

放射光を用いた超臨界金属流体の静的・動的構造の解明

(研究課題番号 11102004)

平成 11 年度～平成 15 年度科学研究費補助金 (特別推進研究(2))
研究成果報告書

平成 16 年 3 月

研究代表者 田村剛三郎
(京都大学工学研究科教授)

はしがき

本報告書は、平成 11 年度から平成 15 年度の 5 年間にわたって行われた文部科学省科学研究費補助金(特別推進研究(2))による「放射光を用いた超臨界金属流体の静的・動的構造の解明」の研究成果をとりまとめたものである。本研究の研究組織、経費、研究発表ならびに得られた研究成果を以下に記し、最後に、この研究に関わる主要な成果を掲載した論文を収録した。本研究に助成金を交付された文部科学省に感謝すると共に、この報告書の印刷に助成金の一部を当てたことを明記する。

本研究における X 線実験は、兵庫県西播磨の大型放射光施設 SPring-8 を利用して行われた。研究代表者らが SPring-8 に提案した課題「超臨界金属流体の静的・動的構造の解明」が長期利用課題として採択され、平成 12 年後期から 15 年前期までの 3 年間、ビームタイムを確保して実験を進めることができた。本実験を計画したのは 5 年以上前になるが、高輝度光科学研究センター前所長上坪宏道先生ならびに前副所長の菊田惺志先生、原子力研究所の下村理先生、京都教育大学の村田隆紀先生をはじめ多くの先生方には当初から陰に陽にお力添えをいただいた。また、高圧ガス特別設備をビームラインに設置し実験を遂行することができたのは、高輝度光科学研究センターのビームライン担当者、安全管理室の方々、原子力研究所、理化学研究所の方々のご支援によるものである。それがなければこの研究を進めることができなかったであろう。神戸製鋼所、理学電機、高圧システムの各社には、高圧装置や X 線装置の面で大変お世話になった。さらに、本研究を遂行するに当たり、下記の研究分担者や協力者以外にも直接、間接に、多くの方々のご協力をいただいた。ここに深く感謝する。

研究組織

- 研究代表者：田村剛三郎 (京都大学工学研究科教授)
研究分担者：乾 雅祝 (広島大学総合科学部助教授)
 星野 公三 (広島大学総合科学部教授)
 下條 冬樹 (熊本大学理学部助教授 平成 11～13 年度)
 船越 賢一 (高輝度光科学研究センター研究員 平成 11～12 年度)
 内海 渉 (日本原子力研究所研究員 平成 11～12 年度)
 沼倉 宏 (京都大学工学研究科助教授 平成 13～15 年度)
 田中 克志 (香川大学工学部助教授 平成 13 年度)

研究協力者：松田 和博 (京都大学工学研究科助手)
 坂口 佳史 (京都大学 COE 研究員)
 洪 新国 (日本学術振興会外国人特別研究員)
 一色麻衣子 (高輝度光科学研究センター)
 大石 泰生 (高輝度光科学研究センター)
 Alfred Baron (高輝度光科学研究センター)
 筒井 智嗣 (高輝度光科学研究センター)
 田中 良和 (理化学研究所)
 石川 哲也 (理化学研究所)
 Kazi M. Huq (広島大学大学院博士課程)
 大石 泰文 (広島大学大学院修士課程)
 中祖 一朗 (広島大学大学院修士課程)
 松坂 鉄矢 (広島大学大学院修士課程)
 内藤 愛雄 (広島大学大学院修士課程)
 石川 大介 (京都大学大学院博士課程)
 伊藤 英之 (京都大学大学院修士課程)
 伊藤 有 (京都大学大学院修士課程)
 佐藤 江平 (京都大学大学院修士課程)
 三船 耕平 (京都大学大学院修士課程)
 草刈 美里 (京都大学大学院修士課程)
 傍島 農之 (京都大学大学院修士課程)
 西井 匠 (京都大学大学院修士課程)

交付決定額 (配分額)

(金額単位：千円)

	直接経費	間接経費	合計
平成 11 年度	56,000	16,800	72,800
平成 12 年度	74,000	22,200	96,200
平成 13 年度	68,000	20,400	88,400
平成 14 年度	26,000	7,800	33,800
平成 15 年度	9,500	2,850	12,350
総 計	233,500	70,050	303,550

研究経過と成果の概要

1) 研究目的

原子や分子が凝縮して金属になるとき、どのような過程を経て金属になるのか、逆の見方をすれば、金属はどのように膨張・解離して絶縁体になるのか。この物質科学における最も基本的な問いに答えるために、超臨界金属流体の構造研究を行った。

本研究では、我々が独自に開発してきた実験手法をベースとし、それに強力X線源として SPring-8 の放射光を利用することにより、水銀やセレン、アルカリ金属等の超臨界金属流体の静的・動的構造の解明することを目的とする。X線回折測定により短・中距離構造について、またX線小角散乱測定により密度ゆらぎ等の長距離構造について、さらにX線非弾性散乱測定から超臨界領域での動的構造、すなわち原子分子の離合集散についての様相を明らかにする。これらの金属流体が体積膨張してゆくときに生じる金属 - 非金属転移とミクロ構造との関係、さらに超臨界領域における密度ゆらぎと電子物性との相関について調べた。以下に得られた成果の概要とその意義について述べる。

2) 高圧容器の開発

流体水銀、セレン、ルビジウムの臨界温度と圧力は、それぞれ、Hg(1478°C、1673bar)、Se(1615°C、385bar)、Rb(1744°C、124.5bar)であり、アルゴンや炭酸ガスのものに比べて非常に高い。そのため、高圧容器、試料容器などの実験装置には特別の工夫が必要である。さらに、ヘリウムガスを用いて高圧を発生するため、高圧ガスの取り扱いに関する国(高圧ガス保安協会)の特別認可が必要である。本研究では、1700°C、ヘリウムガス圧縮による2000barまでの高温高圧下で放射光実験が可能な内熱型高圧容器の開発し、X線回折、X線小角散乱、X線非弾性散乱用に異なる3種類の高圧容器を製作した。国の特別認可を得て、これらをガス圧縮装置と共にSPring-8の3つのビームラインBL04B1(BL28B2)、BL04B2、BL35XUに設置した。

実験精度を上げるために、X線回折、X線小角散乱、X線非弾性散乱測定用の高圧容器それぞれについて改良を行った。X線回折に関しては、散乱X線を取り出すベリリウム高圧窓の数を4つから7つに増やした高圧容器を新たに製作した。このことによりそれぞれの窓から得られた回折スペクトルのつながりが格段によくなり、精度の高い構造因子 $S(Q)$ を得ることができるようになった。X線小角散乱については、当初、X線の入り口にダイヤモンド、出口にベリリウム窓をもつ高圧容器を製作したが、出口ベリリウム窓からの小角散乱が大きな障害となったため、出口にも入手可能な最大

径の高純度人工ダイヤモンドを有する高圧容器を新たに製作した。このことにより実験精度が上がり、後に述べるように臨界散乱のみならず、水銀の金属 - 非金属転移ならびにセレンの半導体 - 金属転移に伴う弱い密度ゆらぎを観測することができた。X線非弾性散乱測定用には、 Q の小さい小角側の非弾性散乱スペクトルが得られるように、新たに高圧容器を製作した。第三代大型放射光施設が世界に3箇所あるが、Spring-8のこれらのビームラインは、高い臨界点をもつ超臨界金属流体の静的・動的構造研究が可能な唯一のビームラインである。

3) 流体水銀

X線回折測定を行い、液体から超臨界領域を経て気体にいたる広い密度領域 ($13.6-1.9 \text{ gcm}^{-3}$) において、完成度の高い構造因子 $S(Q)$ と二体分布関数 $g(r)$ を得た。これを解析することによって、配位数 N と $g(r)$ の第一極大位置 r_1 が密度に対してどのように変化するかが明らかになった。基本的に N は、液体から気体まで広い密度範囲にわたり大きくしかも原点に向かって直線的に減少している。この変化から、水銀が体積膨張するとき、原子間距離が増大するのではなく配位数が減少することが分かった。このことは、結晶の熱膨張と大きく異なる点である。液体の場合には、結晶性による拘束がないため、配置のエントロピーを増加させるべく空孔を生成しながら膨張すると考えることができる。しかし、詳細に見ると N は、金属領域においてほとんど直線的に減少するが、金属-非金属転移の始まる 9 gcm^{-3} あたりに近づくと直線からずれ、ほぼ一定値をとるようになる。さらに臨界密度を超えて気体領域に入ると、再び減少し始める。この N の変化は r_1 の密度変化とよく符合しており、最近接原子分布の中でもより近接位置にある原子数の減少が、金属-非金属転移に大きく関わることが分かった。実際に、 $g(r)$ の第一極大の非対称性に着目してこれを2つのガウス関数でフィットすると、金属-非金属転移の始まる 9 gcm^{-3} まで、近接位置にある原子の数が選択的に減少し、遠い方の原子数は変わらない。また、詳細に調べた結果、ガウス関数の半値幅が 9 gcm^{-3} 付近から増大することが分かった。このことは、金属-非金属転移に伴って配位数のゆらぎが存在することを意味する。

