

## ユニークな四極子秩序の安定化機構の発見

[1] 要旨：近年、強相関電子系において、固体中の電子の異方的な電荷分布の自由度の1つである四極子の研究が活発に行われている。結晶構造が面心立方格子の場合にその異方性を考慮したモデルを解析すると、非常に多くの四極子秩序相が出現し、特にこれまで考えられてこなかったトリプル  $\mathbf{q}$  秩序が、広いパラメータ領域で一般的に実現することが見出された。この結果は、四極子秩序についての新たな知見を与え、今後の研究の発展に寄与することが期待される。

### [2] 本文

結晶を冷却すると多くの場合、さまざまな秩序相が現れる。これらの相転移を担うのは、結晶を構成する原子自身である場合や、結晶中の電子、もしくは異種自由度の複合体であったりする。真空中の電子は基本的に電荷と磁気双極子モーメント（スピン）の自由度しか持たないが、固体結晶中では主に原子核によるクーロンポテンシャルのもとで、軌道自由度、より一般に多極子自由度を持つ。これらの軌道自由度は、物質の性質を決める重要な要素として長年にわたり研究がなされてきた。

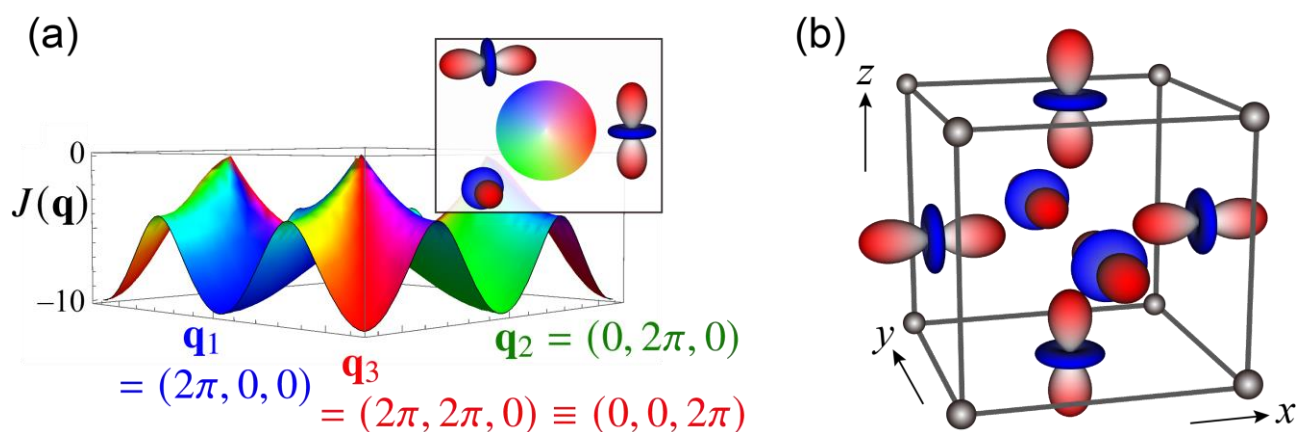


図 1. (a) 交換相互作用の波数空間( $q_z=0$  面内)表示  $J(\mathbf{q})$ . 色は四極子の固有状態を表す. (b) 面心立方格子上のトリプル  $\mathbf{q}$  四極子秩序構造の例. 4 副格子構造の 1 つのサイトは無秩序になる. 四極子の図は MAYAVI [P. Ramachandran and G. Varoquaux, *Comput. Sci. Eng.* **13**, 40 (2011)] を用いて作成.

