

X線中性子 PDF 解析による結晶性物質の局所構造解析

樹神克明

日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門

PDF とは原子対相関関数 (atomic Pair Distribution Function) の略であり、ガラスや液体などの構造を調べる際に多く用いられる量である。ガラスや液体では原子配列の周期性の短さによって回折ピークが広がってしまうので、逆格子空間の情報である回折データだけで構造を解析するのは難しい。そこで回折データ $S(Q)$ (正確には回折データを原子数およびその散乱長で規格化した散乱関数) を以下の式を用いてフーリエ変換する¹⁾。

$$G(r) = \frac{2}{\pi} \int Q[S(Q) - 1] \sin Qr dr$$

こうして得られる原子対相関関数 (PDF) $G(r)$ は、大雑把な言い方をすれば、ある原子から距離 r だけ離れた位置に存在する原子の数、あるいは確率を示す。これは実空間の関数であり、周期性に依存しないので、完全な結晶周期性をもたない物質についてもその構造を調べることが可能である。

この構造解析手法を結晶性物質に適用すると、結晶性物質中に存在する「結晶周期性をもたない」構造の歪み (局所構造歪み) を観測することができる。バルクの結晶性物質の回折データにはシャープなブラッグピークが多数存在するために、局所構造歪みに由来するブロードな散乱はバックグラウンドとみなされて見落とされがちである。しかし回折データから試料からの寄与のみを取り出して、それを PDF に変換してやれば、局所構造歪みを見落とすことはない。我々はこの結晶 PDF 解析法を主に機能性物質や強相関電子系物質に適用することにより、それら物質中に存在する局所構造歪みとその物質の機能および物性の関係を調べている。本講演ではそのような研究例として、巨大負熱膨張物質 $Mn_3Cu_{1-x}Ge_xN$ で観測された局所構造歪みと大きな負の熱膨張係数との関係²⁾、また preliminary な結果ではあるが、J-PARC に設置された高強度全散乱装置 NOVA を用いて最近行っている $LiMn_2O_4$ における伝導電子のガラス的凍結状態の観測などを紹介する。さらに今後期待される、PDF 解析法を用いた新しい実験、解析方法についても議論したい。

1) T. Egami, and S. J. L. Billinge : *Underneath the Bragg Peaks Structural Analysis of Complex Materials* (Pargamon, Amsterdam, 2003).

2) S. Iikubo, K. Kodama, T. Takenaka, H. Takagi, M. Takigawa and S. Shamoto : Phys. Rev. Lett. 101 (2008) 205901.