次に、X線小角散乱測定を行い、臨界散乱の観測に初めて成功した。得られた小角散乱スペクトルをOrnstein-Zernike の密度ゆらぎの式を用いて解析し、密度ゆらぎの大きさ $S(0)$ と相関長 ξ を求めることができた。得られた $S(0)$ と ξ を密度に対してプロットすると、大変興味深いことが判明した。すなわち、 $S(0)$ は臨界密度付近にピークがありほぼ対称的な形をしているが、 ξ は半値幅が大きく、液体側に大きくすそを引くという特徴をもつ。水や CO_2 のような流体では、臨界点に近づくと $S(0)$ も ξ

も大きくなり、共に臨界密度で極大を示し、ほぼ対称的な形をしており半値幅もほぼ同じである。これに対し、流体水銀では、金属 - 非金属転移の起きる密度 9 gcm^{-3} 付近において $S(0)$ が小さいにもかかわらず q の方には 10 \AA 程度の値が残っているという大きな特徴をもつ。このことは、金属 - 非金属転移領域において、臨界密度ゆらぎとは異なる新しいタイプのゆらぎ、中距離スケールの弱いゆらぎが存在することを示唆する。それでは一体、どのようなゆらぎが生じているのか。臨界点近くでは、液体と気体の臨界密度ゆらぎを直接反映して、X線が見る電子密度分布には、密な領域と疎な領域で明瞭な違いが現れる。一方、金属 - 非金属転移が起きる密度では、電子が局在する領域と非局在領域との間では電子密度に大きな差異はないであろう。臨界密度ゆらぎの密な領域を黒で塗り、疎な領域を白で表すとすると、金属 - 非金属転移領域のゆらぎは、いわば、濃いめの灰色（金属領域）と薄めの灰色（非金属領域）とで塗り分けられた薄墨模様をイメージすることができる。

次に、X線非弾性散乱の結果について述べる。広い密度範囲、すなわち液体金属領域、超臨界領域、気体領域における動的構造因子 $S(q, \omega)$ を初めて得ることができ、これをもとに各領域において分散関係を求めることができた。臨界密度ゆらぎによる臨界遅延の観測、高密度気体に残存する集団モードの観測など新しい事実が見出されたが、特筆すべきことは、金属 - 非金属転移に伴う速い音速（fast sound）の発見である。密度 13.6 gcm^{-3} において、分散関係から見積もった音速は 1700 m/s であり、超音波測定から求めた音速に比べ 17% 程度速い。これに対して 9 gcm^{-3} では、分散関係からの音速は 1500 m/s であり、超音波による音速 490 m/s に比べると3倍以上も速いという大変興味深い事実が判明した。金属 - 非金属転移領域において、なぜこのような fast sound が観測されるのであろうか。音速は、断熱圧縮率の平方根に逆比例する。 Q が 0.2 から 0.4 \AA^{-1} の範囲、すなわち $10 \sim 30 \text{ \AA}$ の空間スケールに出現した速い音速の存在は、ミクロな断熱圧縮率が小さいことを意味する。このことは、ミクロな圧力のゆらぎが大きいことを意味する。また、圧力は二体ポテンシャル、特に斥力部分の形に依存するので、圧力のゆらぎが大きいことはポテンシャルのゆらぎが大きいことを意味する。それでは、なぜポテンシャルがゆらぐのか。X線小角散乱の実験から、金属 - 非金属転移領域において 10 \AA 程度の相関長をもつゆらぎの存在、すなわち 10 \AA 程度のスケールをもつ金属領域と非金属領域との間の空間的ゆらぎが起きていることが明らかになった。これらの領域は時間的にもゆらいでおり、金属領域は非金属領域へ、非金属領域は金属領域へと時々刻々入れ替わっているであろう。入れ替わりの周期あるいは緩和時間を正確に求めることは難しいが、 $S(q, \omega)$ の形から推定すると、その時間は 1 p s あ

るいはそれより短いと考えられる。ある瞬間に、金属領域の水銀は伝導電子に遮蔽されたクーロンポテンシャルを感じるが、次の瞬間には、金属でなくなった領域の中でいわば Lennard-Jones ポテンシャルのような希ガスのポテンシャルを感じるようになるであろう。このように、ポテンシャルのゆらぎは、金属 - 非金属転移に伴うゆらぎに関係する。また、圧力のゆらぎは、金属領域と非金属領域とが入れ替わることにより 10\AA 程度の空間で発生する。このように、fast sound は、金属 - 非金属転移に伴う水銀特有のゆらぎが原因で生じたものである。

3つのビームラインを横断的に利用することによって、臨界密度ゆらぎ以外の、もうひとつのゆらぎを発見することができた。それは、金属 - 非金属転移に関わる非常に特異なゆらぎであり隠されていたゆらぎである。X線回折の結果から、水銀が膨張するとき、最近接原子配置のうち遠い方の配位数は変わらず近い方が選択的に減少し、金属 - 非金属転移近傍で配位数のゆらぎが生じることが分かった。また、X線小角散乱により金属 - 非金属転移に伴う中距離スケールの弱いゆらぎの存在することが分かった。さらに、これらのゆらぎがX線非弾性散乱により観測したfast sound に関わっているという大変興味深い事実が明らかになった。このように3つの測定結果を合わせ考えることにより、当該分野共通の課題である流体水銀の金属 - 非金属転移の機構について、詳細なシナリオと言えないまでも、ピコ秒と数十 \AA の時間空間スケールでのあらすじは出来上がったと考えている。

4) 流体セレン

X線回折測定を行い、液体から気体に至る広い密度範囲で完成度の高い $S(Q)$ と $g(r)$ を得ることができた。融点直上の液体セレンは2配位鎖状構造を持つ半導体である。1本の鎖には10万個のセレン原子が含まれるが、温度と圧力の増加と共に鎖は短くなり、臨界点近傍では10原子程度の短い鎖になる。このとき金属へ転移する。この半導体 - 金属転移に伴うミクロ構造の変化について明確な知見が得られた。すなわち、従来の予想のように3配位構造に変化するのではなく、2配位構造を保ったまま金属化し、共有結合距離はむしろ短くなる。さらに、気体中にセレン 2 原子分子が存在することを、X線回折測定法を用いて初めて実証することができた。このことを利用して、気体から超臨界金属流体へと凝集してゆく過程での回折パターンの変化を追跡することに成功し、セレン 2 原子分子が金属的性質をもつ短い鎖へと変化してゆく様子を捉えることができた。

次に、X線小角散乱測定を行い、臨界散乱を観測することに初めて成功した。データを解析し、臨界点近傍の異なる温度における $S(0)$ と ξ を密度に対するプロットを得

た。臨界密度 1.85 g cm^{-3} 近傍に $S(0)$ と ξ の極大があり、温度が下がり臨界温度に近づくとピークが大きくなる。また、本小角散乱実験により初めて、半導体 - 金属転移に伴う弱い密度ゆらぎを観測することができた。密度の大きい所は鎖状高分子構造をもつ半導体領域に対応するが、密度が減少し、半導体 - 金属転移の始まる約 3.3 g cm^{-3} の密度で、 $S(0)$ と ξ が増大し始めることが分かった。これらのことは、流体セレンの中に、臨界密度ゆらぎとは違った、半導体 - 金属転移に伴う中距離スケールの弱いゆらぎが存在することを意味する。

5) 流体ルビジウム

水銀やセレンの実験に用いてきたサファイア試料容器は、反応性の強いアルカリ金属には用いることができない。我々は、 1500°C を超える高温で使用可能なモリブデン製試料容器を新たに開発した。これを用いて初めて超臨界領域までのX線回折測定を行うことができた。その結果、二体分布関数の第一ピークが、体積膨張にもかかわらず 1200°C 以上で急に距離の短い方へシフトするという予想外の事実が明らかになった。この実験結果を下條らの第一原理分子動力学シミュレーションの結果と比較することにより、膨張してゆく流体ルビジウム中に、非常に早い段階で、すなわち 1200°C という臨界温度 (1744°C) から遠く離れた液体金属領域において、二原子分子 Rb_2 が出現するという興味深い事実が明らかになった。液体金属中に出現した Rb_2 は、気体中に存在する安定なものとは異なり、伝導電子による遮蔽を受けて不安定で寿命の短い分子であると考えられる。何故このような Rb_2 が現れるのかは大変興味深い。流体ルビジウムの構造研究は、これまで単純金属であると考えられてきたアルカリ金属に対する視点を大きく変えるであろう。

最近、米国のWeirらによる水素分子の爆縮実験により、 3000K , 1.4Mbar という超高温超高压下で、水素が金属 (流体金属水素) になることが明らかにされ、水素がアルカリ金属の仲間であることが初めて示された。水素分子の圧縮過程は、本研究のアルカリ金属流体の膨張過程のまさに逆のプロセスである。したがって、膨張するアルカリ金属流体の構造研究は、現在のところ実施が困難である流体金属水素と密接に関わる構造研究を行っていることになる。この意味で、本研究は木星の内部構造に関わる研究でもある。木星内部には流体金属水素が存在し、それが木星特有の強い磁場が生じていると考えられている。水素分子が中心に向かって圧縮されるときどのように金属化するか、木星の深いところで金属へ転移するのか、あるいは、浅いところで金属になるかは、木星磁場の起源に関わる重要な問題である。本研究は、この問題に対して物質科学の立場から確かな指針を与えることになるであろう。また、本研究は、材料

