

奇パリティ多極子秩序相における
新奇量子現象の理論的探索

人見 尚典

Theoretical Study of Exotic Quantum Phenomena in Odd-Parity Multipole Ordered Phase

Multipole order is one of the major topics in condensed matter physics. There are vast studies for even-parity multipole order in d - and f - electron systems. Recently, the subject of multipole physics is extended to odd-parity multipole order which may occur in locally non-centrosymmetric systems. Owing to the parity mixing in the wave function and odd-parity crystalline electric field, the odd-parity multipole may be activated by a sublattice-dependent antisymmetric spin-orbit coupling (ASOC). Previous studies, i.e., magnetic quadrupole order in zigzag chains, magnetic toroidal order in a honeycomb lattice, magnetic hexadecapole order in a tetragonal crystal with G-type antiferromagnetic order, have revealed exotic magnetoelectric responses induced by the sublattice-dependent ASOC. In this thesis, we have studied the thermodynamic stability and the magnetoelectric response in an odd-parity electric octupole (EO) ordered state. We have considered a bilayer system and constructed the forward scattering model by taking into account a layer-dependent Rashba ASOC. The forward scattering interaction is treated with use of the mean field approximation. For the thermodynamic stability, we focus on the effect of layer-dependent ASOC on the stability of multipole order. By calculating the multipole susceptibility, it has been revealed that the ASOC plays an important role on the multipole order. The EO order is stabilized by the large layer-dependent ASOC, which decreases the kinetic energy due to the bilayer coupling. Furthermore, we calculated the phase diagram under a magnetic field and demonstrated the parity-breaking quantum critical point. In the EO ordered state, the asymmetric band structure induced by the in-plane magnetic field has been demonstrated. Since the multipole moment characterizing the EO state belongs to the D_{2d} point group lacking the space inversion symmetry, it is expected that a characteristic the magnetoelectric response occurs in the EO ordered state. According to a recent report, a spin-orbit coupled metal $\text{Cd}_2\text{Re}_2\text{O}_7$ is one of the candidate materials of the EO phase. With application to $\text{Cd}_2\text{Re}_2\text{O}_7$ in mind, we aim to explore the magnetoelectric response in the EO ordered state, and investigate the magnetoelectric effect (Edelstein effect) and spin Hall effect in the bilayer system. By calculating the magnetoelectric coefficient and spin Hall conductivity with use of the Kubo formula, we obtained following consequences: (1) the magnetic moment characterized by the symmetry of the EO moment is induced by the electric field, (2) the spin Hall conductivity is drastically enhanced in the EO state. Furthermore, we have studied the bilayer cuprates, $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ (YBCO), which is categorized into the high- T_c superconductors. A change of nematicity has been detected by the magnetic torque measurement at a temperature higher than the onset temperature of charge density wave state. Moreover, the optical measurements, such as a linear dichroism and second-harmonic optical anisotropy, have pointed out the broken inversion symmetry. These

experimental results imply the possibility of the EO order in the pseudogap regime. We have clarified the “hidden order” in YBCO by analyzing the bilayer Rashba model with a weak two-fold anisotropy. From the calculation of the spin susceptibility, we have demonstrated a kink in the temperature dependence of the magnetic torque at the phase transition point of EO order. We also showed the reduction of the spin susceptibility. These results are consistent with experimental observations. Interestingly, it is shown that the two-fold magnetic anisotropy is significantly enhanced in the superconducting state because the Van Vleck susceptibility is highly anisotropic. Possible experimental test of magnetic anisotropy and characteristic magnetoelectric responses has been proposed.

目次

1	序論	5
1.1	パリティの破れに伴う反対称スピン軌道相互作用	5
1.2	反対称スピン軌道相互作用が誘起する現象	9
1.3	多極子の分類	12
1.4	局所的な空間反転対称性の欠如した系	16
1.5	研究目的	21
1.6	論文構成	21
2	二層 Rashba 系における電気多極子秩序状態の熱力学的安定性	23
2.1	導入	23
2.2	二層ルテニウム酸化物 $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ に関するレビュー	23
2.3	モデル	28
2.4	平均場近似	29
2.5	電気多極子秩序	31
2.6	電子構造	32
2.7	電気八極子秩序状態の熱力学的安定性	38
2.8	磁場中における電気八極子状態	47
2.9	まとめ	48
3	二層 Rashba 系における電気多極子秩序状態での磁気電気応答	50
3.1	導入	50
3.2	スピンホール効果	50
3.3	磁気電気効果	57
3.4	まとめ	63
4	銅酸化物高温超伝導体 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ における電気八極子秩序状態の実現可能性	65
4.1	導入	65
4.2	二層系銅酸化物高温超伝導 YBCO に関するレビュー	65
4.3	秩序変数とネマティシティ	71
4.4	磁気トルクと擬ギャップ	72
4.5	超伝導状態における巨大な磁気異方性	76
4.6	磁気電気応答	78
4.7	まとめ	81
5	総括	83

付録 A 電気八極子秩序状態における ASOC の出現	85
付録 B 既約感受率	86
付録 C スピンホール伝導率・磁気電気係数の対角成分	89
付録 D 面直-面内磁気感受率異方性の解析表式	91
謝辞	93
参考文献	93

1 序論

1.1 パリティの破れに伴う反対称スピン軌道相互作用

空間反転対称性の破れは電子状態に大きな影響を及ぼす。ここでは、空間反転対称性が破れた結晶における電子状態について記述する。具体例として空間反転対称性が破れた重い電子系超伝導体 CePt_3Si を考える。図 1 は CePt_3Si の結晶構造を示しており、 CePt_3Si は正方晶 (空間群 $P4mm$ 、点群 C_{4v}) に分類される。Si 原子が c 軸鏡映対称性の破れた位置に存在するため、結晶内部に異方的な電場勾配 ∇V が生じる。この電場勾配中を電子が運動することで、この電子にスピン軌道相互作用 ($\hbar^2 e / 2m^2 c^2$) $(\mathbf{k} \times \nabla V) \cdot \mathbf{S}$ が働く (孤立電子系におけるスピン軌道相互作用に対して、単純に運動量 \mathbf{p} を結晶運動量 $\hbar\mathbf{k}$ と見なすことは厳密には正確ではない)。このスピン軌道相互作用はスピン反転操作 $\sigma \rightarrow -\sigma$ と空間反転操作 $\mathbf{k} \rightarrow -\mathbf{k}$ により対称性を破るが、時間反転操作に対して不変となる。このような空間反転対称性の破れに起因するスピン軌道相互作用は「反対称スピン軌道相互作用 (ASOC)」と呼ばれる。

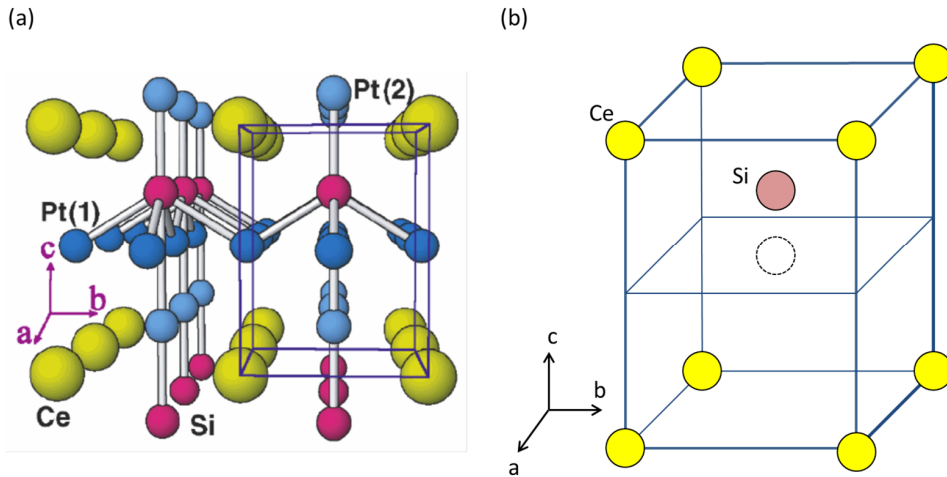


図 1 (a) CePt_3Si の結晶構造 [1]。 (b) CePt_3Si の結晶構造の概念図。簡単のため Pt 原子は描いていない。Si 原子の位置が空間反転中心 (点線の丸) からずれているため、 CePt_3Si の結晶構造は c 軸鏡映対称を破っている。

次に点群 C_{4v} に属する結晶構造における ASOC の表記を考える。 c 軸鏡映対称性の破れから結晶内部に現れる電場勾配は $\nabla V \parallel \hat{z}$ となるため、この電場勾配と波数の外積は ab 面内成分が残る $\mathbf{k} \times \nabla V \sim (-k_y, k_x, 0)$ 。ここで、波数に依存する有効磁場である g ベクトルを導入する。この g ベクトルが運動量空間におけるスピン構造を決定する。金属中における点群 C_{4v} に伴う Rashba 型 g ベクトルは

$$\mathbf{g}(\mathbf{k}) = (-\sin k_y, \sin k_x, 0) \quad (1)$$

と表される。この g ベクトルを用いると ASOC は

$$H_{\text{ASOC}} = \alpha \sum_{\mathbf{k}, s, s'} \mathbf{g}(\mathbf{k}) \cdot \boldsymbol{\sigma}_{ss'} c_{\mathbf{k}s}^\dagger c_{\mathbf{k}s'} \quad (2)$$

と記述される。ここで、 $c_{\mathbf{k}s}^\dagger, c_{\mathbf{k}s}$ は波数 \mathbf{k} , スピン s をもつ電子の生成消滅演算子である。 α は ASOC の大きさ、 $\boldsymbol{\sigma}$ はパウリ行列である。ASOC は時間反転対称性を保存するために、 g ベクトルは波数に関して奇パリティ $\mathbf{g}(-\mathbf{k}) = -\mathbf{g}(\mathbf{k})$ の性質をもつ。ASOC の構造は系の対称性により決定されており、表 1 に各結晶系に現れる ASOC を示す。系が点群 T_d に属する場合、 g ベクトルは $\mathbf{g}(\mathbf{k}) = [k_x(k_y^2 - k_z^2), k_y(k_z^2 - k_x^2), k_z(k_x^2 - k_y^2)]$ の Dresselhaus 型となる。ここで、ASOC の起源について注意すべきことがある。結晶内部の電場中を運動する電子に働く相対論的効果を ASOC の起源としているが、電場中を運動する電子の「波動関数の歪み」の効果を考慮せずに ASOC の大きさを計算すると金属中の典型的な ASOC の大きさよりも非常に小さく見積もられている [2]。微視的観点から、正確な ASOC の起源は「原子内部における LS 結合」と「空間反転対称性の欠如による電子波動関数の局所的なパリティ混成」の協力効果である [2, 3, 4, 5]。原子内部における LS 結合はあらゆる固体電子系に存在するため、空間反転対称の破れの効果が ASOC に本質的な役割を担っている。

空間反転対称性の欠如した結晶では、ASOC の効果によりエネルギーバンドがスピン分裂する。ASOC を考慮した単一バンド電子系の 1 電子ハミルトニアンは

$$H = \sum_{\mathbf{k}, s, s'} [\varepsilon(\mathbf{k}) \sigma_0^{ss'} + \alpha \mathbf{g}(\mathbf{k}) \cdot \boldsymbol{\sigma}^{ss'}] c_{\mathbf{k}s}^\dagger c_{\mathbf{k}s'} \quad (3)$$

と表される。 σ_0 は 2×2 の単位行列、 $\varepsilon(\mathbf{k})$ は ASOC を考慮しない場合での電子のバンド分散である。このハミルトニアンを対角化することで、ASOC によりスピン縮退が解かれた 2 つのエネルギーバンド

$$\varepsilon_{\pm}(\mathbf{k}) = \varepsilon(\mathbf{k}) \pm \alpha |\mathbf{g}(\mathbf{k})| \quad (4)$$

