

# 電子多極子による金属非金属転移を示す Pr(Ru<sub>1-x</sub>Rh<sub>x</sub>)<sub>4</sub>P<sub>12</sub>におけるxと秩序変数の相関

Relation between Rh concentration and multipole order parameter  
in the metal-nonmetal Transition system Pr(Ru<sub>1-x</sub>Rh<sub>x</sub>)<sub>4</sub>P<sub>12</sub>

利用者 齊藤 耕太郎<sup>1)</sup>、岩佐 和晃<sup>1)</sup>、富安 啓輔<sup>1)</sup>、村上 洋一<sup>2)</sup>、クレア・ローレ<sup>3)</sup>、松江 秀明<sup>4)</sup>  
Koutarou SAITOU, Kazuaki IWASA, Keisuke TOMIYASU, Youichi MURAKAMI, Claire RORE, Hideaki MATSUE

所属 <sup>1)</sup>東北大院理、<sup>2)</sup>KEK CMRC、<sup>3)</sup>SOLEIL、<sup>4)</sup>日本原子力研究開発機構

## PrRu<sub>4</sub>P<sub>12</sub>の金属非金属転移

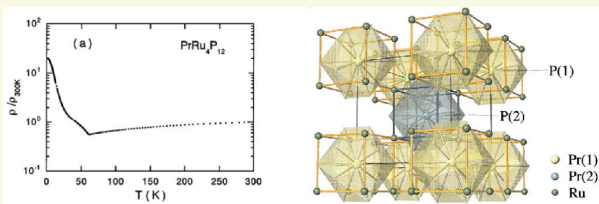


図1：電気抵抗率[1]

図2：電荷密度波と結晶構造[2]

よくある転移機構  
ネスティング → 電荷密度波  
新しい転移機構？  
ネスティング → 電荷密度波 + 反強十六極子秩序  
p-f混成

## PrRu<sub>4</sub>P<sub>12</sub>の金属非金属転移

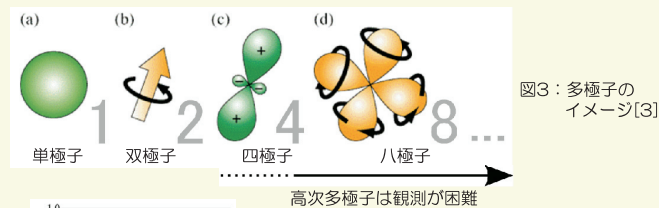


図3：多極子のイメージ[3]

高次多極子は観測が困難

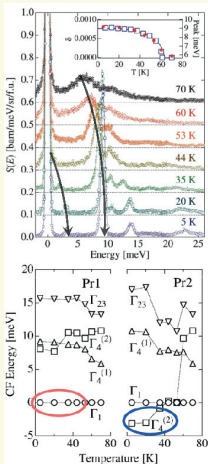


図4：PrRu<sub>4</sub>P<sub>12</sub>の結晶場準位の温度変化[5]

PrRu<sub>4</sub>P<sub>12</sub>では多極子秩序(図5)によって以下を説明できる。

- 結晶場準位の強い温度依存性(図4上)
- 低温での基底状態の入れ替わり(同下)

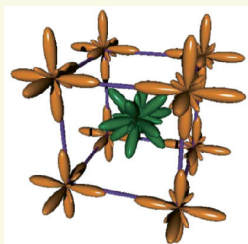


図5：PrRu<sub>4</sub>P<sub>12</sub>の4f電子の反強十六極子秩序[6]

## Rh置換効果

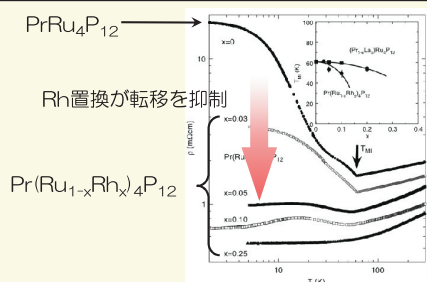


図6：Pr(Ru<sub>1-x</sub>Rh<sub>x</sub>)<sub>4</sub>P<sub>12</sub>の電気低効率[7]