としての金属水素、すなわち、室温超伝導体であると予想され、核融合や高効率エネルギー源として将来必ず重要な意味を持つてくる金属水素に大きく関わりをもつ。

6) 研究の総括

流体水銀については、X線回折、X線小角散乱、X線非弾性散乱測定を行うことができた。セレンについてはX線回折、X線小角散乱、ルビジウムについては期間内にX線回折測定にとどまったが、いずれも十分な成果を得ることができたと考える。膨張してゆく金属流体のミクロ構造の移り変わりが明確に理解され、そのイメージが鮮明になった。また、得られた成果をベースにして新たな展開が見られたこと、今後の課題が明確になったことが何よりも重要な成果である。特に、アルカリ金属用モリブデン容器の開発に成功したことは、これからのアルカリ金属流体の構造研究に新たな展開をもたらすもので、大きな前進である。近い将来、X線非弾性散乱による精緻なダイナミクス研究を行う上で重要な意味をもつと考える。引き続き研究を推進してゆくと共に、得られた最新の成果を論文にまとめてゆく。

研究発表

1. 学会誌等

1999 年

- 1) K.Tamura and M.Inui, In situ x-ray diffraction and XAFS studies of expanded fluid selenium, *MRS Bulletin*, 24 26-31 (1999).
- 2) K.Tamura, M.Inui and S.Hosokawa, Energy dispersive x-ray diffraction equipment for fluids at extreme condition of high pressure and high pressures, *Rev.Sci.Instrum.* 70 144-152(1999).
- 3) Y.Sakaguchi and K.Tamura, Transient direct-current conductivity of liquid selenium: an indication of the photo-induced semiconductor-metal transition, *J.Phys.:Condens.Matter*, 11 659-670 (1999).
- 4) C.Li, K.Lu, Y.Wang, K.Tamura, S.Hosokawa and M.Inui, Electronic structure study of liquid germanium based on x-ray-absorption near-edge structure spectroscopy, *Phys.Rev.B*, 59 1571-1574 (1999).
- 5) K.Tamura, M.Inui, I.Nakaso, Y.Oh'ishi, K.Funakoshi and W.Utsumi, X-ray diffraction studies of expanded fluid mercury using synchrotron radiation at SPring-8, *Jpn.J.Appl.Phys.*, 38 452-455 (1999).
- 6) K.Tamura, M.Inui, I.Nakaso, Y.Oh'ishi, K.Funakoshi and W.Utsumi, Structural studies of expanded fluid mercury using synchrotron radiation, *J.Non-Cryst.Solids*, 250-252 148-153 (1999).
- 7) M.Inui, K.Tamura, I.Nakaso, Y.Oh'ishi, K.Funakoshi and W.Utsumi, X-ray diffraction measurements for expanded fluid Se using synchrotron radiation, *J.Non-Cryst.Solids*, 250-252 519-524 (1999).
- 8) M.Inui, K.Tamura, J.-L.Hazemann, D.Raoux, Y.Soldo, R.Argoud and J.F.Jal, X-ray absorption fine structure studies on expanded fluid Se: from liquid to dense vapor, *J.Non-Cryst.Solids*, 250-252 525-530 (1999).
- 9) Y.Sakaguchi and K.Tamura, A large photoinduced change in liquid selenium: transient dc conductivity and transient absorption measurements, *J.Non-Cryst.Solids*, 250-252 441-446 (1999).
- 10) M.Inui, Y.Oh'ishi, I.Nakaso, M.H.Kazi and K.Tamura, Small angle x-ray scattering measurements for fluid Se near the critical point, *J.Non-Cryst.Solids*, 250-252 531-536 (1999).

- 11) Y.Kawakita, H.Nakashima, S.Yoshioka, S.Takeda, K.Maruyama and K.Tamura, Local structure of liquid and vitreous V_2O_3 and P_2O_3 , *J.Phys.Chem.Solids*, **60** 1483-1486 (1999).
- 12) K.Tsuji, M.Inui, K.Tamura, M.Ohtani, N.Hosokawa and N.Hunamori, Structure of liquid tellurium at high pressures, *Proceedings of AIRAPT-17 Hawaii*, pp510-513 (1999).
- 13) 田村剛三郎, 乾雅祝, 固体物理, *SPring-8* における超臨界金属流体の構造研究 -膨張する水銀-, **34** 199-207 (1999).
- 14) 内海渉, 船越賢一. 浦川, 入船徹男, 田村剛三郎, 乾雅祝, 辻和彦, 下村理, *SPring-8* 高温構造物性ビームライン BL04B1, *放射光*, **12** 17-23 (1999).
- 15) 田村剛三郎, 乾雅祝, 超臨界金属流体の構造研究 -膨張する水銀-, *SPring-8* 利用者情報, **4** 38-42 (1999).
- 16) K.Hoshino and F.Shimojo, Structure and electronic states of expanded and compressed liquid alkali metals by the ab initio molecular-dynamics simulation, *High Temperature Materials and Processes*, **18** 79-85 (1999).
- 17) F.Shimojo, K.Hoshino and Y.Zempo, Atomic structure and charge transfer in liquid Rb-Te mixtures: an ab initio molecular-dynamics simulation, *Phys. Rev B*, **59** 3514-3520 (1999).
- 18) Y.Senda, F.Shimojo and K.Hoshino, The origin of the first sharp diffraction peak in liquid Na-Pb alloys: ab initio molecular-dynamics simulations, *J.Phys.:Condens.Matter*, **11** 2199-2210 (1999).
- 19) F.Shimojo, S.Munejiri, K.Hoshino and Y.Zempo, The microscopic mechanism of the semiconductor-metal transition in liquid arsenic triselenide, *J.Phys.:Condens.Matter*, **11** L153 - L158 (1999).
- 20) Y. Zempo, F. Shimojo, K. Hoshino and M. Watabe, Structural and electronic properties of liquid rubidium, *Computational Materials Science*, **14** 19 - 27 (1999).
- 21) K.Hoshino, F.Shimojo and T.Nishida, The photo-induced structural change in a Se chain and a Se_8 ring: an ab initio molecular-dynamics simulation, *J.Phys.Soc.Jpn.*, **68** 1907-1911 (1999).
- 22) Y.Senda, F.Shimojo and K.Hoshino, Composition dependence of the structure and the electronic states of liquid K-Pb alloy: ab initio molecular-dynamics simulation, *J.Phys.:Condens.Matter*, **11** 5245-5256 (1999).
- 23) Y.Senda, F.Shimojo and K.Hoshino, Structure and electronic states of liquid Na-Pb alloys by an ab initio molecular-dynamics simulation, *J. Non-Cryst. Solids*, **250-252** 258-262 (1999).
- 24) S.Munejiri, F.Shimojo and K.Hoshino, Density dependence of the velocity of sound in

expanded liquid mercury by a large-scale molecular-dynamics simulation, *J. Non-Cryst. Solids*, 250-252, 144-147 (1999).

25) F. Shimojo, K. Hoshino, Y. Zempo and M. Watabe, Structure and electronic properties of supercritical selenium: an ab initio molecular-dynamics simulation, *J. Non-Cryst. Solids*, 250-252 542-546 (1999).

26) F. Shimojo, K. Hoshino and Y. Zempo, ab initio molecular-dynamics study of liquid alkali-tellurium mixtures, *J. Non-Cryst. Solids*, 250-252 547-551 (1999).

2000 年

1) K. Tamura, Proceedings of the symposium on the Progress in Liquid Physics (2), Structural studies of fluid mercury using synchrotron radiation at SPring-8, pp89-96, Wuhan (2000).

2) Y. Sakaguchi and K. Tamura, A technique for preparing submicronmeter-size liquid film: development of new type of optical cell, *Rev. Sci. Instrum.*, 71 494-498 (2000).

3) 田村剛三郎, 乾雅祝, 船越賢一, 内海渉, 辻和彦, 高温ステーション(BL04B1)における金属流体の構造研究, *日本結晶学会誌*, 42 33-40 (2000).

4) 一色麻衣子, 大石泰生, 鈴谷賢太郎, 尾関智二, 田村剛三郎, 乾雅祝, 高エネルギーX線回折ビームライン(BL04B2)の試験調整運転状況, *SPring-8 利用者情報*, 5 94-99 (2000).

5) K. Hoshino, F. Shimojo and Y. Zempo, Metal-semiconductor transition in liquid alkali-Te mixtures: ab initio molecular-dynamics simulations, *J. Phys.: Condens. Matter*, 12 189-194 (2000).

6) Y. Senda, F. Shimojo and K. Hoshino, The ionic structure and the electronic states of liquid Li-Pb alloys obtained from ab initio molecular-dynamics simulations, *J. Phys.: Condens. Matter*, 12 6101-6112 (2000).

7) F. Shimojo, S. Munejiri, K. Hoshino and Y. Zempo, Temperature dependence of atomic structure in liquid As_2Se_3 : Ab initio molecular-dynamics simulations, *J. Phys.: Condens. Matter*, 12 6161-6172 (2000).