が得られる。図 2 は Rashba 型 ASOC の効果で分裂したエネルギーバンドとフェルミ面を示している。スピンが各波数点で異なるスピン量子化軸を持ち、各バンドで逆向きのスピン構造を取ること注目する。これは、式 (3) を対角化するユニタリー変換がスピン量子化軸を $\mathbf{g}(\mathbf{k})$ 方向に変換させるためである。したがって、 g ベクトルを波数 \mathbf{k} に依存した有効磁場と見なすことができる。スピン期待値は $\boldsymbol{\sigma}_{\mathbf{k}\pm} = \pm \mathbf{g}(\mathbf{k}) / |\mathbf{g}(\mathbf{k})|$ となるため、 $\varepsilon_+(\mathbf{k})$ のバンドに属する準粒子のスピンは $\mathbf{g}(\mathbf{k}) = (-\sin k_y, \sin k_x, 0)$ に対して平行となり、 $\varepsilon_-(\mathbf{k})$ のバンドに属する準粒子のスピンは反平行となる。

ここで、前述した ASOC の微視的起源について説明する。ASOC は以下の 3 つの効果により生じる。(1) 奇パリティ結晶場によるパリティが異なる軌道間の局所的混成、(2) 原子間の飛び移りによるパリティが異なる軌道間の混成、(3) 原子内部の LS 結合である。そのため、ASOC は多軌道効果により生じる。また (2) と (3) は空間反転対称性の保存された系でも存在するため、(1) が ASOC に対して本質的な役割を担っている。ここでは、 s - p 電子系を具体例として Rashba 型 ASOC の起源について記述する。図 3 は s - p 電子系で Rashba 型 ASOC が発生する過程を示している。

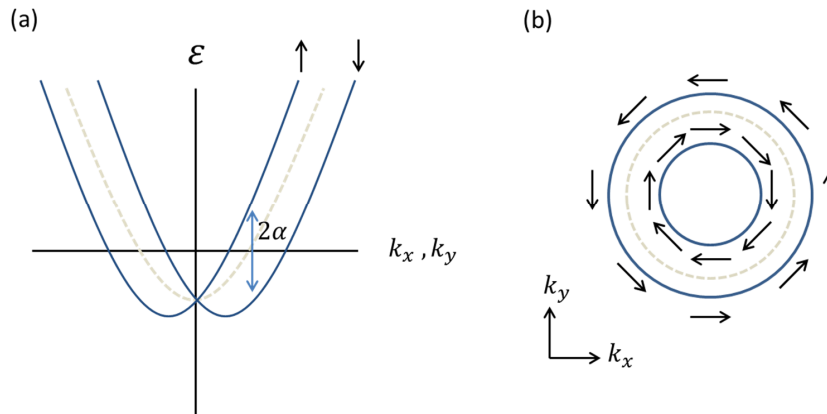


図2 (a) 空間反転対称性がない場合のバンド分散 (Rashba 型 ASOC によるスピン分裂)。 $2\alpha|\mathbf{g}(\mathbf{k})|$ は ASOC によるバンドのエネルギー分裂幅である。点線は ASOC がない場合のエネルギー分散。(b) 空間反転対称性がない場合のフェルミ面。矢印はフェルミ面上のスピンを表している。

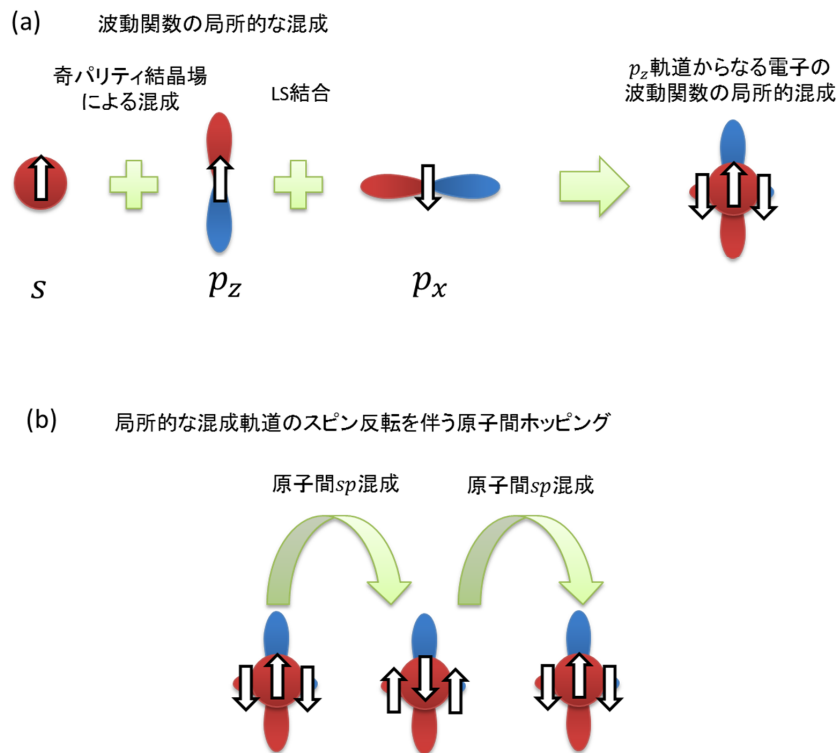


図3 s - p 電子系の Rashba 型 ASOC の概念図 [3]。(a) 奇パリティ結晶場による p_z 軌道と s 軌道の局所的な混成と、LS 結合による p_z 軌道と p_x 軌道の局所的混成を表している (p_y 軌道も同様)。(b) 局所的に混成した波動関数の原子間ホッピングを示す。このホッピングはスピン反転を伴っており、運動量表示することで Rashba 型 ASOC が得られる。

結晶系 (基礎点群)	点群	ASOC [$\alpha g(\mathbf{k})$]	基礎点群の表現
立方晶 (O_h)	O	$\alpha(k_x s_x + k_y s_y + k_z s_z)$	A_{1u}
	T_d	$\alpha[k_x(k_y^2 - k_z^2)s_x + k_y(k_z^2 - k_x^2)s_y + k_z(k_x^2 - k_y^2)s_z]$	A_{2u}
	T	$\alpha_1(k_x s_x + k_y s_y + k_z s_z) + \alpha_2[k_x(k_y^2 - k_z^2)s_x + k_y(k_z^2 - k_x^2)s_y + k_z(k_x^2 - k_y^2)s_z]$	$A_{1u} + A_{2u}$
正方晶 (D_{4h})	D_4	$\alpha_1(k_x s_x + k_y s_y) + \alpha_2 k_z s_z$	A_{1u}
	C_{4v}	$\alpha(k_y s_x - k_x s_y)$	A_{2u}
	$D_{2d}^{[110]}$	$\alpha(k_x s_x - k_y s_y)$	B_{1u}
	$D_{2d}^{[100]}$	$\alpha(k_y s_x + k_x s_y)$	B_{2u}
	C_4	$\alpha_1(k_x s_x + k_y s_y) + \alpha_2 k_z s_z + \alpha_3(k_y s_x - k_x s_y)$	$A_{1u} + A_{2u}$
	S_4	$\alpha_1(k_x s_x - k_y s_y) + \alpha_2(k_y s_x + k_x s_y)$	$B_{1u} + B_{2u}$
六方晶 (D_{6h})	D_6	$\alpha_1(k_x s_x + k_y s_y) + \alpha_2 k_z s_z$	A_{1u}
	C_{6v}	$\alpha(k_y s_x - k_x s_y)$	A_{2u}
	D_{3h}	$\alpha_1[2k_x k_y k_z s_x - (k_x^2 - k_y^2)k_z s_y] + \alpha_2(k_y^3 - 3k_x^2 k_y)s_z$	B_{2u}
	C_6	$\alpha_1(k_x s_x + k_y s_y) + \alpha_2 k_z s_z + \alpha_3(k_y s_x - k_x s_y) +$	$A_{1u} + A_{2u}$
	C_{3h}	$\alpha_1[2k_x k_y k_z s_x - (k_x^2 - k_y^2)k_z s_y] + \alpha_2(k_y^3 - 3k_x^2 k_y)s_z + \alpha_3[2k_x k_y k_z s_x + (k_x^2 - k_y^2)k_z s_y] + \alpha_4(k_x^3 - 3k_x^2 k_y)s_z$	$B_{1u} + B_{2u}$
三方晶 (D_{3d})	D_3	$\alpha_1(k_x s_x + k_y s_y) + \alpha_2 k_z s_z$	A_{1u}
	C_{3v}	$\alpha(k_y s_x - k_x s_y)$	A_{2u}
	C_3	$\alpha_1(k_x s_x + k_y s_y) + \alpha_2 k_z s_z + \alpha_3(k_y s_x - k_x s_y)$	$A_{1u} + A_{2u}$
直方晶 (D_{2h})	D_2	$\alpha_1 k_x s_x + \alpha_2 k_y s_y + \alpha_3 k_z s_z$	A_{1u}
	C_{2v}	$\alpha_1 k_y s_x + \alpha_2 k_x s_y$	B_{1u}
単斜晶 (C_{2h})	C_2	$\alpha_1 k_x s_x + \alpha_2 k_y s_y + \alpha_3 k_z s_z + \alpha_4 k_y s_x + \alpha_5 k_x s_y$	A_{1u}
	C_s	$\alpha_1 k_z s_x + \alpha_2 k_z s_y + \alpha_3 k_x s_z + \alpha_4 k_y s_z$	A_{2u}
三斜晶 (C_i)	C_1	$\alpha_1 k_x s_x + \alpha_2 k_y s_y + \alpha_3 k_z s_z + \alpha_4 k_y s_x + \alpha_5 k_x s_y + \alpha_6 k_z s_x + \alpha_7 k_z s_y + \alpha_8 k_x s_z + \alpha_9 k_y s_z$	A_{1u}

表 1 点群による反対称スピン軌道相互作用の分類。

空間反転対称性の欠如した結晶では、結晶内部に奇パリティの結晶場が現れる。奇パリティ結晶場の効果により「原子内部で p_z 軌道と s 軌道が局所的に混成」、LS 結合の効果により「 p_z 軌道と (p_x, p_y) 軌道が局所的に混成」することになる。図 3(a) は奇パリティ結晶場の効果と LS 結合により生じる局所的混成軌道を示している。この局所的混成軌道は (2) を通じてスピン反転を伴う原子間ホッピングを行う。このスピン反転を伴う原子間ホッピングを運動量表示したものが Rashba 型 ASOC となる。

1.2 反対称スピン軌道相互作用が誘起する現象

空間反転対称性の欠如した系では、ASOCにより新奇超伝導 [6, 7, 8, 9, 10, 11, 12, 13, 14, 15]、磁気電気効果 [7, 9, 12, 13, 14, 16]、異常ホール効果 [13, 14]、スピンホール効果 [17, 18, 19, 20, 21]、トポロジカル輸送現象 [22, 23, 24] などの様々な現象が誘起される。そこで、本セクションでは ASOC が存在する場合における磁気電気効果・異常ホール効果・スピンホール効果の発現機構を説明する。

1.2.1 磁気電気効果

磁気電気効果は、静電場が静磁化を、静磁場が静電気を誘起する現象である。線形磁気電気効果ではあるテンソル A を用いることで、外部磁場 B により生じる電気分極 P の変化の大きさと、外部電場 E により生じる磁化 M の変化の大きさは

$$\Delta P = AB \quad (5)$$

$$\Delta M = {}^t A E \quad (6)$$

と表すことができる。磁気電気効果が現れるためには空間反転対称性と時間反転対称性が破れていなければならない。このことは式 (5) と (6) の両辺に対して、空間反転操作と時間反転操作を施すことにより確認できる。したがって、時間反転対称性と空間反転対称性が破れた系では印加磁場に対して電気分極が誘起されたり、印加電場に対して磁化が誘起される可能性がある。Cr₂O₃ では磁気秩序により空間反転対称性が破れることで、磁気電気効果が現れることが観測されている [25, 26]。また、GaFeO₃ の結晶構造は直方晶に属しており空間反転対称性が破れている。そのため、GaFeO₃ に磁場を印加することで電気分極の変化することが観測されている [27]。