近年では、絶縁体におけるバルク多極子モーメントの定式化の問題や、鉄系高温超伝導体の超伝導発現機構としての軌道自由度とその揺らぎが注目されるなど、さまざまな分野で精力的に研究が進められている。スピン軌道相互作用が強い強相関電子系における軌道自由度はスピンとは独立になり得ず、全角運動量  $\mathbf{J}$  で表現される多極子に組み込まれる。その結果、多極子秩序やその磁場応答などがスピン軌道相互作用の弱い系における磁気・軌道秩序と顕著に異なることが知られてきた。そのような状況で、多くの立方晶 Pr 化合物が磁気双極子モーメント（スピン）を持たない  $J=4$  の 2 電子状態を結晶場基底状態として持つことが近年明らかになってきた。この状態は立方対称ポテンシャルのもとで 2 重縮退しており、非クラマース二重項と呼ばれる。この非クラマース二重項は、活性な自由度として 2 種類の四極子モーメントを持ち、多くの物質で四極子自由度に起因する秩序や近藤効果が発現していると考えられている。これらは磁気的な自由度ではなく純粋に電気的な自由度による物性であり、磁気秩序などの理解に基づく知見とかけ離れた振る舞いが注目を集めてい

る。

最近、東京大学物性研究所と東京都立大学大学院理学研究科物理学専攻による研究グループは、Pr系重い電子系物質に関して非クラマース二重項が面心立方格子に並んだ四極子モデルを調べ、本来もつ異方性を正確に扱くと、相図は多くの種類の秩序相を含み、部分無秩序サイトを含む3つの変調波数を同時に持つトリプル $q$ 秩序が広いパラメータ領域で実現することを見出した。また、種々のトリプル $q$ 秩序相や単純な反強制的四極子秩序が発現する状況が明らかにされた。この成果は、日本物理学会が発行する英文誌 *Journal of the Physical Society of Japan (JPSJ)* の 2021 年 4 月号に掲載された。

通常の磁気秩序を記述するランダウの自由エネルギー $F$ は、 $F \sim F_0 + a\Phi^2 + b\Phi^4 + \dots$  のように秩序変数である磁気双極子モーメント $\Phi$ の偶数次項しか含まない。ここでは、簡単のためイジング的な秩序を想定しており、 $F_0$ ,  $a$ ,  $b$  は温度に依存する展開係数である。奇数次が禁止されることは時間反転対称性からくる制約であり、磁気的な自由度であれば一般に成立する。一方、研究グループが扱った非クラマース二重項の四極子自由度は電気的な秩序変数であるのでそのような制約は無く、その結果現れる奇数次項の中で、立方対称性を満たす三次の結合が重要であることが見いだされた。それらは、ちょうど3つの異なる波数 $q_1, q_2, q_3$ をもつ四極子秩序変数から構成され、 $q_1 + q_2 + q_3 = \mathbf{G}$  (逆格子ベクトル)が成立し、並進対称性も満たす [図 1(a)]。ブリルアン域境界の整合波数の変調がこの条件を満たすことが立方晶の特徴である。三次の結合が許されると、ランダウの理論によると転移は一次になり、かつ、上述の自由エネルギーの $a=0$ で決まる二次転移の転移温度よりも必ず高温でトリプル $q$ 秩序[図 1(b)]へ相転移する。これらの結果は、対称性に基づく議論のみから得られ、本研究で用いられた近似の範囲を超えて一般的に成り立つことが予想される。

本研究で解析された面心立方構造をもつPr系物質としては、PrMgNi<sub>4</sub>などが見つかっている。非クラマース二重項の秩序についての理論的研究は最近始まったばかりであり、実験研究者にとっては基本的な知見が少ないことが問題になっていたが、本研究による基礎的な理論を出発点として利用することで、今後の実験的研究により四極子秩序の詳細が明らかにされることが期待される。

原論文 (3月12日公開済)

[Quadrupole Orders on the fcc Lattice,](#)

[Hirokazu Tsunetsugu, Takayuki Ishitobi, and Kazumasa Hattori, J. Phys. Soc. Jpn. \*\*90\*\*, 043701 \(2021\).](#)

<情報提供 常次宏一 (東京大学物性研究所)

石飛尊之 (東京都立大学大学院理学研究科物理学専攻)

服部一匡 (東京都立大学大学院理学研究科物理学専攻) >