

氏名	はち 蜂 谷 かん 寛
学位(専攻分野)	博士 (エネルギー科学)
学位記番号	エネ博第8号
学位授与の日付	平成11年3月23日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
研究科・専攻	エネルギー科学研究科エネルギー基礎科学専攻
学位論文題目	Bonding and diffusional dynamics of d-and f-shell metals and their compounds (dおよびf殻金属とその化合物の結合と拡散挙動)

(主査)

論文調査委員 教授 伊藤靖彦 教授 吉田起國 教授 八尾 健

論文内容の要旨

本論文は、d殻及びf殻金属およびその多様な化合物における化学結合を、半経験的な原子間相互作用の表式により表現し、これを積極的に固体合金の動的構造の理解へと応用し、原子の移動を促進させる一般的な方策を探求するという目的のもとに進められた研究の成果をまとめたもので、以下の7章より成る。

第1章は序論であり、研究の背景についてのべ、本論文で用いられた半経験的な原子間相互作用モデルと、動的構造のシミュレーション法としての分子動力学法の導入を行い、本論文の目的を記している。

第2章では、Ni-Y金属間化合物中の拡散現象について述べている。実験的研究により異常に大きな成長速度を持つことが知られる、遷移金属Laves相金属間化合物、Ni-Yを対象に、分子動力学法を用いた計算機実験によって、構成原子の拡散挙動と格子欠陥などの微視的構造との関係について検討している。構成原子の運動を、Niの原子空孔の存在する構造、および、結晶粒界のある構造について計算した結果、前者では完全結晶の場合との違いは見出されず、拡散挙動が確認されなかった一方で、後者では粒界面を含む数格子分の範囲で、構成原子の活発な動きが可能であることを見出している。

第3章では、 α -Th、 δ -Puの原子間ポテンシャルについて述べている。軽アクチニド金属、及び、その金属間化合物に適用可能な原子間ポテンシャルを得るべく、遷移金属に対する表式に対応する、f結合に対する表式を定め、f軌道の複雑さを反映した原子間のポテンシャル関数を定めている。弾性定数の実験データの得られている α -Th、 δ -Puについて、このポテンシャル関数を用いた計算結果との比較を行っている。両者の比較の結果により、結合角依存性を取り入れることによつて、最近接のみの結合を考慮したモデルによつても、実験データを再現することができ、遠距離の相互作用よりも結合角への依存が重要であることを見出している。

第4章では、Al金属の原子間ポテンシャルについて述べている。Al金属の相互作用を、sp-価電子をほとんど自由な電子の近似(NFE近似)で、d-価電子を強束縛近似(TB近似)で取り扱ったhybridized NFE-TBB modelにより定め、前者の比較的遠距離にまでわたる振動型の相互作用によって正しい結晶構造の安定性を、後者の結合角に強く依存する近距離の相互作用によって原子間の結合の方向性を表現している。弾性定数およびfcc-bcc-hcp間の構造エネルギー差を計算し実験値と比較した結果、弾性定数についてはほぼ最近接の相互作用のみによって再現することができ、Al金属の構造であるfcc構造の安定性については第4近接の相互作用まで取り入れることによつて実現することが可能であることを見出している。

第5章では、希土類金属の原子間ポテンシャルについて述べている。ランタニドを含む希土類金属の原子間相互作用を、遷移金属と同様に、ほとんど自由な電子の近似によつてsp-価電子を、強束縛近似(TB近似)によつてd-価電子を取り扱った、hybridized NFE-TBB modelの原子間ポテンシャルによつて表現している。弾性定数の計算結果と実験値とを比較したところ、結合角に強く依存するd-価電子による相互作用への依存性が明らかに見られた一方で、その効果は遷移金属よりも弱いことを見出している。

第6章では、Al-希土類Laves相金属間化合物の原子間ポテンシャルについて述べている。Al-希土類のLaves相の金属間化合物相における原子間の相互作用を、Al金属、希土類金属の場合と同様のhybridized NFE-TBB modelによって表現し、 Al_2Nd 、 Al_2Pr の弾性定数の実験値との比較によって検証している。2元合金の構成元素の純金属に対する原子間ポテンシャルから、合金の原子間ポテンシャルを決定する方法を定めることに成功しており、Al-希土類のLaves相の金属間化合物がかなり複雑な多体相互作用を含んでいることを見出している。

第7章では、本論文の成果をまとめて結びとしている。

論文審査の結果の要旨

本論文は、d殻及びf殻金属およびその多様な化合物における化学結合を、半経験的な原子間相互作用の表式により表現し、これを固体合金の動的構造の理解へと応用した研究の成果をまとめたもので、得られた主な成果は、以下の通りである。

1. d-殻及びf-殻金属の原子間相互作用を、ほとんど自由な電子の近似（NFE近似）により取り扱われる価電子の相互作用と強束縛近似（TB近似）により取り扱われる価電子の相互作用に分ける、hybridized NFE-TBB modelにより定め、従来からこのモデルによって取り扱われてきた遷移金属、アクチニド元素のみならず、アルミニウム、希土類へとその適用範囲を広めた。弾性定数の実験値と本モデルを用いた計算値との比較によって、これらの金属における原子間相互作用が、結合角に大きく依存することを見出した。

2. 上記のhybridized NFE-TBB modelを、Laves相の金属間化合物相を例にとって、2元合金に適用した。Al-希土類のLaves相の金属間化合物相の原子間ポテンシャルを、Al金属、希土類金属のポテンシャル・パラメータと金属間化合物相の弾性定数の実験値によって定め、構成元素の純金属に対する原子間ポテンシャルからその化合物の原子間ポテンシャルを定めることが可能であることを示した。

3. 上記のhybridized NFE-TBB modelを、遷移金属Laves相の金属間化合物相を例にとって、分子動力学法による計算機シミュレーションに応用した。実験的研究により異常に大きな成長速度を持つことが知られる、遷移金属Laves相金属間化合物、 Ni_2Y を対象にして構成原子の拡散挙動を検討し、粒界面を含む数格子分の範囲で、構成原子の活発な動きが可能であることを見出した。

以上、本論文は、その成果を固体合金の動的構造の理解へと応用することによって、原子の移動を促進させる一般的な方策を探求したものであり、学術上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士（エネルギー科学）の学位論文として価値あるものと認める。また、平成11年2月12日実施した論文内容とそれに関連した試問の結果合格と認めた。