Rh置換はどう転移に影響するのか？  
- 4f電子状態？  
- フェルミ面構造？

## 目的

Pr(Ru<sub>1-x</sub>Rh<sub>x</sub>)<sub>4</sub>P<sub>12</sub>の組成比を即興γ線分析により決定し、多極子秩序におけるf電子とd電子に役割に注目して、秩序相におけるRh置換効果の詳細を明らかにする。

## 結果と考察

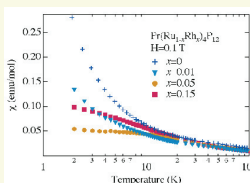


図7：Pr(Ru<sub>1-x</sub>Rh<sub>x</sub>)<sub>4</sub>P<sub>12</sub>の磁化率

低温で発散しない

PrRu<sub>4</sub>P<sub>12</sub>で三重項だった基底状態がRh置換により一重項に変化(先行研究と一致[7])

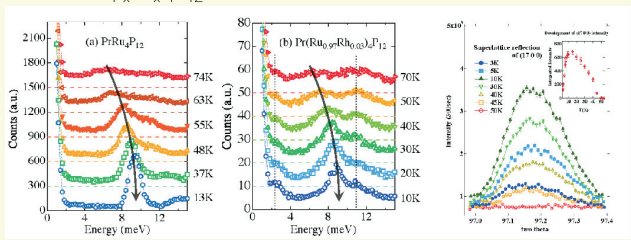


図8：Pr(Ru<sub>1-x</sub>Rh<sub>x</sub>)<sub>4</sub>P<sub>12</sub>の結晶場準位の温度変化

図9：Pr(Ru<sub>1-x</sub>Rh<sub>x</sub>)<sub>4</sub>P<sub>12</sub>の超格子反射強度の温度変化

温度変化する/しない結晶場準位

低温での構造変化

PrRu<sub>4</sub>P<sub>12</sub>のPr(1)に似たPrサイト  
秩序に寄与しない新たなPrサイト

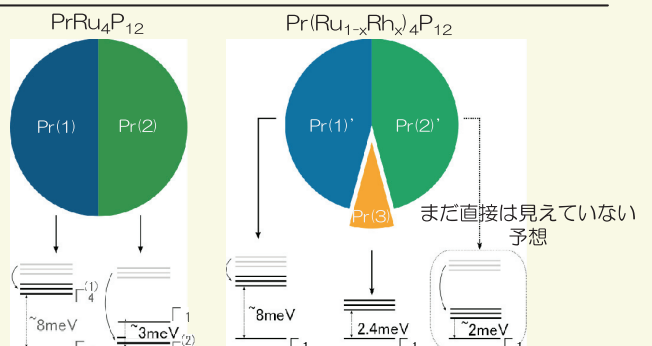
異なる励起状態による秩序  
金属相に戻った訳ではない

表1：PGAにより得られたPr(Ru<sub>1-x</sub>Rh<sub>x</sub>)<sub>4</sub>P<sub>12</sub>の元素組成比(Ru+Rh=4と仮定) 定量法としてk<sub>0</sub>-PGA法を用いて主成分元素の組成比を決定

	Pr	Ru	Rh	P
x=0.01	0.752438	3.86228	0.137718	11.2291
x=0.02	0.786904	3.69515	0.304849	11.019
x=0.03	0.91421	3.66362	0.336378	13.256
x=0.05	1.02965	3.30867	0.691334	12.4949

Prは完全充填ではない、ほぼxに比例したRh量、RT<sub>4</sub>X<sub>12</sub>構造以外のRu,Rh,Pを含有する可能性

## 結論



Rh置換はPrRu<sub>4</sub>P<sub>12</sub>の4f電子状態に対して以下の効果がある

- 局所的効果=Pr(3)の出現
- 結晶全体への効果=Pr(2)の基底状態の変化

Pr(Ru<sub>1-x</sub>Rh<sub>x</sub>)<sub>4</sub>P<sub>12</sub>の多極子秩序相は熱励起された4f電子状態の交替配列を通じて実現する

## 参考文献

- [1] C. Sekine et al., PRL 79 3218. [2] C. H. Lee et al., PRB 70 153105. [3] H. Kusunose, JPSI Online - News and Comments (Sep. 10, 2007) [4] T. Takimoto, JPSI 75 034714. [5] K. Iwasa et al., PRB 72 024414. [6] Y. Kuramoto, PTPS 176 77 [7] C. Sekine et al., Physica B 378-380 211.