8) S. Munejiri, F. Shimojo and K. Hoshino, Photo-induced structural change in liquid sulphur, *J. Phys.: Condens. Matter*, 12 7999-8008 (2000).

9) K. Hoshino, F. Shimojo and Y. Zempo, The microscopic mechanism of the metal-semiconductor transition in liquid alkali-Te mixtures: ab initio molecular-dynamics simulations, *Prog. Theor. Phys., Supp. No.138*, 191-198 (2000).

10) Y. Senda, F. Shimojo and K. Hoshino, The polyanions in liquid alkali-lead alloys: ab initio molecular-dynamics simulations, *Prog. Theor. Phys., Supp. No.138*, 245-246 (2000).

2001 年

- 1) X.Hong, M.Inui, K.Tamura, T.Matsuoka, D.Ishikawa and M.H.Kazi, Structural studies on expanded fluid selenium up to metallic region using synchrotron radiation, *J.Non-Cryst.Solids*, 293-295 446-452 (2001).
- 2) K.Tamura and M.Inui, Structural changes and the metal-nonmetal transition in supercritical fluids, *J.Phys.:Condens.Matter*, 13 R337-R368 (2001).
- 3) K.Tamura, M.Inui, K.Funakoshi and W.Utsumi, X-ray diffraction technique in energy dispersive mode at SPring-8 for fluids at high temperature and high pressures, *Nuclear Instruments and Methods Section A*, 467-468 1065-1068 (2001).
- 4) M.Inui, and K.Tamura, EXAFS measurements for liquid Ge-Si alloys, *J.Synchrotron Radiation*, 8 767-769 (2001).
- 5) M.H.Kazi, M.Inui and K.Tamura, Small angle x-ray scattering measurements for fluid selenium near the liquid-vapour critical point, *J.Non-Cryst.Solids*, 293-295 569-574 (2001).
- 6) F.Shimojo, K.Hoshino and Y.Zempo, Stability of the chain structure in liquid K_xTe_{1-x} ($x=0.0, 0.2$ and 0.5): Ab initio molecular-dynamics simulations, *Phys. Rev. B*, 63 094206(1-6) (2001).
- 7) F.Shimojo, K.Hoshino and Y.Zempo, Ab initio molecular-dynamics simulation method for complex liquids, *Computer Physics Communications*, 142 364 -367 (2001).
- 8) S.Munejiri, F.Shimojo and K.Hoshino, Photo-induced polymerization in liquid sulfur studied by an ab initio molecular-dynamics simulation, *Computer Physics Communications*, 142 131-135 (2001).
- 9) Y.Senda, F.Shimojo and K.Hoshino, A survival of the polyanions in liquid alloys, *Computer Physics Communications*, 142 401-405 (2001).
- 10) S.Munejiri, T.Masaki, Y.Ishii, T.Kamiyama, Y.Senda, F.Shimojo, K.Hoshino and T.Itami, Structure Studies of Liquid Tin by Neutron Scattering Experiments and ab initio Molecular-Dynamics Simulations, *J.Phys.Soc.Jpn.*, 70 Suppl. A, 268-270 (2001).

2002 年

- 1) K.Tamura, M.Inui, T.Matsusaka, D.Ishikawa, M.H.Kazi, X.Hong, M.Issiki and Y.Oh'ishi, Small Angle X-ray Scattering Measurements for Supercritical Fluid Metals Using Synchrotron Radiation, *J.Non-Cryst.Solids*, 312-314 269-273 (2002).
- 2) M.Inui, X.Hong, T.Matsusaka, D.Ishikawa, M.H.Kazi, K.Tamura, K.Funakoshi and W.Utsumi, X-ray Diffraction Measurements for Expanded Fluid Se Using Synchrotron Radiation up to Dense Vapor Region, *J.Non-Cryst.Solids*, 312-314 274-278 (2002).
- 3) X.Hong, T.Matsusaka, M.Inui, D.Ishikawa, M.H.Kazi, K.Tamura, K.Funakoshi and

- W.Utsumi, X-ray Diffraction Measurements for Expanded Fluid Mercury Using Synchrotron: From Liquid to Dense Vapor, *J.Non-Cryst.Solids*, 312-314 284-289 (2002).
- 4) M.Inui and K.Tamura, Structural studies of supercritical fluid metals using synchrotron radiation, *J.Non-Cryst.Solids*, 312-314 247-255 (2002).
 - 5) M.H.Kazi, M.Inui and K.Tamura, A study of density fluctuations near the critical point by small angle x-ray scattering, *J.Non-Cryst.Solids*, 312-314 279-283 (2002).
 - 6) K.Hoshino, Dynamical structure of the liquid Ge by the viscoelastic theory, *J.Phys.Soc.Jpn.*, 71 2466-2470(2002).
 - 7) F.Shimojo, K.Hoshino and Y.Zempo, Atomic and electronic structures in liquid arsenic telluride by ab initio molecular-dynamics simulations, *J.Phys.:Condens.Matter*, 14 8425-8433 (2002).
 - 8) Y.Senda, F.Shimojo and K.Hoshino, The metal-nonmetal transition of liquid phosphorus by ab initio molecular-dynamics simulations, *J.Phys.: Condens. Matter*, 14 3715-3724 (2002).
 - 9) K.Hoshino, F.Shimojo and S.Munejiri, Mode-Coupling Analyses of Atomic Dynamics for Liquid Ge,Sn and Na, *J.Phys.Soc.Jpn.*, 71 119-124 (2002).
 - 10) S.Munejiri, F.Shimojo, K.Hoshino, T.Masaki, Y.Ishii, T.Kamiyama and T.Itami, Structure and self-diffusion of liquid Germanium studied by a first-principlesmolecular-dynamics simulations and a neutron scattering experiment, *J.Non-Cryst.Solids*, 312-314 182-186 (2002).
 - 11) Y.Senda, F.Shimojo. and K.Hoshino, The liquid-liquid phase transition of liquid phosphorous studied by ab initio molecular-dynamics simulations, *J.Non-Cryst.Solids*, 312-314 80-84 (2002).
 - 12) F.Shimojo, K.Hoshino and Y.Zempo, Electronic and atomic structures of supercritical fluid selenium:ab initio molecular-dynamics simulations, *J.Non-Cryst.Solids*, 312-314 290-293 (2002).
 - 13) F.Shimojo and K.Hoshino, Intermediate-range order in liquid and amorphous As_2S_3 by ab initio molecular-dynamics simulations, *J.Non-Cryst.Solids*, 312-314 388-391 (2002).
 - 14) F.Shimojo and K.Hoshino, Semiconductor-metal transition in liquid arsenic chalcogenides by ab initio molecular-dynamics simulations, *J.Non-Cryst.Solids*, 312-314 349-355 (2002).
 - 15) T.Itami, T.Masaki, H.Aoki, S.Munejiri, M.Uchida, S.Matsumoto, K.Kamiyama and K.Hoshino, Self-diffusion under microgravity and structure of group IVB liquids, *J.Non-Cryst.Solids*, 312-314 177-181 (2002).

2003 年

- 1) M.Inui, X.Hong and K.Tamura, Local structure of expanded fluid mercury using synchrotron radiation: from liquid to dense vapor, Phys. Rev. B, 68 094108 (1-9) (2003).
- 2) M.Inui and K.Tamura, Static and dynamic structures of expanded fluid mercury, Z. Phys. Chem., 217 1045-1063 (2003).
- 3) X.Hong and K.Tamura, A reverse Monte Carlo study on the structure of fluid Hg, Chin.Phys.Lett., 20 1315-1318 (2003).
- 4) 田村剛三郎, 放射光を用いた超臨界金属流体の構造研究, あたりあ, 43 372-376 (2003).
- 5) F.Shimojo, K.Hoshino and Y.Zempo, Ab initio molecular-dynamics simulations of anomalous structural change in liquid tellurium under pressure, J. Phys. Soc. Jpn., 72 2822-2828 (2003).
- 6) F.Shimojo, K.Hoshino and Y.Zempo, Bonding Properties of Liquid Tellurium under Pressure: A Maximally Localized Wannier Function Approach with Ultrasoft Pseudopotentials, J. Phys. Soc. Jpn. 72 2417-2420 (2003).
- 7) K.Hoshino, Dynamical structure of liquid metals: recent theoretical progress, Z. Phys. Chem. 217, 817 - 829 (2003).
- 8) T.Itami, S.Munejiri, T.Masaki, H.Aoki, Y.Ishii, T.Kamiyama, Y.Senda, F.Shimojo and K.Hoshino, Structure of liquid Sn over a wide temperature range from neutron scattering experiments and first-principles molecular dynamics simulation: A comparison to liquid Pb, Phys. Rev. B, 67 064201 (2003).
- 9) A.Harada., F.Shimojo and K.Hoshino, Dynamic properties of disordered phases of carbon by an empirical potential: stringent test toward hybrid approach with the density-functional theory, J.Phys.Soc.Jpn., 72 822-828 (2003).
- 10) R.Goto, F.Shimojo and K.Hoshino, Temperature dependence of the microscopic structure of liquid In_2Te_3 : *ab initio* molecular-dynamics simulation, J.Phys.Soc.Jpn., 72 320-324(2003).

