

$\text{Pr}_{0.85}\text{Ce}_{0.15}\text{Ru}_4\text{P}_{12}$  のリエントラント金属-非金属転移における  
全対称型多極子秩序構造の空間相関  
Spatial Correlation of Totally Symmetric Multipole Ordering Structure  
on the Reentrant Metal-Nonmetal Transition in  $\text{Pr}_{0.85}\text{Ce}_{0.15}\text{Ru}_4\text{P}_{12}$

岩佐和晃<sup>1,\*</sup>, 佐藤貴宏<sup>1</sup>, 斉藤耕太郎<sup>1</sup>, 中尾裕則<sup>2</sup>, 村上洋一<sup>2</sup>

<sup>1</sup> 東北大学大学院理学研究科, 〒980-8578 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-3

<sup>2</sup> 放射光科学研究施設, 〒305-0801 つくば市大穂 1-1

Kazuaki Iwasa<sup>1,\*</sup>, Takahiro Sato<sup>1</sup>, Kotaro Saito<sup>1</sup>, Hironori Nakao<sup>2</sup> and Youichi Murakami<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Tohoku University, 6-3 Aramaki-aza-aoba, Aoba-ku, Sendai, 980-8578, Japan

<sup>2</sup> Photon Factory, 1-1 Oho, Tsukuba, 305-0801, Japan

## 1 はじめに

$\text{PrRu}_4\text{P}_{12}$  における 63 K での金属-非金属転移が報告され[1]、その機構への電子相関の効果が指摘されてきた。中性子散乱[2]や X 線回折実験[3]により、 $f$  電子の全対称型高次多極子の反強の秩序と結晶超格子構造 (bcc  $\rightarrow$  sc) の形成が明らかとなり、キャリアとの混成効果が強い  $f$  電子の軌道交替配列がバンドギャップをもたらす新しいタイプの電荷密度波転移と理解された[4]。その後、10-20 % の Ce 置換により、約 45 K 以下の非金属相を経て 10 K 付近以下で再金属化するリエントラントな相転移が報告された[5]。本研究では、この現象を探るため超格子構造の空間相関を放射光 X 線回折実験により調べた。

## 2 実験

PF BL-3A, BL-4C において 5.94 keV の入射 X 線で、Sn フラックス法で合成した  $\text{Pr}_{0.85}\text{Ce}_{0.15}\text{Ru}_4\text{P}_{12}$  単結晶の超格子ピークの形状の温度依存性を測定した。

## 3 結果および考察

BL-4C で測定した非金属相 ( $7 < T < 40$  K) における超格子反射 1 1 1 のピークプロファイルを図 1 に示す。横軸は逆格子点(1, 1, 1)周りの[1 -1 0]軸方向の波数を表す。図 1(a)はリエントラント転移温度直上 13 K での測定結果で、分解能 (---) よりも遥かに幅のある裾の広がったピークが見られた (●)。このピークはシャープなローレンチアン(Lrz, ---) とブロードなローレンチアン二乗(Lsq, ---)の二成分で説明できる。一方、図 1(b)に示した金属-非金属転移温度に近い 33 K での測定では、Lsq の相対強度が小さくシャープな Lrz ピークが主要となった。Lrz 成分をもたらす超格子構造は  $10^4$  Å 程度の相関距離、Lsq 成分は 750 Å 程度の相関距離に対応する。

超格子構造が低温に向かって短距離相関化し、かつ Lsq で表されるピークが主要になるという特徴が明らかになった。リエントラント転移に向かって非

金属相超格子構造のマイクロドメインが発達する前駆的な振る舞いと考えられ、秩序する多極子が Ce 置換により強く揺らいでいることが示唆される。

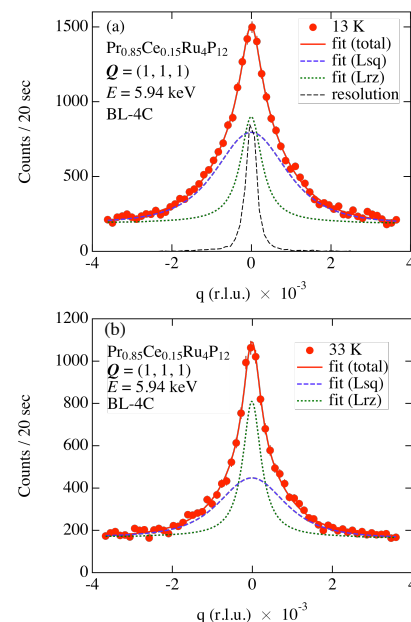


図 1 :  $\text{Pr}_{0.85}\text{Ce}_{0.15}\text{Ru}_4\text{P}_{12}$  の超格子反射ピーク。

## 4 まとめ

$\text{Pr}_{0.85}\text{Ce}_{0.15}\text{Ru}_4\text{P}_{12}$  では多極子秩序および超格子構造がマイクロドメイン化する不安定性をもち、リエントラント金属-非金属転移に至る。

## 参考文献

- [1] C. Sekine *et al.*, Phys. Rev. Lett. **79**, 3218 (1997).
- [2] K. Iwasa *et al.*, Phys. Rev. B **72**, 024414 (2005).
- [3] C. H. Lee *et al.*, Phys. Rev. B **70**, 153105 (2004).
- [4] T. Takimoto, J. Phys. Soc. Jpn. **75**, 034714 (2006).
- [5] C. Sekine *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **80**, SA024 (2011).

\* iwasa@m.tohoku.ac.jp