ここで、金属における磁気電気効果を述べる。 z 軸方向に対して空間反転対称性が欠如した系を考える。この場合、系の対称性は点群 C_{4v} に属することになり、Rashba 型の ASOC が空間一様に現れる。この Rashba 型 ASOC の効果により、各バンドのスピン縮退が解ける。この系に y 軸方向に電場を印加する。このとき、図 4 に示されているように、フェルミ面が y 軸方向に変形する。Rashba 型 ASOC の効果により、フェルミ面上のスピンはフェルミ面に対して垂直になるように再配列する。その結果、 x 軸方向にスピン分極が生じる。その逆の過程も考えられ、 x 軸方向に磁場を印加するとスピン分布が変化し、Rashba 型 ASOC の効果により y 軸方向に対してフェルミ面が変形する。その結果、 y 軸方向に電流が流れることになる。ここで、通常状態では電流によるエネルギー散逸が伴うので、電流を流し続けるためには動的な交流磁場を印加する必要がある。対して、超伝導状態ではエネルギー散逸が無いため、静的な磁場で超伝導電流を誘起できる (第 2 種超伝導体)。Rashba 型 ASOC では磁気電気応答は外場の印加方向に対して垂直方向に現れるが、Dresselhaus 型 ASOC では外場の印加方向に対して平行方向に磁気電気応答が現れる。

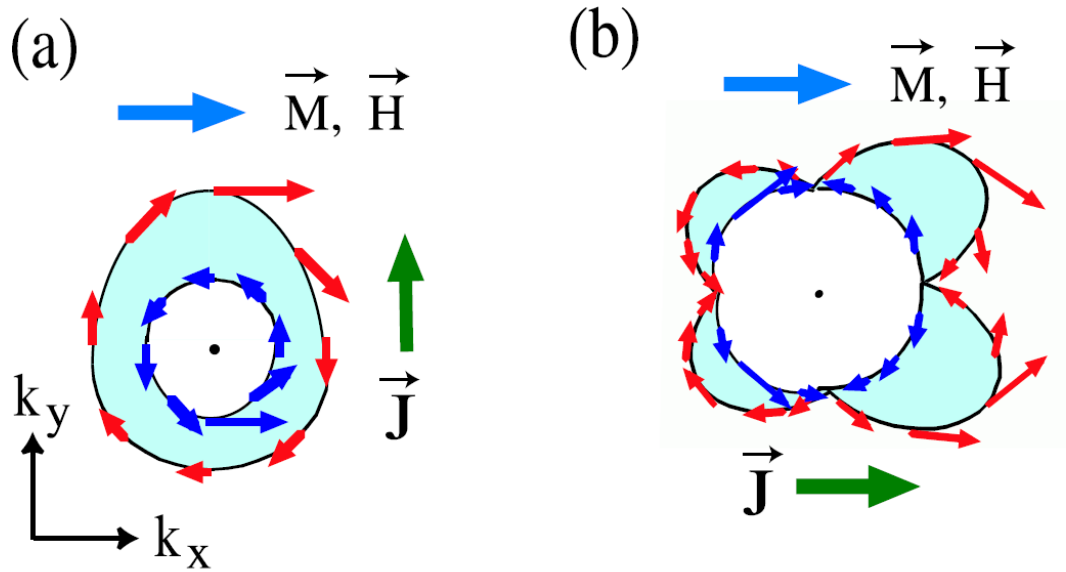


図4 ASOCに起因する磁気電気効果(文献[14]から引用)。(a) Rashba型ASOCの場合。 y 軸方向に電流を流すと x 軸方向に磁化が生じる。逆に、 x 軸方向に磁場を印加すると y 軸方向に電流が生じる。(b) Dresselhaus型ASOCの場合。結晶の主軸方向に磁化が生じるとそれと平行に電流が生じる。逆効果も同様である。電流や磁化が主軸に平行でない場合は非対角成分はゼロではない。

1.2.2 異常ホール効果

異常ホール効果は強磁性体に電場を印加することにより、印加方向に対して垂直方向に電流が流れる現象である。異常ホール効果が生じるためには、スピン軌道相互作用が必要となる。異常ホール効果には内因性機構と外因性機構が存在する。KarplusとLuttingerにより理論的に示した内因性異常ホール効果はバンド構造とスピン軌道相互作用に由来しており、不純物散乱を必要としない[28]。内因性異常ホール効果はスピン軌道相互作用に伴う異常速度に起因する。一方、外因性機構は不純物散乱効果が必要でありスキュー散乱とサイドジャンプに分けられる。スキュー散乱では、電子の不純物散乱過程において入射波と散乱波の波数が異なるように散乱される。サイドジャンプでは、不純物散乱前後において波数変化は無いが、波束の重心が横ずれを起こす。

ここでは、Rashba型ASOCの効果により生じる内因性異常ホール効果について記述する。電場を y 軸方向に印加すると、フェルミ面が y 軸方向に対して非対称に変形する[図5(a)]。次に z 軸方向に磁場を印加することにより、スピンの向きが xy 平面で赤矢印から青矢印へと回転する[図5(b)]。Rashba型ASOCの効果によりフェルミ面上におけるスピンの向きとフェルミ面は垂直になるため、フェルミ面は xy 平面で回転して x 軸方向にも非対称となる[図5(c)]。その結果、 x 軸方向にも電流が流れることになる。また、Rashba型ASOCにより生じる異常速度は z 軸方向に対して垂直であるため、異常ホール効果は z 軸方向に磁場を印加した場合のみ生じる。フェルミ液体論に基づいた解析によると、重い電子系では異常ホール伝導率 σ_{xy}^{AHE} がホール伝導率 σ_{xy}^{NHE} の約

40 倍の大きさ $\sigma_{xy}^{\text{AHE}}/\sigma_{xy}^{\text{NHE}} \sim 40$ を取ることが示されている [14]。

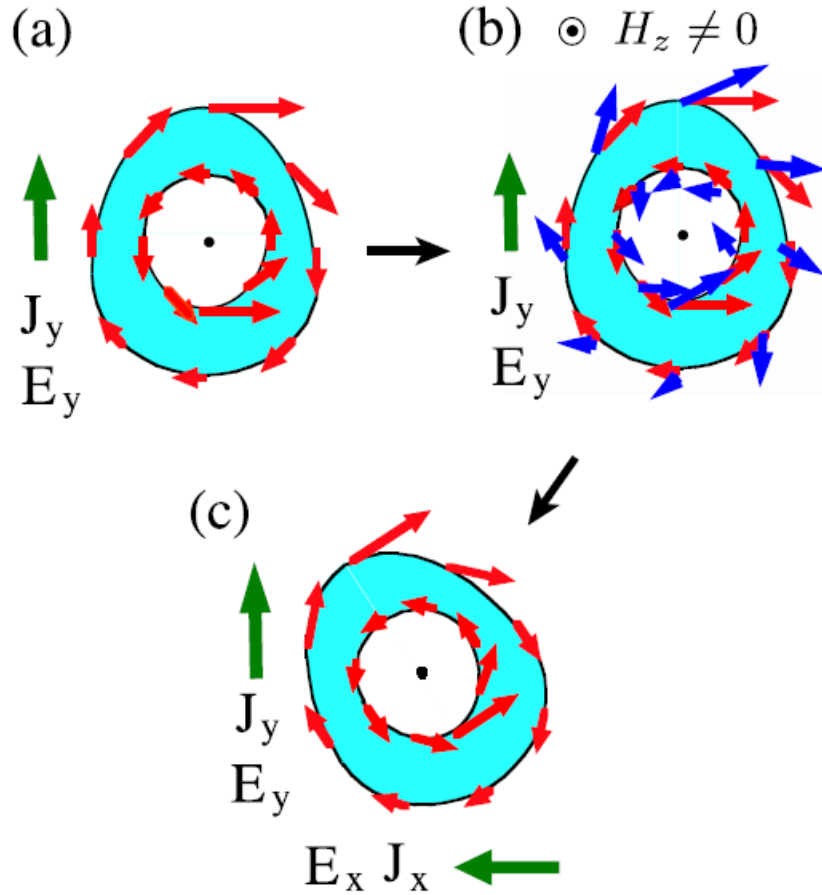


図5 ASOC に起因する異常ホール効果 (文献 [14] から引用)。(a) 電場を y 軸方向に印加した場合におけるスピン分布の変化。(b) 磁場を z 軸方向に印加した場合に発生する有効トルク (z 軸周りにスピンを回転させる)。(c) Rashba 型 ASOC の効果によりフェルミ面が変形する。その結果、 x 軸方向に電流が生じる。

1.2.3 スピンホール効果

スピンホール効果は常磁性体に電場を印加することで、印加方向に対して垂直方向にスピン流が流れる現象である。スピンホール効果の内因的機構に関する研究は、Sinova 達により二次元 Rashba 系を対象として行われており [18]、ハミルトニアンは

$$H = \frac{p^2}{2m} - \frac{\lambda}{\hbar} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\hat{z} \times \mathbf{p}) \quad (7)$$

として与えられる。ここで、 \mathbf{p} は電子の運動量、 m は電子の有効質量、 λ は Rashba 型 ASOC の結合定数、 $\boldsymbol{\sigma}$ はパウリ行列、 \hat{z} は二次元平面に対して垂直方向の単位ベクトルである。 z 軸方向に対して空間反転対称性が破れることで、 z 軸方向に異方的な電場勾配が現れる。その結果、式 (7) の第 2 項目に \hat{z} の単位方向ベクトルが現れる。

図 6 (a) は式 (7) により得られるバンド構造である。式 (7) の第 2 項目が存在するために、電子のエネルギー分散関係は運動量 \mathbf{p} と電子スピンの直交するようにスピン分裂する。そのため電子スピンは運動量依存性を持ち、エネルギー等高線上の電子スピン (赤矢印) はそのエネルギーに対応する運動量 (緑矢印) に対して垂直に向く [図 6(a) の右図]。このような電子状態に対して電場 (青矢印) を x 軸方向に印加した場合を考える。図 6 (b) の右図に示されているように、フェルミ面が x 軸方向に変形する。そのため運動量に依存する有効磁場 (g ベクトル) の y 軸成分が変化して、電子スピンに対して有効トルクが働く。この有効トルクにより、 $p_y > 0$ では電子スピンは z 軸の正方向に傾き、 $p_y < 0$ では電子スピンは z 軸の負方向に傾くことになる。その結果、 y 軸方向にスピン流が流れることになる。スピン分裂したエネルギー分散内にフェルミ準位が存在する場合、電子散乱効果の無いバルスティックな伝導領域では λ の大きさに依らずスピンホール伝導率の大きさは $e/8\pi$ となる。また非磁性不純物効果によるバーテックス補正を考慮した場合、スピンホール伝導率はゼロになることが示されている [19]。ただし、このスピンホール伝導率の打ち消し合いは Rashba 型 ASOC に由来する波数に依存しない異常速度が原因となるため、一般の ASOC の効果では有限のスピンホール伝導率が生じる。また、多軌道モデルを用いたスピンホール伝導率の計算も行われており、不純物濃度でスピン流をコントロールできる可能性を示している [21]。

1.3 多極子の分類

一般に磁性を担う $3d$ 電子や $4f$ 電子は磁気双極子モーメントの他に、電子軌道により球対称からずれた異方的な電荷分布を伴う電気四極子モーメントや磁気八極子モーメントをもつ。このような電荷分布、磁荷分布の異方性を特徴づける量が多極子である。波動関数が作り出す偏極を定量的に扱うために、電荷分布 $\rho_e(\mathbf{r})$ と磁化分布 $\rho_m(\mathbf{r})$ を球面調和関数 $Y_{lm}(\hat{\mathbf{r}})$ に射影して、その歪み具合を測る。 \mathbf{r} は磁性イオンの中心を原点とする空間座標、 $\hat{\mathbf{r}} = \mathbf{r}/r$ はその単位ベクトルである。球面調和関数に関しては Racah の規格化を用いる $Z_{lm}(\hat{\mathbf{r}}) \equiv \sqrt{4\pi/(2l+1)}Y_{lm}(\hat{\mathbf{r}})$ 。さらに、球面調和関数の位相は $Z_{lm}^*(\hat{\mathbf{r}}) = (-1)^m Z_{l,-m}(\hat{\mathbf{r}})$ を採用する。電場 \mathbf{E} と磁場 \mathbf{H} に対する電荷密度と磁化密度は

$$\nabla \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}) = 4\pi\rho_e(\mathbf{r}) \quad (8)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{H}(\mathbf{r}) = 4\pi\rho_m(\mathbf{r}) \quad (9)$$