2004 年

- 1) K.Tamura M.Inui, K.Matsuda and D.Ishikawa, Structural studies of expanded fluid metals using synchrotron radiation, Trans MRS-J, 29[1] 83-88 (2004).
- 2) K.Matsuda, K.Tamura, M.Kato and M.Inui, Molybdenum cell for x-ray diffraction measurements of fluid alkali metals at high temperatures and high pressures, Rev. Sci. Instrum., 75 709-712 (2004).
- 3) D.Ishikawa, M.Inui, K.Tamura, A.Q.R.Baron, S.Tutui, Y.Tanaka and T.Ishikawa, Collective dynamics in dense Hg vapor, J.Phys.: Condens. Matter, 16 L45-L50.

- 4) D.Ishikawa, M.Inui, K.Tamura, A.Q.R.Baron and S.Tutui, Fast sound in expanded fluid Hg accompanying the metal-non-metal transition, Phys.Rev.Lett., (2004), to be published.
- 5) 田村剛三郎, 超臨界金属流体の構造研究—隠されていたもうひとつのゆらぎ—, SPring-8 利用者情報, 9 1-11 (2004).
- 6) R.Goto, F.Shimojo and K.Hoshino, The Semiconductor-Metal Transition in the Liquid In_2Te_3 Studied by *ab initio* Molecular-Dynamics Simulations, J.Phys.Soc.Jpn., 73 956-963 (2004).

2. 口頭発表

1999年

- 1) 中祖一朗、田村剛三郎、乾雅祝、松坂鉄矢、カジハク、船越賢一、内海渉、放射光を用いた超臨界流体水銀の構造Ⅱ、日本物理学会（広島大）1999年3月
- 2) 田村剛三郎、乾雅祝、中祖一朗、松坂鉄矢、坂口佳史、液体ゲルマニウムの XAFS 測定、日本物理学会（広島大）1999年3月
- 3) 乾雅祝、カジハク、松坂鉄矢、中祖一朗、田村剛三郎、セレンの超臨界領域における X 線小角散乱、日本物理学会（広島大）1999年3月
- 4) 田村剛三郎、乾雅祝、Spring-8 における超臨界金属流体の構造研究（シンポジウム講演）、日本物理学会（広島大）1999年3月
- 5) 松坂鉄矢、石川大介、カジハク、乾雅祝、田村剛三郎、船越賢一、内海渉、放射光を用いた超臨界流体水銀の構造Ⅲ、日本物理学会（岩手大）1999年9月
- 6) カジハク、乾雅祝、洪新国、田村剛三郎、セレンの超臨界領域における X 線小角散乱Ⅱ、日本物理学会（岩手大）1999年9月
- 7) 石川大介、新田京子、坂口佳史、乾雅祝、田村剛三郎、液体セレンのレーザー誘起過渡伝導度の測定Ⅴ、日本物理学会（岩手大）1999年9月
- 8) 石川大介、新田京子、坂口佳史、乾雅祝、田村剛三郎、高温高圧下における液体セレンのレーザー誘起過渡伝導度の測定、第40回高圧討論会（福岡市）1999年11月
- 9) 乾雅祝、カジハク、洪新国、田村剛三郎、流体セレンの超臨界領域における X 線小角散乱、第40回高圧討論会（福岡市）1999年11月
- 10) 松坂鉄矢、石川大介、カジハク、乾雅祝、田村剛三郎、船越賢一、内海渉、放射光を用いた超臨界流体水銀の構造、第40回高圧討論会（福岡市）1999年11月
- 11) 下條冬樹、宗尻修治、星野公三、善甫康成、液体砒素・セレン混合系の第一原理分子動力学シミュレーション、日本物理学会（広島大）1999年3月

- 12) 宗尻修治、下條冬樹、星野公三、液体硫黄の第一原理分子動力学シミュレーション、日本物理学会（広島大）1999年3月
- 13) 仙田康浩、下條冬樹、星野公三、第一原理分子動力学法によるアルカリ-鉛合金の構造 II、日本物理学会（広島大）1999年3月
- 14) 星野公三、「放射光を用いた液体研究の最前線」はじめに（シンポジウム）、日本物理学会（広島大）1999年3月
- 15) 星野公三、下條冬樹、善甫康成、液体アルカリ・テルル混合系の第一原理分子動力学シミュレーション II、日本物理学会（岩手大）1999年9月
- 16) 仙田康浩、下條冬樹、星野公三、第一原理分子動力学法による液体 Li-Pb 合金のイオン構造、日本物理学会（岩手大）1999年9月
- 17) 宗尻修治、下條冬樹、星野公三、液体硫黄の第一原理分子動力学シミュレーション II、日本物理学会（岩手大）1999年9月

2000年

- 1) 石川大介、新田京子、坂口佳史、乾雅祝、田村剛三郎、液体セレンのレーザー誘起過渡伝導度の測定 VI、日本物理学会（関西大）1999年3月
- 2) 松坂鉄矢、乾雅祝、洪新国、田村剛三郎、石川大介、カジハク、船越賢一、内海渉、高温高压下の超臨界流体セレンの構造 II、日本物理学会（関西大）1999年3月
- 3) 細川伸也、乾雅祝、W.C.Pilgrim、石川大介、松坂鉄矢、金平誠、武田信一、田村剛三郎、流体硫黄の構造の密度変化 - Spring-8 における X 線回折実験 -、日本物理学会（関西大）1999年3月
- 4) カジハク、乾雅祝、田村剛三郎、セレンの超臨界領域における X 線小角散乱 III、日本物理学会（関西大）1999年3月
- 5) 新田京子、坂口佳史、田村剛三郎、蒸着法により作製した液体セレン薄膜の過渡電気伝導度、日本物理学会（関西大）1999年3月
- 6) 田村剛三郎、乾雅祝、カジハク、松坂鉄矢、石川大介、洪新国、一色麻衣子、大石泰生、放射光を用いた超臨界金属流体の X 線小角散乱実験、日本物理学会（関西大）1999年3月
- 7) 乾雅祝、松坂鉄矢、石川大介、洪新国、田村剛三郎、液体シリコンゲルマニウム合金の XAFS 測定、日本物理学会（関西大）1999年3月
- 8) 松坂鉄矢、洪新国、乾雅祝、田村剛三郎、石川大介、カジハク、船越賢一、内海渉、放射光を用いた超臨界流体セレンの X 線回折実験、日本物理学会（新潟大）

1999年9月

- 9) 乾雅祝、松坂鉄矢、石川大介、洪新国、田村剛三郎、液体ゲルマニウムシリコン合金のEXAFS測定Ⅱ、日本物理学会（新潟大）1999年9月
- 10) 田村剛三郎、乾雅祝、カジハク、松坂鉄矢、石川大介、洪新国、一色麻衣子、大石泰生、放射光を用いた超臨界金属流体のX線小角散乱実験Ⅱ、日本物理学会（新潟大）1999年9月
- 11) カジハク、乾雅祝、田村剛三郎、セレンの超臨界領域におけるX線小角散乱Ⅳ、日本物理学会（新潟大）1999年9月
- 12) 荒井隆、乾雅祝、田村剛三郎、R. McGreevy、逆モンテカルロ法による蒸気圧曲線に沿った液体Seの3次元モデル、日本物理学会（新潟大）1999年9月
- 13) カジハク、乾雅祝、田村剛三郎、流体セレンの超臨界領域におけるX線小角散乱Ⅱ、第41回高圧討論会（柏市）2000年11月
- 14) 田村剛三郎、乾雅祝、カジハク、松坂鉄矢、石川大介、洪新国、一色麻衣子、大石泰生、放射光を用いた超臨界金属流体のX線小角散乱測定、第41回高圧討論会（柏市）2000年11月
- 15) 乾雅祝、松坂鉄矢、洪新国、田村剛三郎、石川大介、カジハク、船越賢一、内海渉、放射光を用いた超臨界流体セレンのX線回折実験、第41回高圧討論会（柏市）2000年11月
- 16) 仙田康浩、下條冬樹、星野公三、第一原理分子動力学法による液体Cs-Tl合金のイオン構造と電子状態、日本物理学会（関西大）2000年3月
- 17) 宗尻修治、仙田康浩、下條冬樹、星野公三、正木国彦、伊丹俊夫、石井慶信、液体Snの構造と拡散—第一原理分子動力学シミュレーション、日本物理学会（関西大）2000年3月
- 18) 下條冬樹、星野公三、善甫康成、砒素・カルコゲン混合系の第一原理分子動力学シミュレーション、日本物理学会（新潟大）2000年9月
- 19) 宗尻修治、下條冬樹、星野公三、正木国彦、伊丹俊夫、第一原理分子動力学シミュレーションによる液体Geの自己拡散係数、日本物理学会（新潟大）2000年9月
- 20) 仙田康浩、下條冬樹、星野公三、第一原理分子動力学法による高温・高圧下での液体リンの構造、日本物理学会（新潟大）2000年9月

