

PrOs₄Sb₁₂ の四重極子感受率と超伝導

根本祐一, 間広文, 坂井一浩, 後藤輝孝, 菅原仁^A, 佐藤英行^A

新潟大院自然, 都立大理^A

充填型スクッテルダイト化合物 PrOs₄Sb₁₂ は $T_c=1.85$ K で超伝導状態に転移し, 大きな電子比熱係数や超伝導転移における比熱のとびが大きいことなどから Pr 化合物で初めての重い電子系超伝導体と考えられている. 超伝導の発現機構を考えるうえで, 結晶場の基底状態が極めて重要な出発点となる. 基底状態が非クラマース 2 重項 Γ_3 の場合, 磁気測定では直接観測することができない. 一方, 超音波による弾性定数 $(C_{11}-C_{12})/2$ は Γ_3 の応答を敏感に観測できる.

今回, 単結晶試料 PrOs₄Sb₁₂ を用いて結晶場基底状態と超伝導状態の関係および磁場中での秩序相に関する知見を得るために, 弾性定数の温度, 磁場依存性の測定を行った. その結果, 縦波 C_{11} , 横波 $(C_{11}-C_{12})/2$, C_{44} のすべてにソフト化が観測された. C_{11} はバルクモジュラス $C_B=(C_{11}+2C_{12})/3$ と $(C_{11}-C_{12})/2$ の線形結合で表されるので体積異常がなければ $(C_{11}-C_{12})/2$ のソフト化と同じ起源と考えてよい. $(C_{11}-C_{12})/2$ は 20 K 付近で極大をとり, それ以下の温度で四重極子感受率の Curie 項による $1/T$ に比例したソフト化を示し, 超伝導転移点近傍でソフト化が消失した. これは基底状態が四重極子 O_2^0 , O_2^2 に対して縮退した非クラマース 2 重項の Γ_3 であることを支持している. また, C_{44} のソフト化は基底状態に近接して存在する Γ_5 (8.2 K) の存在を示唆している. これらの実験事実は Maple らによる非弾性中性子散乱の結果と一致する^[1]. もし基底状態が Γ_1 の場合には $(C_{11}-C_{12})/2$ が四重極子感受率のバン・ブレック項によりソフト化することが考えられるが, 中性子で報告されている第 1, 第 2 励起状態の分裂幅 (8.2 K, 133 K) を考慮して四重極子感受率の温度変化を計算すると, 約 4 K 付近で極小をとり実験結果と矛盾する. したがって弾性定数の結果からは基底状態は Γ_3 であると考えられる.

次に, 磁場中での C_{44} の温度依存性の測定を行った結果, ゼロ磁場で 40 K 付近から約 1.6% のソフト化を示したものが 8 T では約 3 倍に増大し $1/T$ に比例するようなソフト化に変化した. さらに 6 T 以上の磁場領域で, 比熱^[2]などから報告されている新たな秩序相に対応した弾性異常が観測された. これは第 1 励起状態の Γ_5 がゼーマン効果によってエネルギーがシフトし, 基底状態の Γ_3 とレベルクロスすることによって四重極子秩序が発生したものと考えられる.

今回は点群 T_h で現れる $(O_6^2-O_6^6)$ の寄与^[3]が小さいとして四重極子感受率の解析を行ったが, 今後 T_h 群による項を含めた解析と $(C_{11}-C_{12})/2$ の磁場依存性の実験を行い, 超伝導相および磁場中での秩序相での振る舞いを詳しく調べる.

[1] M. B. Maple et al., J. Phys. Soc. Jpn. **71** (2002) Suppl. 23.

[2] Y. Aoki et al., Submitted to Phys. Rev. B (2002).

[3] K. Takegahara et al., J. Phys. Soc. Jpn. **70** (2001) 1190.