と表される。ここで磁化 \mathbf{M} 、磁化電流密度 $\mathbf{j}_m(\mathbf{r})$ を用いると

$$\rho_m(\mathbf{r}) = -\nabla \cdot \mathbf{M}(\mathbf{r}) \quad (10)$$

$$\mathbf{j}_m(\mathbf{r}) = \nabla \times \mathbf{M}(\mathbf{r}) \quad (11)$$

$$\mathbf{H}(\mathbf{r}) = \mathbf{B}(\mathbf{r}) - 4\pi\mathbf{M}(\mathbf{r}) \quad (12)$$

となる。ここで \mathbf{B} は磁束密度である。空間反転操作に対して $\nabla \rightarrow -\nabla$, $\mathbf{E}(-\mathbf{r}) \rightarrow -\mathbf{E}(\mathbf{r})$, $\mathbf{M}(-\mathbf{r}) \rightarrow \mathbf{M}(\mathbf{r})$ となることに注意すると、 $\rho_e(-\mathbf{r}) = \rho_e(\mathbf{r})$ 、 $\rho_m(-\mathbf{r}) = -\rho_m(\mathbf{r})$ となる。さら

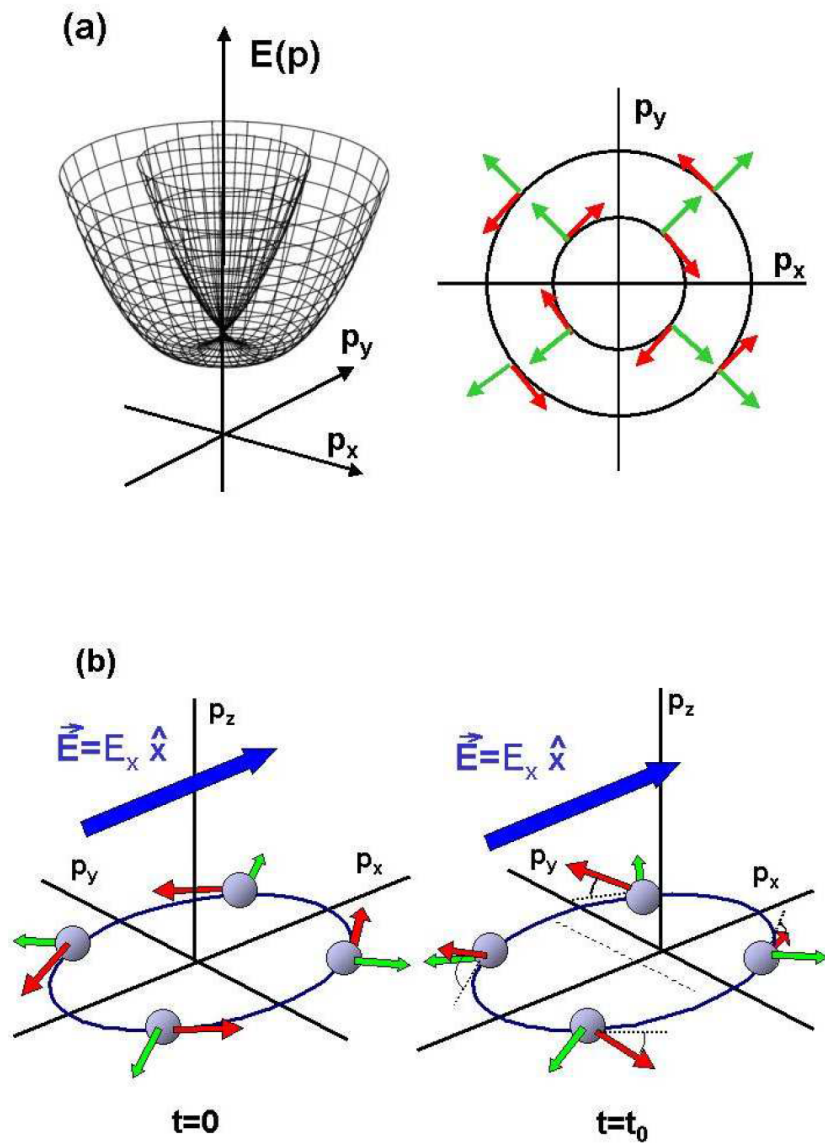


図6 ASOCにより誘起されるスピホール効果 (文献 [18] から引用)。(a) Rashba 型 ASOC を考慮した 2次元電子系におけるエネルギー分散 (左図) とエネルギー等高線 (右図)。緑矢印が運動量、赤矢印がスピンを示す。(b) 電場を x 軸方向に印加した場合におけるフェルミ面。このとき、典型的な散乱時間よりも短い時間 t_0 でフェルミ面が変形する。フェルミ面上の運動量が変化することにより、 $p_y > 0$ ($p_y < 0$) ではスピンを上向き (下向き) に傾けるような有効トルクが現れる。その結果、 y 軸方向にスピ流が生じる。

に、時間反転操作に対して $\rho_e(\mathbf{r})$ は偶であり、 $\rho_m(\mathbf{r})$ は奇となる。ここで電荷分布と磁化密度の歪みを計る量として、電気多極子モーメント Q_{lm} と磁気多極子モーメント M_{lm} を

$$Q_{lm} \equiv \int d\mathbf{r} r^l Z_{lm}^*(\hat{\mathbf{r}}) \rho_e(\mathbf{r}) \quad (13)$$

$$M_{lm} \equiv \int d\mathbf{r} r^l Z_{lm}^*(\hat{\mathbf{r}}) \rho_m(\mathbf{r}) \quad (14)$$

と導入する。ここで、 l を多極子のランクと呼ぶ。空間反転操作により $\rho_e(-\mathbf{r}) = \rho_e(\mathbf{r})$ 、 $\rho_m(-\mathbf{r}) = -\rho_m(\mathbf{r})$ 、 $Z_{lm}(-\hat{\mathbf{r}}) = (-1)^l Z_{lm}(\hat{\mathbf{r}})$ となるので、電気多極子 Q_{lm} はパリティ $(-1)^l$ 、磁気多極子 M_{lm} はパリティ $(-1)^{l+1}$ をもつ。したがって空間反転中心が存在する場合、 $l =$ 偶数の電気多極子または $l =$ 奇数の磁気多極子が有限値をもつことになる。これらの多極子は偶パリティの多極子であることに注目する。また $l = 0$ の場合を単極子、 $l = 1$ の場合を双極子、 $l = 2$ の場合を四極子、 $l = 3$ の場合を八極子、 $l = 4$ の場合を十六極子... と呼ぶ。電荷分布と磁化分布を

$$\rho_e(\mathbf{r}) \equiv -\frac{e}{4\pi} R_f^2(r) \rho_e(\hat{\mathbf{r}}) \quad (15)$$

$$\rho_m(\mathbf{r}) \equiv \frac{\mu_B}{4\pi r} R_f^2(r) \rho_m(\hat{\mathbf{r}}) \quad (16)$$

のようにに動径方向部分と無次元の角度依存部分に分ける。ここで、式 (13),(14) の両辺に $\sum_{lm} Z_{lm}(\hat{\mathbf{r}}')$ をかけて球面調和関数の完全性 $\sum_{lm} (2l+1) Z_{lm}^*(\hat{\mathbf{r}}) Z_{lm}(\hat{\mathbf{r}}') = 4\pi \delta(\hat{\mathbf{r}} - \hat{\mathbf{r}}')$ を用いると、

$$\rho_e(\hat{\mathbf{r}}) = \sum_{lm} (2l+1) \frac{Q_{lm}}{e \langle r^l \rangle} Z_{lm}(\hat{\mathbf{r}}) \quad (17)$$

$$\rho_m(\hat{\mathbf{r}}) = \sum_{lm} (2l+1) \frac{M_{lm}}{\mu_B \langle r^{l-1} \rangle} Z_{lm}(\hat{\mathbf{r}}) \quad (18)$$

となる。ここで $\mu_B = e\hbar/2mc$ はボーア磁子、 $\langle \dots \rangle = \int_0^\infty dr r^2 R_f^2(r) (\dots)$ は動径波動関数 $R_f(r)$ に関する平均を表す。

式 (13) と式 (14) で定義される多極子モーメントを量子力学的演算子で表す。電荷分布の演算子 $\rho_e(\mathbf{r})$ は

$$\rho_e(\mathbf{r}) = e \sum_{j=1}^n \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_j) \quad (19)$$

と表される。ここで、 n は電子数であり、 \mathbf{r}_j は各電子位置を表す演算子である。したがって、式 (13) より電気多極子の量子力学的演算子は

$$Q_{lm} \equiv \int d\mathbf{r} r^l Z_{lm}^*(\hat{\mathbf{r}}) \rho_e(\mathbf{r}) = e \sum_{j=1}^n r_j^l Z_{lm}^*(\hat{\mathbf{r}}_j) \quad (20)$$

となる。また、磁気多極子の量子力学的演算子は

$$M_{lm} = \mu_B \sum_{j=1}^n \left(\frac{2l_j}{l+1} + 2\mathbf{s}_j \right) \cdot \nabla_j (r_j^l Z_{lm}^*(\hat{\mathbf{r}}_j)) \quad (21)$$

となる。 l_j, s_j は各電子の角運動量演算子とスピン演算子である。

式 (20) の電気多極子モーメントを

$$Q_{lm}^+ = \frac{(-1)^m}{\sqrt{2}}(Q_{lm} + Q_{lm}^*) \quad (22)$$

$$Q_{lm}^- = \frac{(-1)^m}{i\sqrt{2}}(Q_{lm} - Q_{lm}^*) \quad (23)$$

として実数化することができる。ここで、 $0 < l, 0 < m \leq l$ である。表 2 に正方晶の点群 D_{4h} における電気多極子モーメントを示す。

規約表現	Q_{lm}	基底関数 (実空間)	基底関数 (波数空間)
A_{1g}	Q_{20}	z^2	k_z^2
	Q_{40}	z^4	k_z^4
	Q_{44}^\pm	$x^4 - 6x^2y^2 + y^4$ $xy(x^2 - y^2)$	$k_x^4 - 6k_x^2k_y^2 + k_y^4$ $k_xk_y(k_x^2 - k_y^2)$
A_{2g}	Q_{44}^-	$xy(x^2 - y^2)$	$k_xk_y(k_x^2 - k_y^2)$
B_{1g}	Q_{22}^+	$x^2 - y^2$	$k_x^2 - k_y^2$
	Q_{42}^+	$(x^2 - y^2)(7z^2 - r^2)$	$(k_x^2 - k_y^2)(7k_z^2 - k^2)$
B_{2g}	Q_{22}^-	xy	k_xk_y
	Q_{42}^-	$xy(7z^2 - r^2)$	$k_xk_y(7k_z^2 - k^2)$
E_g	Q_{21}^\pm	$\{zx, yz\}$	$\{k_zk_x, k_yk_z\}$
	Q_{41}^\pm	$\{zx(7z^2 - 3r^2), yz(7z^2 - 3r^2)\}$	$\{k_zk_x(7k_z^2 - 3k^2), k_yk_z(7k_z^2 - 3k^2)\}$
	Q_{43}^\pm	$\{zx(x^2 - 3y^2), yz(x^2 - 3y^2)\}$	$\{k_zk_x(k_x^2 - 3k_y^2), k_yk_z(k_x^2 - 3k_y^2)\}$
A_{1u}	Q_{54}^-	$xyz(x^2 - y^2)$	$k_x\hat{x} + k_y\hat{y} + k_z\hat{z}$ $k_z\hat{z} - k_x\hat{x}, k_z\hat{z} - k_y\hat{y}$
A_{2u}	Q_{10}	z	$k_y\hat{x} - k_x\hat{y}$
	Q_{30}	$z(5z^2 - 3r^2)$	
B_{1u}	Q_{32}^-	xyz	$k_x\hat{x} - k_y\hat{y}$
B_{2u}	Q_{32}^+	$z(x^2 - y^2)$	$k_y\hat{x} + k_x\hat{y}$
E_u	Q_{11}^\pm	$\{x, y\}$	
	Q_{31}^\pm	$\{x(5z^2 - r^2), y(5z^2 - r^2)\}$	$\{k_z\hat{z}, k_y\hat{z}\}, \{k_z\hat{x}, k_z\hat{y}\}$
	Q_{33}^\pm	$\{x(x^2 - 3y^2), y(3x^2 - y^2)\}$	

