップ形成物質一般に対して成立する理論的枠組みを得たところで、この理論を前述の直鎖型 C60 ポリマーに適用し、キャリア緩和データの数値的再現を試みた。その結果、縦波モードから横波モードへのエネルギー散逸を考慮することにより、実験結果が定量的に再現されることが確かめられた。

(4)直鎖型フラーレン重合体の電荷密度波転移を考察した。その結果、転移の発現機構が、系の電子物性およびフォノン物性に作用する幾何形状効果で理解できることを初めて明らかにした。具体的には、同材料を一次元凹凸ナノチューブの束状凝縮系とみなし、凹凸チューブの電子-フォノン相互作用ハミルトニアンを構築した。次に一次元系に特有のフォノンソフト化現象を議論し、Peierls 転移温度の定義を与えた。最後に、系を構成する凹凸ナノチューブの幾何形状パラメータや弾性パラメータを適切に設定し、実験的に報告されている転移温度の値と一致することを示した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 38 件)

- ① H. Shima, Y. Umeno and M. Sato, Molecular dynamics study of radial corrugation in carbon nanotubes, *Mech. Adv. Mater. Str.* (2013) in press
<http://www.tandfonline.com/loi/umcm20#.UZA7Oco7jbo>
- ② S. Ono, H. Shima and Y. Toda, Theory of photoexcited carrier relaxation across the energy gap of phase-ordered materials, *Phys. Rev. B* 86, 104512 (2012)
doi: 10.1103/PhysRevB.86.104512
- ③ H. Shima, How far can Tarzan jump?, *Eur. J. Phys.* 33, pp.1687-1693 (2012)
doi:10.1088/0143-0807/33/6/1687
- ④ H. Shima, Persistent current in quantum torus knots, *Phys. Rev. B* 86, 035415 (2012)
doi: 10.1103/PhysRevB.86.035415
- ⑤ J. Onoe, T. Ito, H. Shima, H. Yoshioka and S. Kimura, Observation of Riemannian geometric effects on electronic states, *EPL (Europhys. Lett.)* 98, 27001 (2012)
doi:10.1209/0295-5075/98/27001
- ⑥ H. Shima, Buckling of Carbon Nanotubes: A State of the Art Review, *Materials* 5, pp.47-84 (2012)
doi:10.3390/ma5010047
- ⑦ J. Onoe, A. Takashima, S. Ono, H. Shima and T. Nishii, Anomalous enhancement in the infrared phonon intensity of one-dimensional uneven peanut-shaped C60 polymer, *J. Phys.: Condens. Mat.* 24, 175405 (2012)
doi: 10.1088/0953-8984/24/17/175405
- ⑧ M. Sato, M. A. Wadee, K. Iiboshi, T. Sekizawa and H. Shima, Buckling patterns of complete spherical shells filled with an elastic medium under external pressure, *Int. J. Mech. Sci.* 59, pp.22-30 (2012)
doi: 10.1016/j.ijmecsci.2012.02.001
- ⑨ H. Shima, S. Ghosh, M. Arroyo, K. Iiboshi and M. Sato, Thin-shell theory based analysis of radially pressurized multiwall carbon nanotubes, *Comp. Mater. Sci.* 52, pp.90-94 (2012)
doi: 10.1016/j.commatsci.2011.04.005
- ⑩ H. Shima and H. Yoshioka, Electronic spectral shift of oxygen-filled (6,6) carbon nanotubes, *Chem. Phys. Lett.* 513, pp.224-228 (2011)
doi: 10.1016/j.cplett.2011.07.084
- ⑪ S. Ono and H. Shima, Flexible control of the Peierls transition in metallic C60 polymers, *EPL (Europhys. Lett.)* 96, 27011 (2011)
doi:10.1209/0295-5075/96/27011
- ⑫ H. Yoshioka and H. Shima, Density of states anomalies in multichannel quantum wires, *Phys. Rev. B* 84, 075443 (2011)
doi: 10.1103/PhysRevB.84.075443
- ⑬ S. Ono and H. Shima, Phonon dispersion and electron-phonon interaction in peanut-shaped fullerene polymers, *J. Phys. Soc. Jpn.* 80, 064704 (2011)
doi: 10.1143/JPSJ.80.064704
- ⑭ H. Shima, M. Sato, K. Iiboshi, S. Ghosh and M. Arroyo, Diverse corrugation pattern in radially shrinking carbon nanotubes, *Phys. Rev. B* 82, 085401 (2010)
doi: 10.1103/PhysRevB.82.085401
- ⑮ Hasegawa and H. Shima, Point-defect haloing in curved nematic films, *J. Phys. Soc. Jpn.* 79, 074607 (2010)
doi: 10.1143/JPSJ.79.074607
- ⑯ H. Shima, Growth of aqueous foam on flexible membranes, *J. Phys. Soc. Jpn.* 79, 074601 (2010)
doi: 10.1143/JPSJ.79.074601
- ⑰ H. Shima, S. Ono and H. Yoshioka, Manipulating the Tomonaga-Luttinger exponent by electric field modulation, *Eur. Phys. J. B* 71, pp.481-488 (2010)
doi: 10.1140/epjb/e2010-10698-2
- ⑱ H. Taira and H. Shima, Anomalous phase shift in a twisted quantum loop, *J. Phys. A: Math. Theor.* 43, 354013 (2010)
doi: 10.1088/1751-8113/43/35/354013
- ⑲ H. Taira and H. Shima, Flux-free