2001年

- 1) 乾雅祝、洪新国、松坂鉄矢、田村剛三郎、石川大介、カジハク、舟越賢一、内海

- 渉、放射光を用いた超臨界流体セレンのX線回折実験Ⅱ、日本物理学会（2001年3月）中央大
- 2) 田村剛三郎、乾雅祝、カジハク、松坂鉄矢、石川大介、洪新国、一色麻衣子、大石泰生、放射光を用いた超臨界金属流体のX線小角散乱実験Ⅲ、日本物理学会（2001年3月）中央大
 - 3) カジハク、乾雅祝、田村剛三郎、セレンの超臨界領域におけるX線小角散乱Ⅳ、日本物理学会（2001年3月）中央大
 - 4) 松坂鉄矢、洪新国、乾雅祝、田村剛三郎、石川大介、カジハク、舟越賢一、内海渉、放射光を用いた超臨界流体水銀のX線回折実験、日本物理学会（2001年3月）中央大
 - 5) K.Tamura, M.Inui, T.Matsusaka, D.Ishikawa, M.H.Kazi, X.Hong M.Isshiki and Y.Oh,ishi, Small angle x-ray scattering measurements for supercritical fluid metals using synchrotron radiation, 11th Int. Conf. on Liquid and Amorphous Metals, 2001 Sept., Yokohama.
 - 6) M.Inui, X.Hong, T.Matsusaka, D.Ishikawa, M.H.Kazi, K.Tamura, K.Funakoshi and W.Utsumi, X-ray diffraction measurements for expanded fluid Se using synchrotron radiation up to the dense vapor region, 11th Int. Conf. on Liquid and Amorphous Metals, 2001 Sept., Yokohama.
 - 7) M.H.Kazi, M.Inui and K.Tamura, A study of density fluctuations near the critical point of fluid Se by small angle x-ray scattering, 11th Int. Conf. on Liquid and Amorphous Metals, 2001 Sept., Yokohama.
 - 8) X.Hong, M.Inui, T.Matsusaka, D.Ishikawa M.H.Kazi and K.Tamura, X-ray diffraction measurements for expanded fluid mercury using synchrotron radiation: from the liquid to dense vapor, 11th Int. Conf. on Liquid and Amorphous Metals, 2001 Sept., Yokohama.
 - 9) M.Inui and K.Tamura, Structural studies of supercritical fluid metals using synchrotron radiation (invited), 11th Int. Conf. on Liquid and Amorphous Metals, 2001 Sept., Yokohama.
 - 10) K.Tamura, Int. Symp. on Materials Processing for Nanostructured Device 2001, Structural studies of fluid metals using synchrotron radiation (invited), (2001 Sept.) Kyoto.
 - 11) 田村剛三郎、SPring-8における超臨界金属流体の構造研究—膨張する水銀—（依頼講演）、産学交流フォーラムM21、（2001年9月）大阪
 - 12) K.Tamura, Structural studies of fluid Hg and Se using synchrotron radiation (invited),

WE-Heraus Seminar (2001 Oct.) Bad Honnef(Germany).

- 13) 乾雅祝、洪新国、松坂鉄矢、田村剛三郎、石川大介、カジハク、舟越賢一、内海渉、放射光を用いた超臨界流体セレンのX線回折実験Ⅱ、第42回高圧討論会(2001年11月)神戸市
- 14) 洪新国、松坂鉄矢、乾雅祝、田村剛三郎、石川大介、カジハク、舟越賢一、内海渉、放射光を用いた超臨界流体水銀のX線回折実験、第42回高圧討論会(2001年11月)神戸市
- 15) カジハク、乾雅祝、田村剛三郎、流体セレンの超臨界領域におけるX線小角散乱Ⅲ、第42回高圧討論会(2001年11月)神戸市
- 16) 田村剛三郎、乾雅祝、カジハク、松坂鉄矢、石川大介、洪新国、一色麻衣子、大石泰生、放射光を用いた超臨界金属流体のX線小角散乱実験Ⅱ、第42回高圧討論会(2001年11月)神戸市
- 17) K.Tamura, Recent developments in structural studies of fluid metals at SPring-8 (invited), 3rd Conf. on Liquid and Soft Matter Physics (2001 Dec.) Shanghai.
- 18) 下條冬樹、星野公三、善甫康成、第一原理分子動力学法による液体砒素・カルコゲン混合系の構造と電子状態、日本物理学会(中央大)2001年3月
- 19) 宗尻修治、下條冬樹、星野公三、正木国彦、伊丹俊夫、石井慶信、高温の液体スズの構造—分子動力学シミュレーション、日本物理学会(中央大)2001年3月
- 20) 仙田康浩、下條冬樹、星野公三、第一原理分子動力学法による液体リンの圧力誘起構造相転移、日本物理学会(中央大)2001年3月
- 21) 下條冬樹、星野公三、善甫康成、液体砒素・カルコゲン混合系の構造と電子状態の圧力依存性、日本物理学会(徳島文理大)2001年9月
- 22) 仙田康浩、下條冬樹、星野公三、第一原理分子動力学法による液体リンのイオン構造と電子状態、日本物理学会(徳島文理大)2001年9月
- 23) 宗尻修治、下條冬樹、星野公三、伊丹俊夫、第一原理分子動力学シミュレーションによる液体ゲルマニウムの動的構造、日本物理学会(徳島文理大)2001年9月
- 24) 星野公三、下條冬樹、液体ゲルマニウムの動的構造の理論、日本物理学会(徳島文理大)2001年9月

2002年

- 1) 田村剛三郎、放射光を用いた超臨界金属流体の静的・動的構造の研究(依頼講演)、

平成 13 年度京都大学原子炉実験所専門研究会（2002 年 2 月）熊取

- 2) 乾雅祝、洪新国、田村剛三郎、石川大介、カジハク、伊藤英之、伊藤有、放射光を用いた超臨界流体水銀の X 線回折実験Ⅱ、日本物理学会（2002 年 3 月）立命館大
- 3) 石川大介、乾雅祝、田村剛三郎、洪新国、カジハク、伊藤英之、伊藤有、Baron Alfred、田中良和、筒井智嗣、三輪大五、石川哲也、流体水銀の X 線非弾性散乱測定、日本物理学会（2002 年 3 月）立命館大
- 4) 田村剛三郎、乾雅祝、石川大介、洪新国、伊藤英之、伊藤有、カジハク、一色麻衣子、大石泰生、放射光を用いた超臨界金属流体の X 線小角散乱実験Ⅳ、日本物理学会（2002 年 3 月）立命館大
- 5) カジハク、乾雅祝、田村剛三郎、セレンの超臨界領域における X 線小角散乱Ⅴ、日本物理学会（2002 年 3 月）立命館大
- 6) 伊藤有、田村剛三郎、乾雅祝、洪新国、伊藤英之、カジハク、石川大介、伊藤英之、一色麻衣子、大石泰生、放射光を用いた超臨界流体水銀の X 線小角散乱実験、日本金属学会（2002 年 3 月）東京理科大
- 7) 伊藤英之、田村剛三郎、乾雅祝、洪新国、石川大介、カジハク、伊藤有、放射光を用いた超臨界流体水銀の X 線回折実験、日本金属学会（2002 年 3 月）東京理科大
- 8) 石川大介、乾雅祝、田村剛三郎、洪新国、カジハク、伊藤英之、伊藤有、Baron Alfred、田中良和、筒井智嗣、流体水銀の X 線非弾性散乱測定、日本金属学会（2002 年 3 月）東京理科大
- 9) K.Tamura, Static and dynamic structure of fluid mercury, 7th Int. Forum on Structure and Properties of Disordered Materials(2002 Sept.) SPring-8.
- 10) 乾雅祝、田村剛三郎、石川大介、伊藤英之、伊藤有、放射光を用いた超臨界流体水銀の X 線回折実験Ⅲ、日本物理学会（2002 年 9 月）中部大
- 11) 石川大介、乾雅祝、田村剛三郎、田中克志、伊藤英之、伊藤有、Baron Alfred、田中良和、筒井智嗣、石川哲也、流体水銀の X 線非弾性散乱測定Ⅱ、日本物理学会（2002 年 9 月）中部大
- 12) 田村剛三郎、伊藤有、乾雅祝、石川大介、伊藤英之、一色麻衣子、大石泰生、放射光を用いた超臨界流体水銀の X 線小角散乱測定、日本物理学会（2002 年 9 月）中部大
- 13) 乾雅祝、膨張する液体水銀の X 線非弾性散乱測定（シンポジウム講演）、日本物理