表 2 正方晶 (D_{4h}) における規約表現と基底関数 [51]。

式 (20) と式 (21) で表されるような多極子テンソルは、全角運動量 J を成分とするスティーブンスの等価演算子で表すことができる。ランク p の規約テンソル ($2p + 1$ 成分) の q 成分は $p = q$ の場合では

$$\hat{J}_p^{(p)} = (-1)^p \sqrt{\frac{(2p-1)(2p-3)\cdots 3 \cdot 1}{2p(2p-2)\cdots 2}} \hat{J}_+^{(p)} \quad (24)$$

となり、 $q < p$ の場合では

$$\hat{J}_{q-1}^{(p)} = \frac{1}{\sqrt{(p+q)(p-q+1)}} [\hat{J}_-, \hat{J}_q^{(p)}] \quad (25)$$

と表される。ここで、合成角運動量 J の多重項を考える。一般のテンソル演算子の行列要素は角運動量の固有状態を用いて表すことができ、Wigner-Eckart の定理として

$$\langle JM | \hat{J}_q^{(p)} | JM' \rangle = \langle J || \hat{J}^{(p)} || J \rangle (-1)^{J-p-M} \begin{pmatrix} J, J, p \\ -M, M', q \end{pmatrix} \quad (26)$$

のように表記できる。 $\langle J || \hat{J}^{(p)} || J \rangle$ は還元行列要素と呼ばれ M, M' に依らない定数である。最後の括弧は Wigner の $3j$ 記号である。また、整数でないランクや $2J$ より大きなランクは禁止される。スティーブンスの等価演算子の具体例として、合成角運動量を J とした場合を考える。座標 x, y, z の 2 次では

$$\sum_i (3z_i^2 - r_i^2) = \alpha_J \langle r^2 \rangle \{3J_z^2 - J(J+1)\} = \alpha_J \langle r^2 \rangle O_{20} \quad (27)$$

$$\sum_i (x_i^2 - y_i^2) = \alpha_J \langle r^2 \rangle \{J_x^2 - J_y^2\} = \alpha_J \langle r^2 \rangle O_{22} \quad (28)$$

$$\sum_i x_i y_i = \alpha_J \langle r^2 \rangle \frac{J_x J_y + J_y J_x}{2} = \alpha_J \langle r^2 \rangle O_{xy} \quad (29)$$

となる。ここで、 O_{20}, O_{22}, O_{xy} は結晶の対称性を点群で表す場合の既約表現の基底である。 α_J は 2 次のスティーブンス因子であり、 J により決定される定数である。

1.4 局所的な空間反転対称性の欠如した系

1.4.1 結晶構造

これまで、空間反転対称性の欠如した系におけるスピン軌道相互作用と電子構造について簡単に述べた。これまでの研究分野では「グローバルな空間反転対称性の欠如した結晶」が主な研究対象とされてきた。近年その研究が拡張され、「局所的な空間反転対称性の欠如した結晶」に関する研究が盛んに行われている [29]。例えば、多層系超伝導体に関する理論的研究 [30, 31, 32, 33, 34, 35, 36, 37, 38, 39, 40] が行われており、実験的に $\text{CeCoIn}_5/\text{YbCoIn}_5$ 人工超格子で新奇超伝導状態の実現が示唆されている [41, 42, 43]。

ここでは、局所的な空間反転対称性の欠如した結晶について説明する。局所的な空間反転対称性の欠如した結晶とは結晶全体として空間反転対称性が保存されるが、結晶中の原子サイトでは空間反転対称性が破れているものを指す。この結晶ではユニットセル内に複数の原子が存在して、副格子の自由度が現れる。具体例として 1 次元ジグザグ格子 (強磁性超伝導体 $\text{UGe}_2, \text{URhGe}, \text{UCoGe}$)、2 次元ハニカム格子 (グラフェン)、3 次元多層系 (重い電子系人工超格子 $\text{CeCoIn}_5/\text{YbCoIn}_5$)、ダイヤモンド格子等が挙げられる。図 7 は 1 次元ジグザグ格子と 2 次元ハニカム格子の結晶構造を示している。また、原子サイトの周りの構造は各副格子点で異なるので、

各格子点に現れる奇パリティの結晶場も副格子に依存する。そのため、局所的な空間反転対称性が欠如した結晶では副格子に依存する ASOC が現れる。

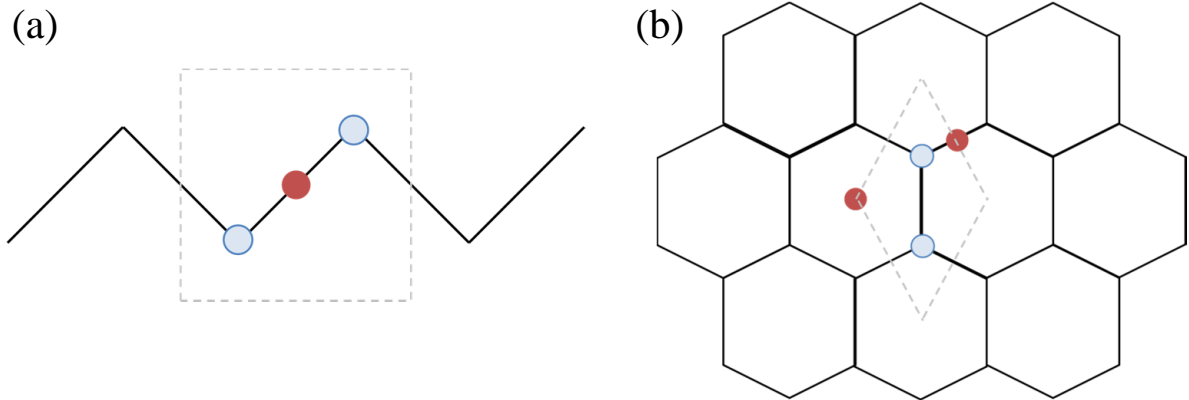


図 7 (a) 1次元ジグザグ格子。(b) 2次元ハニカム格子。赤丸が空間反転対称中心点、青丸が原子サイトを表す。原子サイトは反転中心からずれた位置に存在する。つまり、原子サイトでは局所的に空間反転対称性が破れている。

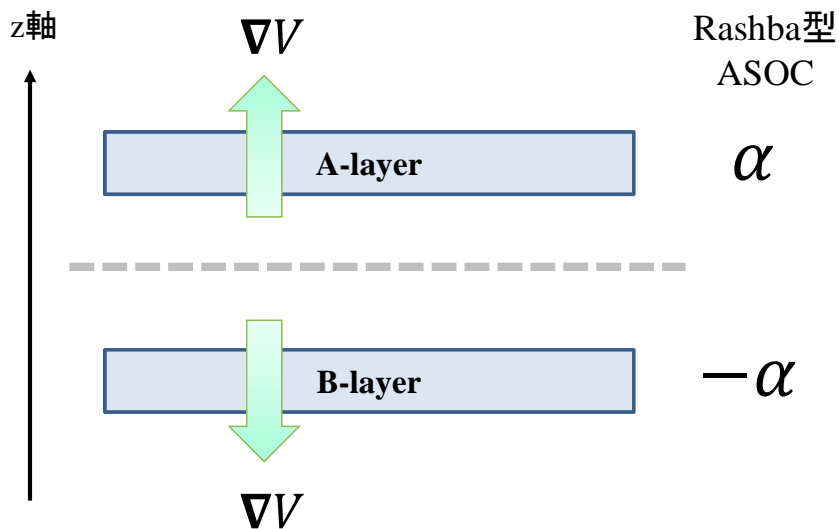


図 8 二層 Rashba 系の概念図。点線が空間反転対称面 (xy 平面) を表す。各層は空間反転対称性が破れた位置に存在する。緑矢印は z 軸方向に対するポテンシャル勾配 (局所的な奇パリティの結晶場) を示しており、層間で逆向きとなる。

1.4.2 副格子自由度を伴う反対称スピン軌道相互作用

ここでは、具体的に二層系を考慮して副格子自由度を伴う ASOC について説明する。図 8 に二層系の構造を示す。空間反転中心は二層の間に位置しており、空間反転対称性が保たれている。各層では局所的に空間反転対称性が破れている。さらに、 xy 平面における鏡映対称性の破れが各層

で異なっており、*A* 層と *B* 層で *z* 軸方向に対して逆向きに奇パリティの結晶場が生じる。その結果、二層系では各層における ASOC 結合定数の符号が逆となるようなスタaggerドな Rashba 型 ASOC が現れる。また、空間反転対称性は系全体で保存されているため、この ASOC の効果はユニットセル全体で平均化すると消失する。

1.4.3 奇パリティ多極子

微視的多極子秩序のこれまでの研究は、*d* 電子系や *f* 電子系での一つの原子サイトに局在した偶パリティ多極子が主な対象とされてきた。局所的な空間反転対称性の破れた系では、反転対称のない原子サイトで奇パリティ多極子が活性となる。近年、局所的な空間反転対称性の欠如した結晶における奇パリティ多極子秩序相における新奇量子現象の理論的研究が盛んに行われている [44, 45, 46, 47, 48, 49, 50, 51, 52, 53, 54, 55, 56, 57]。奇パリティ磁気多極子の物質候補は多く存在しており、磁気単極子では反強磁性コランダム型酸化物 Cr_2O_3 [25]、磁気トロイダルでは LiCoPO_4 [58, 59]、磁気四極子では層状イリジウム酸化物 Sr_2IrO_4 [60, 61]、反強磁性カイラル正四角台塔系 $\text{Ba}(\text{TiO})\text{Cu}_4(\text{PO}_4)_4$ [62] などがあげられる。また、 α 型パイロクロア酸化物 $\text{Cd}_2\text{Re}_2\text{O}_7$ において電気八極子状態の実現可能性が示唆されている [97, 96]。

奇パリティ多極子状態は偶パリティ多極子秩序により形成される。図 9 に二層 Rashba 系における電気八極子状態を示す。層間で秩序変数が逆符号となるような、偶パリティ電気四極子秩序が生じたとする。この場合、スタaggerドな Rashba 型 ASOC の効果により、奇パリティ電気八極子状態が層間で同符号となるような強的な電気八極子秩序が誘起される。空間平均することにより、スタaggerドな Rashba 型 ASOC の効果と電気四極子モーメントは系全体で消失する。一方、層間で強電気八極子秩序状態が現れているため、系全体では電気八極子モーメントが現れる。このように、局所的な空間反転対称性の欠如した結晶では偶パリティ多極子が空間反転対称性を破るような電子秩序状態を取る場合、系全体で奇パリティ多極子が現れる。図 10 に局所的な空間反転対称性の欠如した結晶における多極子の例を示す。

	Rashba型 ASOC	反強 電気四極子秩序	強 電気八極子秩序
A-layer	α	Δ_{EQ}	Δ_{EO}
B-layer	$-\alpha$	$-\Delta_{EQ}$	Δ_{EO}
空間平均	0	0	Δ_{EO}

図 9 二層 Rashba 系における電気八極子状態の概念図。偶パリティ電子四極子が層間で反強秩序を形成する場合、スタaggerドな Rashba 型 ASOC の効果により層間で強的な奇パリティ電気八極子秩序状態が誘起される。したがって、系全体では電気八極子秩序状態が現れる。

