

Pr_{1-x}Ce_xRu₄P₁₂におけるリエントラント金属-非金属転移の量子ビーム散乱による研究

Reentrant Metal-Nonmetal Transition of Pr_{1-x}Ce_xRu₄P₁₂ Studied by Quantum Beam Scattering

岩佐和晃¹、齊藤耕太郎²、佐藤貴宏¹、中尾裕則²、村上洋一²、伊藤晋一³、横尾哲也³、川名大地⁴、J.-M. Mignot⁵
1 東北大院理、2 KEK 物構研 PF/CMRC、3 KEK 物構研中性子/CMRC、4 東大物性研、5 LLB, CEA/CNRS Saclay

PrRu₄P₁₂における $T_{MI} = 63$ K の金属-非金属転移は、Pr³⁺イオンの $4f^2$ 電子配置がもつ高次多極子として表わされる電荷自由度と伝導電子の p - f 混成効果をもたらす電荷密度波として注目された(C. Sekine et al.: PRL **79** (1997) 3218, T. Takimoto: JPSJ **75** (2006) 034714)。低温非金属相は、長周期結晶構造とPr $4f$ 電子の非等価な結晶場分裂準位スキームの配列で特徴づけられる。一方、Ce 置換系では 10 K 付近でリエントラント的に再金属化することが報告された(C. Sekine et al.: JPSJ **80** (2011) SA024)。このリエントラント転移の機構を見出すことを目的とし、Photon Factory での放射光 X 線散乱により長周期構造を、J-PARC MLF HRC 分光器などでの中性子非弾性散乱により結晶場スキームを調べた。

Ce15%試料($T_{MI} = 40$ K)の長周期構造をもたらす放射光 X 線回折プロファイルは、分解能と同程度の幅を持つ Lorentzian と幅の広い Lorentzian 二乗の和からなる。約 15 K からリエントラント転移温度 7 K に向かって、Lorentzian 二乗が幅広くなりつつ Lorentzian よりも相対的に強くなる。Lorentzian 二乗はランダム場の効いた三次元系ドメイン構造をもたらすと理解でき (L. J. Sham and B. R. Patton: PRB **13** (1976) 3151)、低温に向かってこのドメイン領域の体積が増大しつつ短距離相関化する特徴を示す。中性子非弾性散乱から、交替配列する結晶場スキームの一方が一重項と三重項の擬似縮退であることが分かる。これは秩序変数の大きさが抑制されて多極子を持つ f 電子状態が揺らぐことを示し、リエントラント転移温度直上で空間的に強く乱れた構造と考えられる。縮退の解けない $4f$ 電子状態がもたらすランダム効果による短距離相関構造の不安定性を解消するためにリエントラントに再金属化し、さらなる低温安定相へ相転移すると推測される。また、わずかながら導入される Ce⁴⁺成分によって電子ドーピングとなり、フェルミ面のネスティング条件が弱まることもリエントラント的な転移に寄与すると考えられる。

本研究は、科研費(新学術領域“重い電子系”(20102005)、基盤研究(S)(21224008)、基盤研究(A)(23244068)、挑戦的萌芽研究(24654080))の支援のもと実施した。