

氏名 大村 訓史

(※論文提出者の氏名を記入)

#### 主論文審査の要旨

結晶と違い構造の周期性を有しない液体の性質には原子密度の空間的・時間的ゆらぎが本質的に関わっている。特に、共有結合性液体の物性を理解するためには、時間的に変化する原子配置の乱れと電子状態の間の動的相関を正しく把握することが極めて重要である。本論文は、実験を行うことが非常に困難な高温高圧環境下における共有結合性液体の動的及び電子的性質を第一原理的手法に基づく計算機シミュレーションを用いて検討している。各章の内容は以下の通りである。

第1章は序論であり、本論文の背景と目的が述べられている。

第2章では、第一原理分子動力学法の基礎理論と計算法の詳細について説明されている。

第3章では、液体 $B_2O_3$ の動的性質の圧力依存性について議論されている。特に、B原子とO原子の拡散係数は常圧では殆ど差がないのに対し、圧力が20 GPaを超えるとB原子はO原子よりも2倍以上大きい拡散係数を持つことを見出している。この知見は、強い共有結合性を有する化合物液体では、数が多い方の元素の拡散が高圧下で抑制されることにより動的非対称性が現れることを示唆しており、地球科学的・液体物理的観点から重要な研究成果である。

第4章では、各種酸化物液体の動的性質の圧力依存性が議論されている。まず、液体 $SiO_2$ の高圧相においては液体 $B_2O_3$ と同様の動的非対称性が現れることが示される。次に、 $B_2O_3$ や $SiO_2$ と違い比較的弱い共有結合を持つ液体 $GeO_2$ は、高圧下で拡散係数の極大値を持つが動的非対称性を示さないこと、更に、非架橋酸素を持つ液体 $SrGeO_3$ では加圧に伴って拡散係数が単調に減少すること等が結論づけられている。同じ酸化物であっても、結合状態の違いにより、動的性質の圧力依存性が定性的に異なることを示している。

第5章では、高圧下における液体Seの金属化のメカニズムについて議論されている。常圧では強い共有結合を反映した鎖構造をとるが、圧力増加に伴い鎖が切れ徐々に金属化が起こることが明らかにされている。この研究成果の重要な点は、金属化の過程で共有性と金属性が競合し他の液体では見られていない特異な構造が現れることを見出した点にある。

第6章では、加圧に伴う液体AsSの分子性液体から高分子液体への構造変化が議論されている。高分子化に伴い密度の圧力依存性に飛びが生じることが見出され、この液体の構造変化が液体-液体一次相転移であることを示唆している。

第7章には非断熱過程を扱う新しい第一原理計算の計算法と応用例が述べられており、本論文のまとめと今後の展望は第8章に記されている。

本審査委員会は、以上の内容を詳細に検討し、本論文が博士(理学)の学位を授与すべき十分な内容を有するものと判断した。

#### 最終試験の結果の要旨

審査委員会は学位論文提出者に対して、本論文の内容及び専門分野についての口頭試験を行った。その結果、論文提出者は当該研究分野について十分な知識、理解力及び研究遂

行能力があることを認めた。第一原理的に共有結合性液体中の原子のダイナミクスを再現することにより、原子の拡散機構と圧力誘起半導体・金属転移に関する種々の新しい知見を得ており、今後の展開が期待される。

論文提出者は査読付き論文13編（筆頭著者論文8編）を含む18編の論文を発表しており、物理科学講座における学位審査基準を満たしている。外国語については、英文による論文作成及び国際学会において15回の発表（口頭発表5回）を行っていることから、十分な能力があると認められる。以上の結果に基づき、最終試験は合格と判定した。

審査委員	理学専攻・物理科学講座	教授	下條 冬樹
審査委員	理学専攻・物理科学講座	教授	安仁屋 勝
審査委員	理学専攻・物理科学講座	教授	伊藤 喜久男
審査委員	理学専攻・物理科学講座	教授	赤井 一郎
審査委員	複合新領域科学専攻・複合新領域科学講座	教授	吉朝 朗