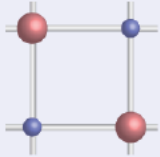
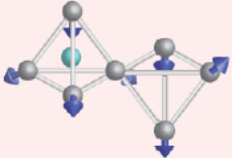
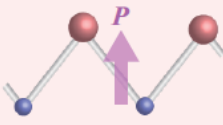
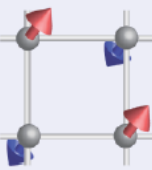
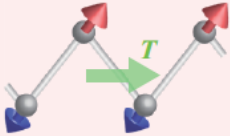
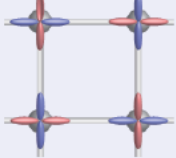
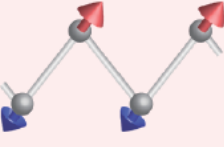
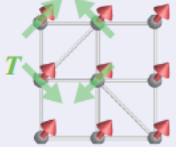
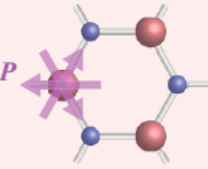
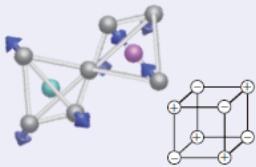
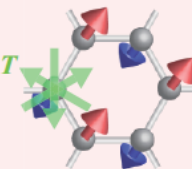
rank l	electric	magnetic	toroidal
$l = 0$ (monopole)	CO on square 	magnetic excitations in spin ice 	
$l = 1$ (dipole)	CO on zigzag 	z-AFM on square 	z-AFM on zigzag 
$l = 2$ (quadrupole)	AFOO on square 	z-AFM on zigzag 	z-FM on the Shastry-Sutherland lattice 
$l = 3$ (octupole)	CO on honeycomb 	all-in/all-out order in spin ice 	z-AFM on honeycomb 

図 10 局所的な空間反転対称性の結晶における多極子 (文献 [48] から引用)。ランク l が 3 までの電気、磁気、磁気トロイダル多極子の例を表す。赤色 (青色) の欄は奇 (偶) パリティ多極子を示す。 P は電気双極子、 T は磁気トロイダル双極子を示す。

奇パリティ多極子は自発的に空間反転対称性を破る電子状態のために、奇パリティ多極子秩序状態ではエキゾチックな量子現象が期待できる。これまで、磁気的な奇パリティ多極子秩序相における磁気電気応答が調べられている。例えば、ジグザグ格子における磁気四極子秩序相での磁気電気効果 [44] (図 11)、ハニカム格子における磁気トロイダル秩序相での磁気電気効果・ホール効果 [45] (図 12) などがあげられる。このような奇パリティ多極子磁気多極子では空間反転対称性と時間反転対称性がともに破れるため、電場磁場に対する非対角応答が現れる。

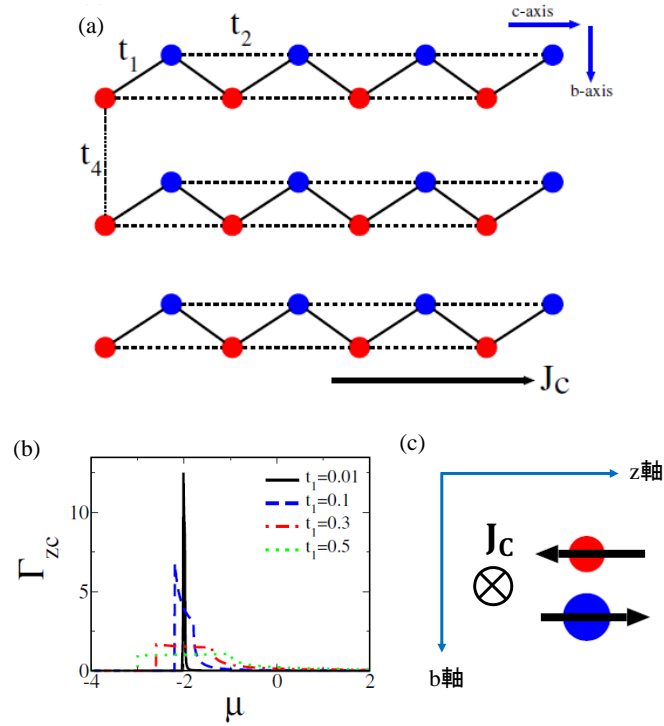


図 11 ジグザグ格子系における磁気四極子秩序相での磁気電気効果 (文献 [44] から引用)。ユニットセル内に赤丸と青丸で示された 2 つの副格子が存在する。 c 軸方向に電流を流すことにより、 z 軸方向に反強磁性が現れることで磁気四極子モーメントが誘起される。

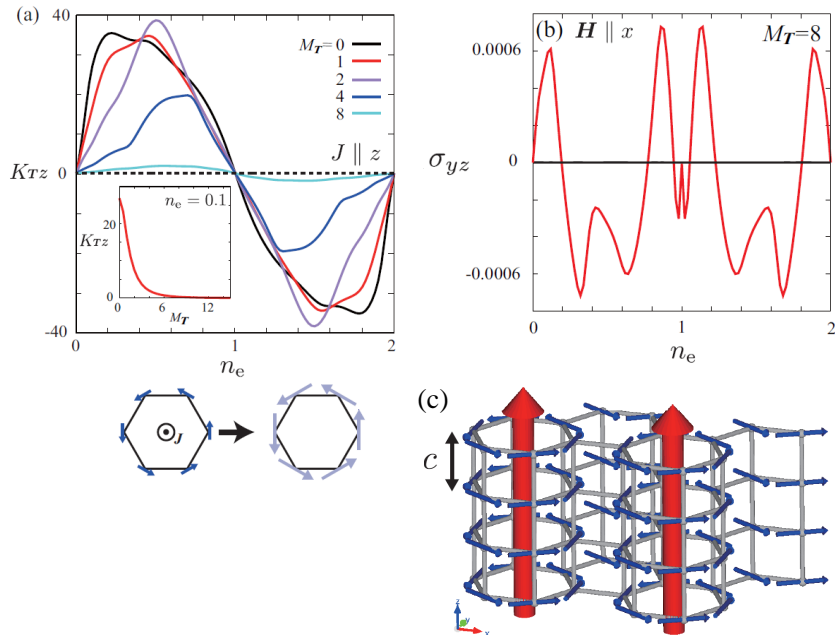


図 12 ハニカム格子系における磁気トロイダル秩序相での磁気電気効果・ホール効果 (文献 [45] から引用)。 z 軸方向に電流を流すことにより、磁気トロイダルモーメントが誘起される。

1.5 研究目的

空間反転対称性の破れの効果は反対称スピン軌道相互作用を通じて現れる。長年、空間反転対称性の欠如した結晶における量子現象を対象とした研究が行われており、反対称スピン軌道相互作用によりエキゾチックな輸送現象が現れることが明らかにされている。一方、局所的な空間反転対称性の欠如した結晶では、通常観測される反強磁性秩序や反強電気四極子秩序などの電子秩序状態が奇パリティの多極子モーメントをもつ可能性がある。この奇パリティ多極子秩序状態では、結晶構造に起因する副格子に依存する反対称スピン軌道相互作用と空間反転対称性の破れによる協力効果により特異な量子現象が生じる。奇パリティ磁気多極子秩序相における磁気電気応答を対象とする研究は理論・実験ともに盛んに行われている。しかしながら、奇パリティ電気多極子秩序相における磁気電気応答に関する研究はこれまで行われていない。また、最近行われた光学的測定や磁気トルク測定により、二層系銅酸化物高温超伝導体 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ (YBCO) の擬ギャップ相において奇パリティ電気八極子秩序状態が実現している可能性がある。さらに、 α 型パイクロア酸化物 $\text{Cd}_2\text{Re}_2\text{O}_7$ において $T_s = 200\text{K}$ 以下で電気八極子秩序状態が実現している可能性がある。そこで本研究の目的は、(1) 高次の奇パリティ電気多極子である電気八極子秩序状態の熱力学的安定性に対する副格子依存 ASOC の効果を調べること、(2) 電気八極子秩序状態における磁気電気応答を明らかにすること、(3) YBCO の擬ギャップ相における電気八極子秩序状態の実現可能性を調べることである。(2) では $\text{Cd}_2\text{Re}_2\text{O}_7$ を念頭において、電気八極子秩序状態におけるスピンホール効果と磁気電気効果 (エーデルシュタイン効果) を調べる。(3) では YBCO の擬ギャップ相が電気八極子秩序相であると仮定して、磁気感受率の計算を行い磁気トルク測定の結果と計算結果を比較する。さらに、磁気電気応答を調べることにより実験に対する理論的提案を与える。

1.6 論文構成

本論文は以下のように構成される。第 2 章では二層 Rashba 系における電気八極子秩序状態の熱力学的安定性について議論する。特に層依存 Rashba 型 ASOC が電気多極子秩序状態に与える影響に注目する。前方散乱効果と層依存 Rashba 型 ASOC を考慮した二層系モデルを構築して、前方散乱効果に対して平均場近似を行うことでこの二層系モデルを解析する。その後、二層系での電気四極子状態と電気八極子状態を定義して、各電気多極子状態における電子構造を説明する。さらに、電気多極子感受率を導入して電気多極子状態の熱力学的安定性を議論する。ここでは、層依存 Rashba 型 ASOC の効果が大きい場合と小さい場合で電気多極子状態の安定性機構が異なることを説明する。さらに、磁場中における電気八極子秩序状態の振る舞いを調べる。面直磁場中では電気八極子状態と通常状態の間に量子臨界点が現れること、面内磁場中における電気八極子状態の電子状態が非対称なバンド構造を取ることを示す。

第 3 章では電気八極子秩序状態における磁気電気応答について議論する。特に、Rashba 系における磁気電気応答との違いに注目する。最初にスピンホール効果を調べる。ここでは、スピンホー

ル伝導率に対して電気八極子秩序状態特有の寄与が存在することで、新奇なスピホール効果が生じることを示す。次に磁気電気効果を調べる。波数空間での電気八極子秩序状態におけるスピン構造により、電気八極子秩序相では Rashba 系とは異なる磁気電気効果が現れることを示す。

第 4 章ではこれまでの手法を用いて、二層系銅酸化物高温超伝導体 YBCO における電気八極子秩序状態の実現可能性を調べる。YBCO に関する簡単なレビューを示し、最近の実験結果により擬ギャップ相では空間反転対称性の破れた電子状態が現れている可能性があることを記述する。その後、YBCO の結晶構造に起因する異方性を考慮した場合における計算結果を示す。最初に、電気八極子状態の秩序変数とネマティシティを示す。その後、磁気感受率を計算することにより、磁気トルク・面内磁気感受率・面直-面内磁気感受立異方性を計算して実験結果とコンシステントであることを示す。さらに、巨大な磁気異方性を伴う超伝導状態の可能性についても議論する。最後に、理論的提案として磁気電気応答の結果を示す。

第 5 章では総括を行う。

2 二層 Rashba 系における電気多極子秩序状態の熱力学的安定性

2.1 導入

本章では二層 Rashba 系における電気多極子秩序状態の熱力学的安定性に対する ASOC の効果を調べる。本章で対象とする電気多極子状態は各層に現れる局所的な電気四極子モーメントに由来しており、フェルミ面の自発的な回転対称性の破れを伴う d 波ポメランチュク不安定性に起因すると仮定する。二層ルテニウム酸化物 $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ は低温高磁場領域に置いて電子ネマティック的な振る舞いをしており [63]、この電子ネマティック状態の原因の一つとして d_{xy} 軌道電子における d 波ポメランチュク不安定性が考えられている。そのため、本章では $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ の d_{xy} 軌道電子に由来する γ バンドを考慮して計算が行われる。また近年、中性子散乱測定が行われており、電子ネマティックな振る舞いをする領域ではスピン密度波状態を形成している可能性が示唆されている [64]。そのため、本章の主な目的は「電気多極子秩序状態の熱力学的安定性に対する層依存型 ASOC の効果を明らかにすること」であることを強調しておく。