学会 (2002 年 9 月) 中部大

- 14) 石川大介、乾雅祝、田村剛三郎、田中克志、伊藤英之、伊藤有、Baron Alfred、田中良和、筒井智嗣、石川哲也、流体水銀の X 線非弾性散乱測定 II、日本金属学会 (2002 年 11 月) 阪大
- 15) 乾雅祝、田村剛三郎、伊藤英之、伊藤有、佐藤江平、三船耕平、草刈美里、放射光を用いた超臨界流体水銀の X 線回折実験 II、第 43 回高圧討論会 (2002 年 11 月) 愛媛大
- 16) 田村剛三郎、乾雅祝、伊藤有、伊藤英之、石川大介、一色麻衣子、大石泰生、放射光を用いた超臨界流体水銀の X 線小角散乱測定、第 43 回高圧討論会 (2002 年 11 月) 愛媛大
- 17) 石川大介、乾雅祝、田村剛三郎、伊藤英之、伊藤有、田中克志、松田和博、佐藤江平、三船耕平、草刈美里、Baron Alfred、田中良和、筒井智嗣、石川哲也、流体水銀の X 線非弾性散乱測定、第 43 回高圧討論会 (2002 年 11 月) 愛媛大
- 18) 仙田康浩、下條冬樹、星野公三、第一原理分子動力学法による高温高圧下の液体合金のイオン構造、日本物理学会 2002 年第 57 回年次大会
- 19) 後藤隆一、下條冬樹、星野公三、液体 In-Te 混合系の第一原理分子動力学シミュレーション、日本物理学会 2002 年第 57 回年次大会
- 20) 下條冬樹、星野公三、善甫康成、液体砒素・硫黄混合系の構造と電子状態の組成依存性、日本物理学会 2002 年第 57 回年次大会
- 21) 下條冬樹、星野公三、善甫康成、高圧下における液体テルルの構造と電子状態
- 22) 日本物理学会 2002 年秋季大会
- 23) 仙田康浩、下條冬樹、星野公三、高温高圧下における液体アルカリ金属—鉛合金の第一原理分子動力学シミュレーション、日本物理学会 2002 年秋季大会
- 24) 星野公三、液体金属の動的構造の理論、日本物理学会 2002 年秋季大会
- 25) 後藤隆一、下條冬樹、星野公三、液体 In_2Te_3 混合系の構造と電子状態、日本物理学会 2002 年秋季大会

2003 年

- 1) 田村剛三郎、乾雅祝、流体水銀の X 線非弾性散乱測定 (企画講演)、日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム (2003 年 1 月) 姫路市
- 2) 松田和博、草刈美里、乾雅祝、伊藤有、伊藤英之、三船耕平、佐藤江平、田村剛三郎、放射光を用いた流体ルビジウムの X 線回折実験、日本物理学会 (2003 年 3 月) 東北大

- 3) 石川大介、乾雅祝、田村剛三郎、松田和博、伊藤英之、伊藤有、草刈美里、佐藤江平、三船耕平、内藤愛雄、Baron Alfred、田中良和、筒井智嗣、石川哲也、流体水銀のX線非弾性散乱測定Ⅲ、日本物理学会（2003年3月）東北大
- 4) 田村剛三郎、伊藤有、佐藤江平、乾雅祝、松田和博、三船耕平、草刈美里、伊藤英之、石川大介、大石泰生、放射光を用いた超臨界流体水銀のX線小角散乱測定Ⅱ、日本物理学会（2003年3月）東北大
- 5) 伊藤英之、田村剛三郎、乾雅祝、松田和博、石川大介、伊藤有、三船耕平、草刈美里、放射光を用いた超臨界流体水銀のX線回折実験、日本金属学会（2003年3月）千葉大
- 6) 伊藤有、田村剛三郎、乾雅祝、松田和博、石川大介、伊藤英之、佐藤江平、草刈美里、三船耕平、放射光を用いた超臨界流体水銀のX線小角散乱実験、日本金属学会（2003年3月）千葉大
- 7) 石川大介、乾雅祝、内藤愛雄、田村剛三郎、松田和博、草刈美里、三船耕平、佐藤江平、Baron Alfred、田中良和、筒井智嗣、石川哲也、流体水銀のX線非弾性散乱測定Ⅲ、日本金属学会（2003年3月）千葉大
- 8) 松田和博、草刈美里、乾雅祝、伊藤有、伊藤英之、三船耕平、佐藤江平、田村剛三郎、放射光を用いた流体ルビジウムのX線回折実験、日本金属学会（2003年3月）千葉大
- 9) 三船耕平、田村剛三郎、乾雅祝、松田和博、伊藤英之、伊藤有、草刈美里、石川大介、佐藤江平、放射光を用いた超臨界流体セレンのX線回折実験、日本金属学会（2003年3月）千葉大
- 10) 乾雅祝、三船耕平、松田和博、草刈美里、石川大介、佐藤江平、田村剛三郎、放射光を用いた超臨界流体セレンのX線回折実験Ⅳ、日本物理学会（2003年9月）岡山大
- 11) 田村剛三郎、佐藤江平、乾雅祝、松田和博、三船耕平、草刈美里、石川大介、大石泰生、放射光を用いた超臨界流体セレンのX線小角散乱測定、日本物理学会（2003年9月）岡山大
- 12) 石川大介、乾雅祝、田村剛三郎、松田和博、草刈美里、佐藤江平、三船耕平、内藤愛雄、Baron Alfred、田中良和、筒井智嗣、石川哲也、流体水銀のX線非弾性散乱測定Ⅳ、日本物理学会（2003年9月）岡山大
- 13) 松田和博、草刈美里、乾雅祝、佐藤江平、三船耕平、石川大介、田村剛三郎、放射光を用いた流体ルビジウムのX線回折実験Ⅱ、日本物理学会（2003年9月）岡

山大

- 14) 石川大介、X線非弾性散乱による流体水銀の動的構造（シンポジウム講演）、日本物理学会（2003年9月）岡山大
- 15) K. Tamura, Structural Studies of Expanded Fluid Metals using Synchrotron Radiation (invited), 8th IUMRS International Conference on Advanced Materials, 2003 Oct., Yokohama.
- 16) 佐藤江平、石川大介、三船耕平、草刈美里、田村剛三郎、松田和博、乾雅祝、超臨界流体セレンのX線小角散乱実験、日本金属学会（2003年10月）北大
- 17) 草刈美里、松田和博、乾雅祝、三船耕平、佐藤江平、石川大介、田村剛三郎、放射光を用いた流体ルビジウムのX線回折実験、日本金属学会（2003年10月）北大
- 18) K. Tamura, Structural Studies of Supercritical Fluid Metals using Synchrotron Radiation (invited), 日本金属学会（2003年10月）北大
- 19) 乾雅祝、三船耕平、松田和博、草刈美里、佐藤江平、石川大介、田村剛三郎、放射光を用いた超臨界流体セレンのX線回折測定Ⅲ、第44回高圧討論会（2003年11月）慶大
- 20) 田村剛三郎、佐藤江平、乾雅祝、松田和博、三船耕平、草刈美里、傍島農之、西井匠、石川大介、大石泰生、放射光を用いた超臨界流体セレンのX線小角散乱測定、第44回高圧討論会（2003年11月）慶大
- 21) 乾雅祝、佐藤江平、傍島農之、松田和博、西井匠、草刈美里、三船耕平、石川大介、田村剛三郎、大石泰生、放射光を用いた超臨界流体水銀のX線小角散乱測定Ⅱ、第44回高圧討論会（2003年11月）慶大
- 22) 石川大介、乾雅祝、松田和博、三船耕平、佐藤江平、草刈美里、田村剛三郎、Baron Alfred、田中良和、筒井智嗣、石川哲也、流体水銀のX線非弾性散乱測定Ⅲ、第44回高圧討論会（2003年11月）慶大
- 23) 松田和博、草刈美里、乾雅祝、三船耕平、佐藤江平、石川大介、田村剛三郎、放射光を用いた流体ルビジウムのX線回折実験、第44回高圧討論会（2003年11月）慶大
- 24) 三船耕平、松田和博、石川大介、草刈美里、佐藤江平、田村剛三郎、乾雅祝、放射光を用いた超臨界流体セレンのX線回折実験、材料物性工学談話会（2003年11月）京大
- 25) 後藤隆一、宗尻修治、下條冬樹、星野公三、液体 Ge-Sn 混合系の第一原理分子動力

学シミュレーション、日本物理学会第 58 回年次大会(東北大)2003 年 3 月

- 26) 下條冬樹、星野公三、善甫康成、高圧下における液体 GaSb の構造と電子状態、日本物理学会第 58 回年次大会(東北大)2003 年 3 月
- 27) 原田晶子、下條冬樹、星野公三、第一原理・古典ハイブリッド分子動力学法によるナノ構造化グラファイト中の水素の動的性質 II、日本物理学会第 58 回年次大会(東北大)2003 年 3 月
- 28) 田中俊一郎、下條冬樹、星野公三、分子動力学シミュレーションによる流体水銀の動的構造、日本物理学会 2003 年秋季大会(岡山大)2003 年 9 月
- 29) 後藤隆一、宗尻修治、下條冬樹、星野公三、液体 Ge-Sn 混合系の構造と電子状態、日本物理学会 2003 年秋季大会(岡山大)2003 年 9 月
- 30) 下條冬樹、安仁屋勝、宗尻修治、星野公三、善甫康成、熔融 CuI の構造と電子状態、日本物理学会 2003 年秋季大会(岡山大)2003 年 9 月
- 31) 仙田康浩、下條冬樹、星野公三、第一原理シミュレーションによる高温高圧下の液体リンの動的性質、日本物理学会 2003 年秋季大会(岡山大)2003 年 9 月

