

原子対相関関数を用いた強相関電子系の局所構造解析

樹神 克明

日本原子力研究開発機構・物質科学研究センター

Local Structural Analysis on Correlated Electron System by Atomic Pair Distribution Function

Katsuaki Kodama

Material Science Research Center, JAEA

原子対相関関数 (atomic Pair Distribution Function : PDF) とは大雑把に言えば、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あらわす量である。その概念図を図 1 に示す。PDF は回折強度を原子数および散乱長で規格化した構造関数 $S(Q)$ を以下のようにフーリエ変換することによって得られる。[1]

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

上式で PDF を得るためには回折強度が波数 Q に対してほぼ平坦になり $Q \rightarrow \infty$ とみなせる Q 領域 (中性子では一般に 30 \AA^{-1} 以上) までの回折データが必要である。そのため回折実験はパルス中性子または放射光 X 線を用いて行われる。

PDF は実空間の関数であり周期性に依存しないので、ガラスや液体のような短距離相関しかもたない物質の原子配列の情報を調べることができる。そのためこの手法をバルクの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 $\text{Mn}_3\text{Cu}_{1-x}\text{Ge}_x\text{N}$ 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]、またスピネル化合物 LiMn_2O_4 における電荷の短距離秩序によって生じた局所構造歪みの観測 [3] などを紹介する。さらに中性子の特徴である磁気散乱を利用して、最近行われ始めた磁気対相関関数 (magnetic Pair Distribution Function : mPDF) を用いた局所磁気構造解析についても紹介する予定である。

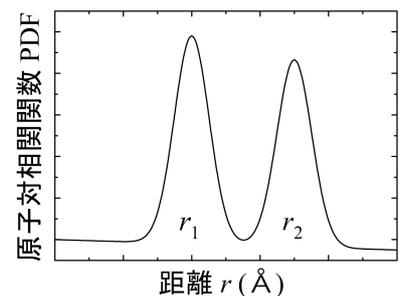
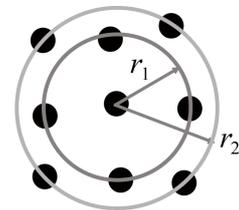


図 1 長距離秩序をもたない原子配列 (黒丸) とそれから期待される原子対相関関数 (PDF)

[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.

[3] K. Kodama, N. Igawa, S. Shamoto, K. Ikeda, H. Ohshita, N. Kaneko, T. Otomo, and K. Suzuya, *J. Phys. Soc. Jpn.* **82** (2013) 094601.