本章は以下のように構成される。初めに、 $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ について簡単なレビューを示す。次に、二層 Rashba 系に対するモデルハミルトニアンを導入して、二層系における電気多極子状態について説明する。その後、電気多極子感受率を用いて電気多極子秩序状態の安定性を議論する。さらに、ASOC の効果を明らかにするために、電気多極子秩序相に関する α - μ 相図を示す。最後に、磁場中における電気八極子秩序状態の安定性とバンド構造の結果を示す。

2.2 二層ルテニウム酸化物 $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ に関するレビュー

$\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ の単結晶試料はフラックス法により作成され、 $T_c = 104\text{K}$ の金属強磁性体であると報告された (第一世代試料) [65]。しかしながら、この強磁性は $\text{Sr}_4\text{Ru}_3\text{O}_{10}$ 等の不純物に起因していた。その後、Infra-red Image Furnace 法を用いて高純度の単結晶試料が得られ (第二世代試料)、低温で常磁性体的な振る舞いをする事が報告された [66]。さらに浮遊帯域法を用いて大型の単結晶試料の作成に成功し、基底状態が Wilson 比 ~ 10 となるような強磁性寸前の常磁性金属であることが報告された [67]。さらに $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ は高純度化され (第三世代試料)、磁気抵抗測定により面内磁気抵抗の異方性が確認された [63]。この実験結果により、低温高磁場領域 (温度 $\sim 1\text{K}$ 、磁場 $\sim 8\text{T}$) では $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ の電子状態が電子ネマティック状態であるとされているが、中性子散乱実験から二種類のスピン密度波状態が現れていることが示唆されている [64]。

2.2.1 結晶構造

$\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ は Ruddlesden-Popper シリーズ ($\text{Sr}_{n+1}\text{Ru}_n\text{O}_{3n+1}$) の $n=2$ に属する物質であり、電気伝導を担う RuO_2 面と絶縁面である SrO 面が存在する。 RuO_2 面がユニットセル内で二枚存在するため、 $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ の結晶構造は二層構造となる。図 13 は $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ の結晶構造を示している。中性子散乱測定により、 $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ の空間群は直方晶であり、格子定数は $a = b = 5.5006 \text{ \AA}$ 、

$c = 20.725 \text{ \AA}$ であると報告されている [68, 69, 70, 71]。また隣り合う RuO_6 八面体は c 軸に対して逆向きに 6.8° 回転している。そのためユニットセルの大きさが、正方晶 (RuO_6 八面体の回転を考慮しない場合) の場合に対して $\sqrt{2} \times \sqrt{2}$ 倍になる。

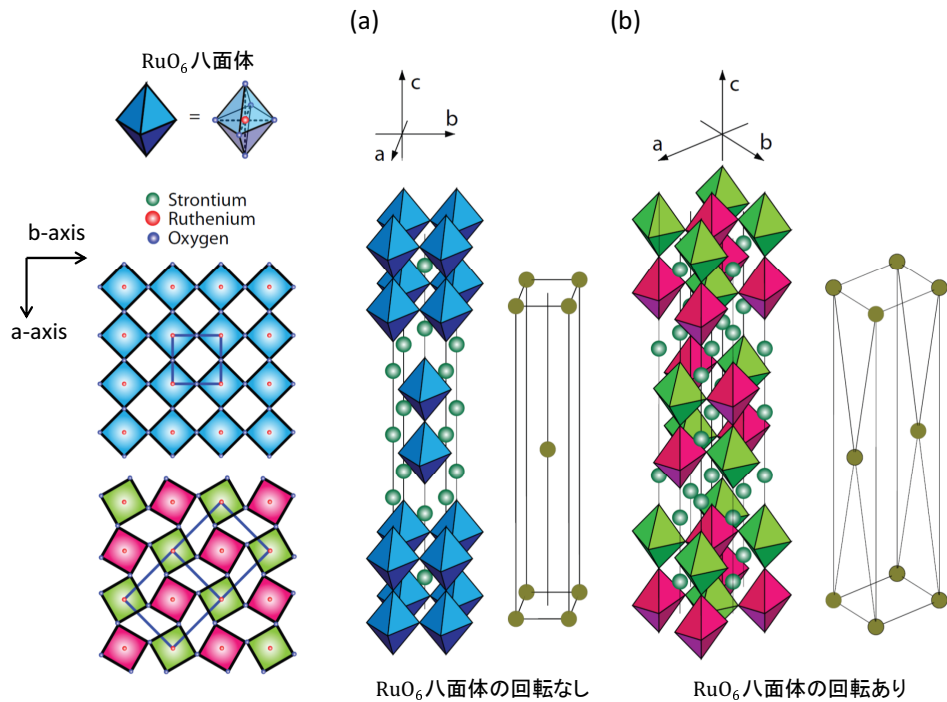


図 13 $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ の結晶構造。Ru サイトは RuO_6 八面体の中心に位置している (左上図)。左図は ab 面内の RuO_2 面を表している。(a) RuO_6 八面体の微小回転がない場合の結晶構造。(b) RuO_6 八面体の微小回転がある場合の結晶構造。隣り合う RuO_6 八面体は逆向きに c 軸に対して $\sim 6.8^\circ$ 回転しているため [68]、赤色と緑色で表される二種類の RuO_6 八面体が存在する。

2.2.2 電子構造

$\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ における各原子のイオン価は Sr^{2+} 、 Ru^{4+} 、 O^{2-} である。 $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ の電子構造は $\text{Ru}4d$ 電子と $\text{O}2p$ 電子の混成したバンドにより構成され、フェルミ準位近傍に位置する Ru の t_{2g} 軌道が物性を担っている。図 14 の (a) は ARPES 測定、(b) は LS 結合を考慮した LDA 計算により得られるフェルミ面を示している [72]。各フェルミ面を構成する主な Ru の $4d$ 電子は δ 面では $d_{x^2-y^2}$ 軌道、 α_1, α_2 面では (d_{yz}, d_{zx}) 軌道、 β 面では (d_{yz}, d_{zx}) 軌道、 (γ_1, γ_2) 面では d_{xy} 軌道となる。図 14 (c) は d_{xy} 軌道の状態密度を示しており、 γ_2 バンドの状態密度がフェルミ準位より $\sim 1\text{meV}$ と $\sim 4\text{meV}$ 低い位置にピークをもつ。また STM 測定により、 560mK におけるトンネルコンダクタンスに 100meV 程度の擬ギャップ構造が観測されており、磁場 $\sim 8\text{T}$ でフェルミ準位近傍の局所状態密度が数 meV のエネルギースケールで大きく変化していることが観測されている [73]。さらに質量増大が発現しており、特にヴァン・ホープ特異点近傍に位置する γ_2 フェルミ

面に対して顕著となる。また量子振動測定からメタ磁性前後 (磁場 $\sim 8\text{T}$) におけるフェルミ面の再構成が報告されている [74]。図 15 は量子振動実験による磁気抵抗・量子振動成分を示しており、メタ磁性転移前後でフェルミ面が再構成している。

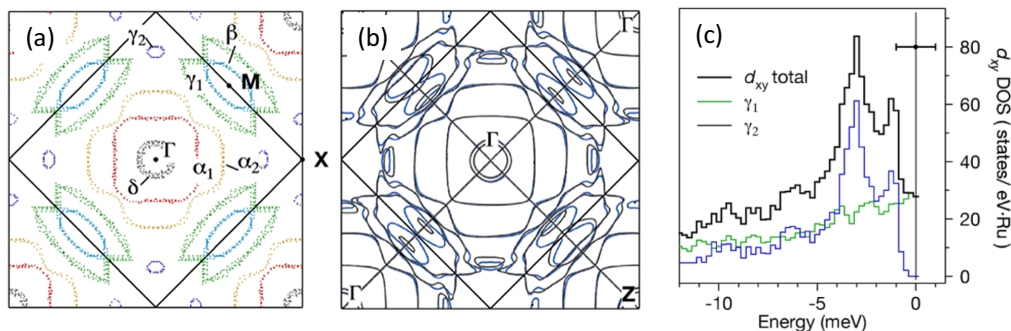


図 14 $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ のフェルミ面 [72]。 (a) ARPES 測定によるフェルミ面。 (b) LS 結合を考慮した LDA 計算によるフェルミ面。 (c) d_{xy} 軌道電子の状態密度。

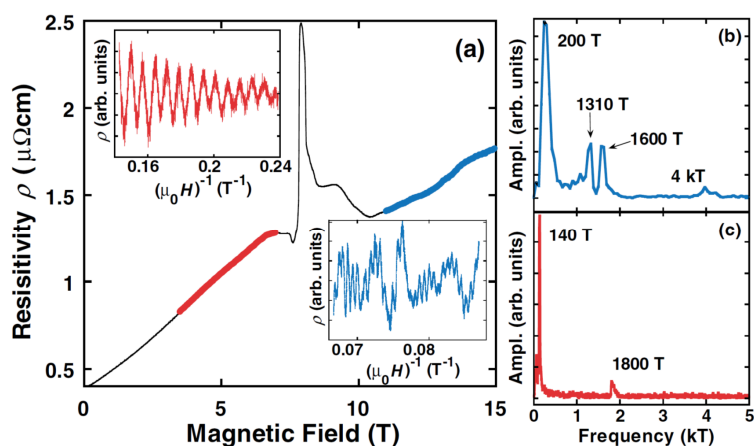


図 15 $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ の量子振動実験 [74]。 (a) 磁気抵抗 ρ 。メタ磁性転移磁場 ($\sim 8\text{T}$) において ρ に鋭いピークが見られる。 (b) はメタ磁性転移後 (青)、 (c) はメタ磁性転移前 (赤) の磁場領域における FFT スペクトルを示している。

$\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ のフェルミ面は次の 3 つの過程を考慮することで定性的に説明できる。(1) フェルミ準位近傍のバンドは主に Ru の 4d 軌道の電子により構成されていること。(2) RuO_2 面の二層構造に伴う bilayer-splitting の効果。(3) RuO_6 八面体の微小回転によるフェルミ面の折りたたみの効果。ここで Sr_2RuO_4 の α 、 β 、 γ 面を基準とすると、これらのフェルミ面は bilayer-splitting の効果により分裂する。さらに RuO_6 八面体の微小回転により ab 面内のユニットセルが $\sqrt{2} \times \sqrt{2}$ 倍と拡張されるため、ブリルアンゾーン領域が 45° 回転して半分になりフェルミ面の折りたたみが生じる。これら 3 つの過程を考慮することで、 $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ のフェルミ面をある程度再現できる。本

章では簡単化のために RuO_6 八面体の微小回転を考慮せず、 d_{xy} 軌道に由来する γ バンドのみに注目する (図 16)。

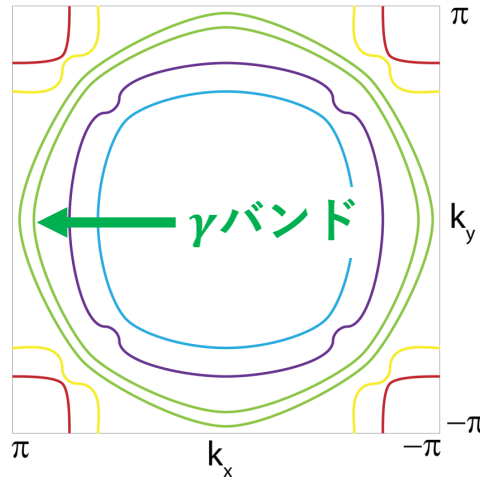


図 16 RuO_6 八面体の微小回転効果を考慮しない場合におけるフェルミ面。ここでは bilayer-splitting の効果を考慮しており、緑のフェルミ面が γ バンドにおけるフェルミ面を示す。