2004 年

- 1) 松田和博、乾雅祝、草刈美里、佐藤江平、三船耕平、傍島農之、西井匠、石川大介、田村剛三郎、放射光を用いた流体ルビジウムの X 線回折実験、日本物理学会 (2004 年 3 月) 九州大
- 2) 乾雅祝、佐藤江平、田村剛三郎、松田和博、三船耕平、草刈美里、石川大介、傍島農之、西井匠、大石泰生、放射光を用いた超臨界流体水銀の X 線小角散乱測定 III、日本物理学会 (2004 年 3 月) 九州大
- 3) 坂口佳史、田村剛三郎、液体セレンの光誘起半導体-金属転移の検証、日本物理学会 (2004 年 3 月) 九州大
- 4) 佐藤江平、田村剛三郎、乾雅祝、松田和博、三船耕平、草刈美里、石川大介、傍島農之、西井匠、大石泰生、放射光を用いた超臨界流体セレンの X 線小角散乱測定 II、日本物理学会 (2004 年 3 月) 九州大
- 5) 堀内尚紘、坂口佳史、田村剛三郎、二次元的拘束を受けたイオウ高分子の挙動、日本物理学会 (2004 年 3 月) 九州大
- 6) 内藤愛雄、乾雅祝、田村剛三郎、放射光を用いた液体ゲルマニウムシリコン合金の X 線回折測定、日本物理学会 (2004 年 3 月) 九州大
- 7) 坂口佳史、田村剛三郎、液体セレンの光誘起半導体-金属転移、日本金属学会 (2004 年 3 月) 東京工大

- 8) 佐藤江平、石川大介、草刈美里、三船耕平、傍島農之、西井匠、田村剛三郎、松田和博、乾雅祝、超臨界流体セレンの X 線小角散乱測定 II、日本金属学会 (2004 年 3 月) 東京工大
- 9) 松田和博、乾雅祝、草刈美里、佐藤江平、三船耕平、傍島農之、西井匠、石川大介、田村剛三郎、放射光を用いた流体ルビジウムの X 線回折実験、日本金属学会 (2004 年 3 月) 東京工大
- 10) 星野公三、田中俊一郎、下條冬樹、分子動力学シミュレーションによる流体水銀の動的構造 II、日本物理学会第 59 回年次大会 (九大) 2004 年 3 月
- 11) 下條冬樹、安仁屋勝、星野公三、善甫康成、第一原理分子動力学法による液体ルビジウムの構造の密度依存性、日本物理学会第 59 回年次大会 (九大) 2004 年 3 月
- 12) 仙田康浩、下條冬樹、星野公三、第一原理シミュレーションによる高温高圧下の液体リンの動的性質 II、日本物理学会第 59 回年次大会 (九大) 2004 年 3 月

3. 出版物

- 1) Y. Sakaguchi and K. Tamura, Photo-induced metastability in amorphous semiconductors, ed. by A. Kolobov, Chapter 12 pp199-217, WILEY-VCH GmbH (Weinheim), 2003.

研究成果による工業所有権の出願・取得状況

- 1) 試料容器および流体試料分析方法、松田和博、田村剛三郎、乾雅祝、加藤昌弘、特許出願 2003-315946, 2003 年 9 月.

収録した論文

本研究課題に関係する主要な論文と解説等を以下の順序で収録した。

- 1) K.Tamura and M.Inui, In situ x-ray diffraction and XAFS studies of expanded fluid selenium, *MRS Bulletin*, 24 26-31 (1999).
- 2) K.Tamura, M.Inui and S.Hosokawa, Energy dispersive x-ray diffraction equipment for fluids at extreme condition of high pressure and high pressures, *Rev.Sci.Instrum.* 70 144-152(1999).
- 3) K.Tamura, M.Inui, I.Nakaso, Y.Oh'ishi, K.Funakoshi and W.Utsumi, Structural studies of expanded fluid mercury using synchrotron radiation, *J.Non-Cryst.Solids*, 250-252 148-153 (1999).
- 4) M.Inui, K.Tamura, I.Nakaso, Y.Oh'ishi, K.Funakoshi and W.Utsumi, X-ray diffraction measurements for expanded fluid Se using synchrotron radiation, *J.Non-Cryst.Solids*, 250-252 519-524 (1999).
- 5) M.Inui, K.Tamura, J.-L.Hazemann, D.Raoux, Y.Soldo, R.Argoud and J.F.Jal, X-ray absorption fine structure studies on expanded fluid Se: from liquid to dense vapor, *J.Non-Cryst.Solids*, 250-252 525-530 (1999).
- 6) Y. Zempo, F. Shimojo, K. Hoshino and M. Watabe, Structural and electronic properties of liquid rubidium, *Computational Materials Science*, 14 19 - 27 (1999).
- 7) S.Munejiri, F.Shimojo and K.Hoshino, Density dependence of the velocity of sound in expanded liquid mercury by a large-scale molecular-dynamics simulation, *J. Non-Cryst. Solids*, 250-252, 144-147 (1999).
- 8) F.Shimojo, K.Hoshino, Y.Zempo and M.Watabe, Structure and electronic properties of supercritical selenium: an ab initio molecular-dynamics simulation, *J. Non-Cryst. Solids*, 250-252 542-546 (1999).
- 9) K.Hoshino, F.Shimojo and Y.Zempo, Dynamic structure of expanded liquid rubidium from a molecular-dynamic simulation, *J.Phys.: Condens. Matter*, 12 4313-4326 (2000).
- 10) X.Hong, M.Inui, K.Tamura, T.Matsuoka, D.Ishikawa and M.H.Kazi, Structural studies on expanded fluid selenium up to metallic region using synchrotron radiation, *J.Non-Cryst.Solids*, 293-295 446-452 (2001).
- 11) K.Tamura and M.Inui, Structural changes and the metal-nonmetal transition in supercritical fluids, *J.Phys.:Condens.Matter*, 13 R337-R368 (2001).

- 12) K.Tamura, M.Inui, K.Funakoshi and W.Utsumi, X-ray diffraction technique in energy dispersive mode at SPring-8 for fluids at high temperature and high pressures, Nuclear Instruments and Methods Section A, 467-468 1065-1068 (2001).
- 13) K.Tamura, M.Inui, T.Matsusaka, D.Ishikawa, M.H.Kazi, X.Hong, M.Issiki and Y.Oh'ishi, Small Angle X-ray Scattering Measurements for Supercritical Fluid Metals Using Synchrotron Radiation, J.Non-Cryst.Solids, 312-314 269-273 (2002).
- 14) M.Inui, X.Hong, T.Matsusaka, D.Ishikawa, M.H.Kazi, K.Tamura, K.Funakoshi and W.Utsumi, X-ray Diffraction Measurements for Expanded Fluid Se Using Synchrotron Radiation up to Dense Vapor Region, J.Non-Cryst.Solids, 312-314 274-278 (2002).
- 15) X.Hong, T.Matsusaka, M.Inui, D.Ishikawa, M.H.Kazi, K.Tamura, K.Funakoshi and W.Utsumi, X-ray Diffraction Measurements for Expanded Fluid Mercury Using Synchrotron: From Liquid to Dense Vapor, J.Non-Cryst.Solids, 312-314 284-289 (2002).
- 16) M.Inui and K.Tamura, Structural studies of supercritical fluid metals using synchrotron radiation, J.Non-Cryst.Solids, 312-314 247-255 (2002).
- 17) F.Shimojo, K.Hoshino and Y.Zempo, Electronic and atomic structures of supercritical fluid selenium: ab initio molecular-dynamics simulations, J.Non-Cryst.Solids, 312-314 290-293 (2002).
- 18) M.Inui, X.Hong and K.Tamura, Local structure of expanded fluid mercury using synchrotron radiation: from liquid to dense vapor, Phys. Rev. B, 68 094108 (1-9) (2003).
- 19) M.Inui and K.Tamura, Static and dynamic structures of expanded fluid mercury, Z. Phys. Chem., 217 1045-1063 (2003).
- 20) K.Hoshino, Dynamical structure of liquid metals: recent theoretical progress, Z. Phys. Chem. 217, 817 - 829 (2003).
- 21) K.Tamura M.Inui, K.Matsuda and D.Ishikawa, Structural studies of expanded fluid metals using synchrotron radiation, Trans MRS-J, 29[1] 83-88 (2004).
- 22) K.Matsuda, K.Tamura, M.Katoh and M.Inui, Molybdenum cell for x-ray diffraction measurements of fluid alkali metals at high temperatures and high pressures, Rev. Sci. Instrum., 75 709-712 (2004).
- 23) D.Ishikawa, M.Inui, K.Tamura, A.Q.R.Baron, S.Tutui, Y.Tanaka and T.Ishikawa, Collective dynamics in dense Hg vapor, J.Phys.: Condens. Matter, 16 L45-L50.
- 24) D.Ishikawa, M.Inui, K.Tamura, A.Q.R.Baron and S.Tutui, Fast sound in expanded fluid Hg accompanying the metal-non-metal transition, Phys.Rev.Lett., submitted.

- 25) 田村剛三郎, 乾雅祝, 固体物理, SPring-8 における超臨界金属流体の構造研究 — 膨張する水銀 —, 34 199-207 (1999).
- 26) 田村剛三郎, 超臨界金属流体の構造研究 — 隠されていたもうひとつのゆらぎ —, SPring-8 利用者情報, 9 203-213 (2004).