conductance modulation in a helical Aharonov-Bohm interferometer, J. Phys.: Condens. Mat. 22, 245302 (2010)

doi:10.1088/0953-8984/22/24/245302

- ⑳ H. Taira and H. Shima, Torsion-induced persistent current in a twisted quantum ring, J. Phys.: Condens. Mat. 22, 075301 (2010)
doi:10.1088/0953-8984/22/7/075301

[学会発表] (計 26 件)

- ① [招待講演] H. Shima, “Quantum transport in curved nanostructures”, Collaborative Conference on Materials Research, Jeju Island, South Korea (2013/6/25)
- ② [招待講演] H. Shima, “Nanocarbon materials with curved geometry”, 2nd International Congress on Advanced Materials, Zhenjiang, China (2013/5/18)
- ③ [招待講演] H. Shima, “Physics in 2D Curved surfaces - from Quantum and Statistical viewpoints”, CREST - SBM International Conference Random Media II, Sendai, Japan (2012/9/5)
- ④ [招待講演] H. Shima, “Theory of Curved Nanocarbons”, NanoThailand 2012, Pullman Raja Orchid Khon Kaen Hotel, Khon Kaen, Thailand (2012/4/9)
- ⑤ [招待講演] 島 弘幸「幾何-物性相関の理論展開」、ナノ学会ワークショップ: 現代幾何学と表面・ナノ物質科学との新融合領域、東京工業大学 (2012/3/22)
- ⑥ [招待講演] 島 弘幸「微小材料における形状物性相関の理論解析」、土木学会・応用力学フォーラム、北海道大学 (2012/2/8)
- ⑦ [招待講演] 島 弘幸「Dry Foam の粗大化現象: 幾何と物理の邂逅」、愛媛大学理学部 第 61 回数学談話会、愛媛大学 (2011/4/18)
- ⑧ [招待講演] 島 弘幸「泡の物理: 膨張か?収縮か?」奈良女子大学 第 61 回複雑系理論セミナー、奈良女子大学 (2011/4/7)
- ⑨ [招待講演] H. Shima, “High-pressure deformation of Multiwall carbon nanotubes”, International Workshop in Jozef Stefan Institute, The University of Ljubljana, Ljubljana, Slovenia (2010/9/17)

[図書] (計 4 件)

- ① H. Shima, Geometry-property relation in corrugated nanocarbon cylinders, Chapter 6 in Book: “Modeling of Carbon Nanotubes, Graphene and Their Composites” (Springer-Verlag, 2013).

- ② H. Shima, Condensed matter physics on curved geometry, Chapter 1 in Book: “Advances in Science” (Science Network, 2013)

- ③ H. Shima and M. Sato, Elastic and Plastic Deformation of Carbon Nanotubes (Pan Stanford Publishing, 2013)

- ④ H. Shima and T. Nakayama, Higher Mathematics for Physics and Engineering (Springer-Verlag, 2012)

[その他]

- ① 新聞取材: 山梨日日新聞 2012 年 5 月 5 日号「電子、凹凸面に沿って動く」
- ② 雑誌取材: Newton 2012 年 1 月号「身近な泡のサイエンス」
- ③ アウトリーチ活動: 山梨英和高等学校自然科学同好会に対する研究紹介と研究指導、2013 年 3 月

6. 研究組織

(1) 研究代表者

島 弘幸 (SHIMA HIROYUKI)

山梨大学・大学院医学工学総合研究部・准教授

研究者番号: 40312392

(2) 研究分担者 なし

(3) 連携研究者 なし