

博士論文の要旨及び審査結果の要旨

氏名	小林 健太郎
学位	博士 (理学)
学位記番号	新大院博 (理) 第 462 号
学位授与の日付	令和3年3月23日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
博士論文名	第一原理分子動力学と光電子分光測定を用いた流体水銀の電子状態転移と長周期構造を持つ結晶中不純物クラスターに関する研究
論文審査委員	主査 教授・丸山 健二 副査 教授・大鳥 範和 副査 教授・生駒 忠昭

博士論文の要旨

本申請論文はマルチフラクタル解析の枠組みを利用した、金属絶縁体転移領域の流体水銀の遍歴局在転移に関する研究とシンクロ型長周期積層構造 (LPSO) を持つ Mg-Zn-Y 合金の電子構造と不純物クラスターの状態の研究についてまとめたものである。

第一部では、流体水銀の電子の局在化による金属-絶縁体転移について論じている。この現象については実験・理論両面から長年議論されている。電子の遍歴局在転移に関連したフラクタル解析の研究は、第一原理計算ソフトウェアの普及に伴いごく最近、現実系におけるシミュレーションにも取り入れられた。流体水銀について言えばこれまで電子の遍歴局在転移に対するスケール不変性に基ついた考察はこれまで行われておらず、方法論的には非自明な臨界点が得られたのみであり、数値的計算を試す価値があると思われる。本研究では、純粋に第一原理分子動力学シミュレーションの範囲の中で、局在化理論をとらえた。

得られた結果について、流体水銀の常温常圧から気液臨界点に至る密度減少の過程で遍歴局在転移が観測されるというものであった。また、エネルギー準位についてみたものでも特に密度  $8.26 \text{ g cm}^{-3}$  ではフェルミエネルギーに近い状態と離れた状態でサイズ依存性が反転していて比較的明瞭な移動度端が存在することが示された。以上の結果は、Mott に予言されていたものであるが、その後のスケール不変性を取り込んだ方法による遍歴局在転移の認識という意味では新しい結果である。また、第一原理分子動力学によるものでは特に転移や移動度端の明確な存在が初めて示されたと結論付けしている。

次に第二部では LPSO の構造学的研究について議論している。

LPSO 中の不純物クラスターの存在をもとにして光電子分光、逆光電子分光のスペクトルを分析した。LPSO の形態的な特徴については、今回の PES・IPES 実験は構造学的知見と矛盾しない結果を出しており、特に LPSO の内殻準位スペクトルの実験結果は信頼性がある。しかしながら、第一原理計算と PES・IPES の間の一致には課題があると結論している。

さらに、無限系の電氣的性質に注目するときはやはりフェルミエネルギー附近 (1 eV 程度) が重要であり、第一部で見たようにこの領域における遍歴局在転移という興味深い現象が示されたが、この領域を実験的に特に複数のサイズで調べるには、今回第二部で示されたようにフェルミエネルギー周辺の PES スペクトルと第一原理計算の一致が今後の課題である。そのためには第一原理計算の近似の精度を上げるほかに、PES のフェルミエネルギー附近のスペクトルの解釈の理論が必要である。一方、内殻準位は PES が比較的解釈しやすいものだった。この準位について全電子計算を行うことで、内殻準位について一致できれば、仮に内殻準位について遍歴局在転移などがシミュレーションとして得られた時に容易に実験で確かめることができると考えられるとする考察を行っている。

#### 審査結果の要旨

この研究では、不規則系物質の構造および電子状態についてこれまで解明されていなかった物質の構造と電子状態の関係について解析した。そのなかでも、流体水銀の金属-非金属転移などの現象については以前から論議されてきたにもかかわらずいまだに定まった理論はないのが現状である。これは不規則系物質の研究の困難さを意味している。このような状況において本論文は不規則系物質の電子状態研究について第一原理シミュレーションを用い電子状態の解析を行った。この結果、電子の局在-遍歴状態転移の判別をおこなうパラメーターを採用し、シミュレーションと実験を並列した研究を可能とした。

よって、本論文は博士 (理学) の博士論文として十分であると認定した。