HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	Theoretical Modeling of Fundamental Chemical Phenomena at Surface and Interface [an abstract of dissertation and a summary of dissertation review]
Author(s)	王, 奔
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(理学)
Dissertation Number	甲第14695号
Issue Date	2021-09-24
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/83126
Rights(URL)	https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/
Type	doctoral thesis
File Information	WANG_Ben_review.pdf, 審査の要旨



Hokkaido University Collection of Scholarly and Academic Papers : HUSCAP

学 位 論 文 審 査 の 要 旨

博士の専攻分野の名称　博士（理学）　氏名　王　奔

審査担当者

主査	教授	長谷川 淳也
副査	教授	武次 徹也
副査	教授	島田 敏宏
副査	准教授	小林 正人

学 位 論 文 題 名

Theoretical Modeling of Fundamental Chemical Phenomena at Surface and Interface
（表面や界面で起こる基礎的な化学現象に関する理論的モデル化）

今や計算化学により表面・界面で分子が起こす挙動を再現することが可能となりつつあり、最新の計算手法を駆使することにより、化学結合、分子振動、触媒反応、光反応を分子レベルで理解し、実験研究にフィードバックすることが可能となってきている。本学位論文は、表面や界面で起こる基礎的な化学現象を対象とし、金属表面に吸着した分子の結合の強度、炭素ドープした窒化ホウ素二次元表面を触媒とする反応機構、酸化チタン表面でのフェノール分子の光反応機構に対し、周期系密度汎関数法による計算化学に基づいた議論を展開している。

第一章は general introduction であり、表面・界面の化学現象を電子レベルで理解することの重要性を説明し、本論文においては有機分子-金属表面・界面の相互作用系における化学結合や化学反応を計算化学的にモデル化していくことを述べている。

第二章は、本論文で用いられている理論的手法を整理し、表面系における平面波手法、自然結合軌道解析、非調和振動分光計算、反応経路自動探索法について簡潔に紹介している。

第三章は，Pt 表面に吸着したアリルイソシアニド分子をモデル系として，金属-分子相互作用によって誘起される化学結合の性質や形成機構に対する有機分子の置換基効果を系統的に解析している。吸着分子における CN 伸縮振動数はハメットパラメータに対して火山型の挙動を示すが、金属表面に吸着すると分子内・分子-表面間で生じる電子移動により挙動が変化する。その機構を振動数計算および周期系に拡張された自然結合軌道解析に基づき議論し、分子と表面の相互作用を明らかにしている。

第四章は，吸着分子における CN 結合の強度に対する金属基板効果を調べている。金および銀表面に吸着させたアリルイソシアニド分子に対し非調和効果を考慮した振動スペクトルを計算して表面効果によるブルーシフトや金属の違いの影響について実験データを再現し、その機構を自然結合軌道解析により明らかにしている。

第五章は、炭素をドープした六方晶窒化ホウ素表面で起こる触媒反応として CO 酸化とエチレンのエポキシ化を取り上げ、炭素ドープが触媒活性に及ぼす効果を調べて絶縁体である h-BN 単層の潜在的な触媒能力を理論的に示すことに成功している。

第六章は、酸化チタン表面に吸着したフェノールの直接光励起による酸化反応を対象に、金属酸化物表面で起こる光化学反応の反応機構の解明を試みている。光照射によりフェノールから表面に電子移動が起こることを確認し、フェノールのカチオンラジカルと酸素分子との反応経路に基づき表面光反応の機構への洞察を深めている。

第七章は、本研究によって得られた知見をまとめ、今後の展望・課題について述べている。表面光反応については更なる理論的な進展が必要であるが、実験と理論計算の連携は今後ますます重要となることは間違いないとの展望が述べられている。

これを要するに、著者は表面・界面で生じる化学現象について最新の計算化学手法を駆使することにより分子レベルでの理解を深められることを実証することに成功しており、化学分野の発展に貢献するところ大なるものがある。

よって著者は、北海道大学博士（理学）の学位を授与される資格あるものと認める。