2.2.3 電子ネマティック的な振る舞い

RuO_2 面の磁気抵抗測定により、電子ネマティック的な振る舞いが観測されている [63]。図 17 (a) は RuO_2 面内における磁気抵抗の磁場依存性 (H, θ) を示している。ここで、 θ は印加磁場に対する ab 面からの角度である。 RuO_2 面に流れる電流に対して磁場の面内成分が平行か垂直により、磁気抵抗の振る舞いが異なる。磁場の面内成分が電流に対して平行の場合、緑矢印で示されているように垂直な場合と比較して大きな抵抗が観測されている。図 17 (b) は温度 100mK において、磁場を c 軸に印加した場合と ab 面から 77° 傾けて印加した場合を示している。ここで黒線と赤線は各々 a 軸方向と b 軸方向に対する磁気抵抗を表している。 c 軸磁場中では磁気抵抗の異方性はほとんど現れないが、磁場が面内成分をもつ場合では $\mu_0 H \sim 7.7\text{T}$ で磁気抵抗に大きな異方性が生じる。また、異方性が現れる領域では c 軸磁場中において面内磁気抵抗テンソル ρ_{ab} 、 ρ_{ba} が大きく変化していることが報告されている [75]。このように、低温高磁場領域において $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ に電子ネマティック的な振る舞いが観測されている。また、磁気抵抗の容易化軸は印加磁場の ab 面内成分に対して垂直方向となり、図 17 (b) の右図では b 軸が容易化軸となる。容易化軸は磁場の ab 面内成分に依存するため、面内磁場成分を a 軸から b 軸に変化させると容易化軸は b 軸から a 軸へ移る。このような振る舞いは高純度の二次元電子ガスでも報告されている [76, 77, 78]。

図 18 に c 軸磁場中における $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ の磁場・温度相図を示す [79]。この相図は交流磁化率・熱膨張率・直流磁化率・抵抗・磁歪の測定により得られており、これら測定点のドーム型内部領域において電子ネマティック的な振る舞いを伴う電子秩序状態が安定となる。赤矢印を境にして高温側では二次相転移、低温側では一次相転移が生じる。また高温側から温度を下げていき、この電子

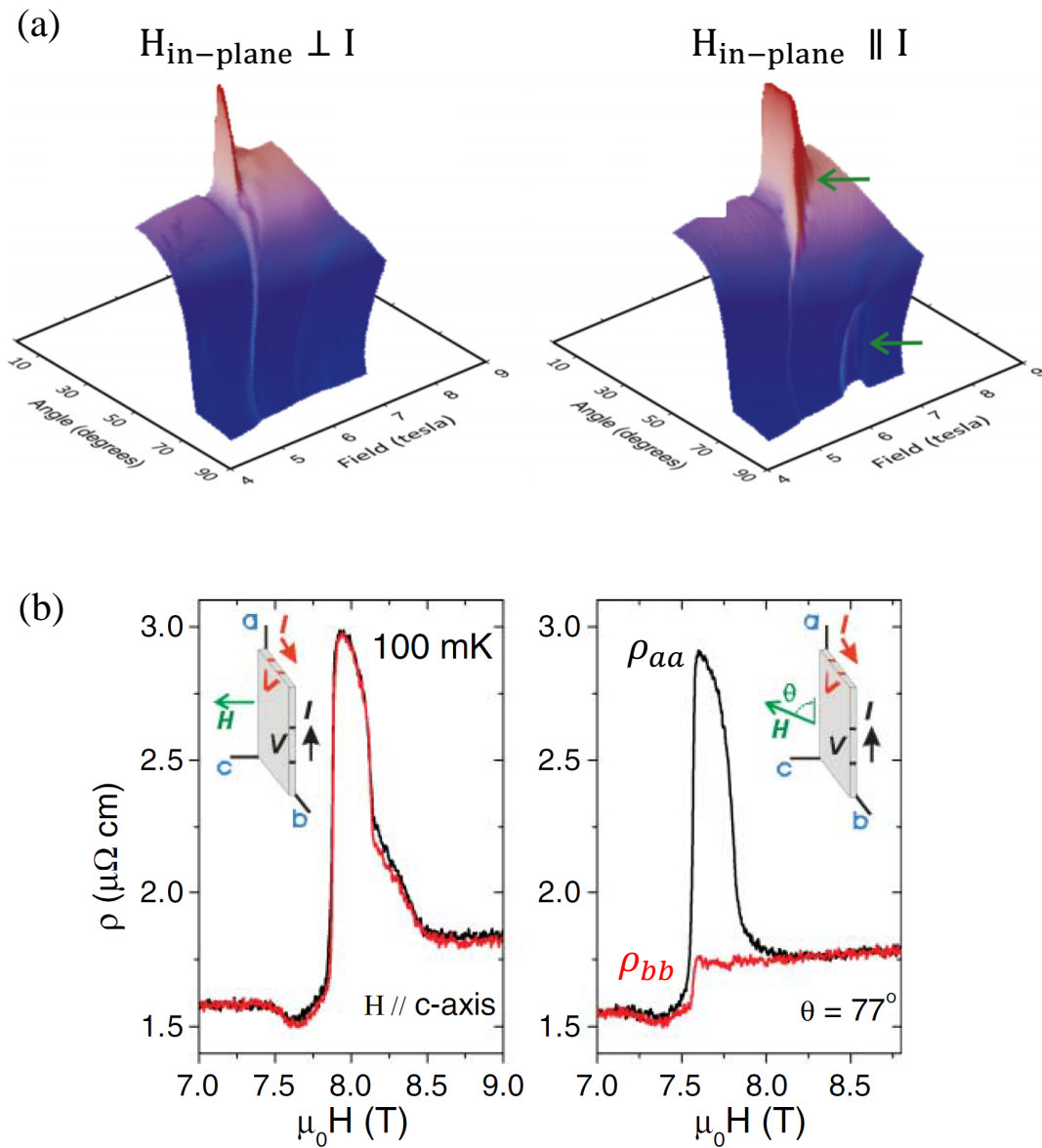


図 17 RuO₂ 伝導面における磁気抵抗測定 [63]。この測定は温度 $T = 100\text{mK}$ で行われている。(a) RuO₂ 面内における磁気抵抗の磁場依存性 (H, θ)。 $H_{\text{in-plane}}$ は印加磁場の面内成分、 I は電流である。 $H_{\text{in-plane}} \parallel I$ における磁気抵抗は、緑矢印が示す領域において $H_{\text{in-plane}} \perp I$ の場合よりも大きい。(b) 磁場を c 軸方向と ab 面から c 軸方向へ 77° 傾けて印加した場合の面内磁気抵抗。赤線は b 軸方向、黒線は a 軸方向の磁気抵抗を示している。磁場が面内成分を持つ場合、磁気抵抗に異方性が生じる。

秩序相に相転移する場合、比熱の飛びが確認されている [82]。

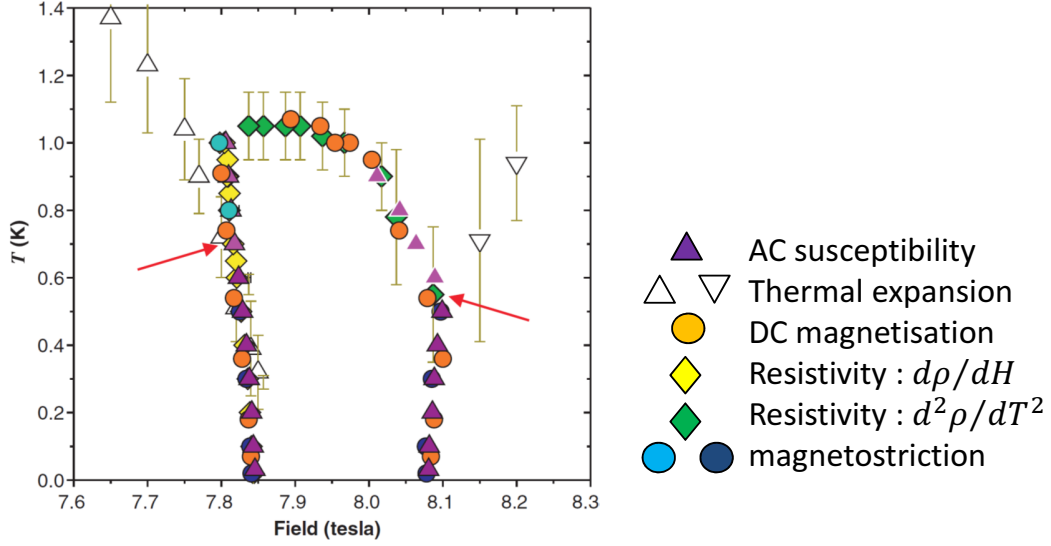


図 18 c 軸磁場中における $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ の温度・磁場相図 [79]。交流磁化率のピーク (紫三角形)、熱膨張率 (白三角形) [81]、直流磁化率 (黄丸)、抵抗 (黄・緑ダイヤモンド)、磁歪 (青丸) の測定から得られる。

2.3 モデル

本セクションでは電気八極子秩序状態の熱力学的安定性に対する ASOC の効果を調べる。研究対象とする系は局所的な空間反転対称性の欠如した結晶構造をもつ二層 Rashba 系である。また、通常状態において $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ の γ バンドのフェルミ面 (図 16) を考慮したパラメーターを用いる。モデルハミルトニアンを

$$H = H_{\text{kin}} + H_{\text{ASOC}} + H_{\perp} + H_{\text{f}} \quad (30)$$

$$H_{\text{kin}} = \sum_{\mathbf{k}} \sum_{s=\uparrow,\downarrow} \sum_{l=A,B} \varepsilon_{\mathbf{k}} c_{\mathbf{k}sl}^{\dagger} c_{\mathbf{k}sl} \quad (31)$$

$$H_{\text{ASOC}} = \sum_{\mathbf{k},s,s',l} \alpha_l \mathbf{g}_{\mathbf{k}} \cdot \boldsymbol{\sigma}^{ss'} c_{\mathbf{k}sl}^{\dagger} c_{\mathbf{k}s'l} \quad (32)$$

$$H_{\perp} = t_{\perp} \sum_{\mathbf{k},s} [c_{\mathbf{k}sA}^{\dagger} c_{\mathbf{k}sB} + \text{h.c.}] \quad (33)$$

$$H_{\text{f}} = -\frac{g_1}{2N} \sum_{\mathbf{k},\mathbf{k}',l} d_{\mathbf{k}} d_{\mathbf{k}'} n_{\mathbf{k}l} n_{\mathbf{k}'l} - \frac{g_2}{2N} \sum_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} d_{\mathbf{k}} d_{\mathbf{k}'} [n_{\mathbf{k}A} n_{\mathbf{k}'B} + n_{\mathbf{k}B} n_{\mathbf{k}'A}] \quad (34)$$

として導入する。ここで、 $c_{\mathbf{k}sl}$ ($c_{\mathbf{k}sl}^\dagger$) はスピン $s = \uparrow, \downarrow$ 、波数 \mathbf{k} 、層 $l = A, B$ における消滅演算子 (生成演算子) である。 $n_{\mathbf{k}l} = \sum_s c_{\mathbf{k}sl}^\dagger c_{\mathbf{k}sl}$ は粒子数演算子、 $\boldsymbol{\sigma} = (\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z)$ はパウリ行列、 N は各層におけるサイト数である。

第一項 H_{kin} は運動エネルギーを表している。 $\varepsilon_{\mathbf{k}}$ は次近接ホッピングまでを考慮した二次元エネルギー分散であり、化学ポテンシャル μ を含めて $\varepsilon_{\mathbf{k}} = -2t_x \cos k_x - 2t_y \cos k_y - 4t_2 \cos k_x \cos k_y - \mu$ と表される。 t_x と t_y は x 方向と y 方向に対する最近接ホッピングパラメーターであり

$$t_x = t_1 + \delta t_1 \quad (35)$$

$$t_y = t_1 - \delta t_1 \quad (36)$$

と書ける。ここで、 δt_1 は x 方向と y 方向の異方性を表すパラメーターである。最近接ホッピングパラメーターをエネルギー単位として用いる $t_1 = 1$ 。 t_2 は次近接ホッピングパラメーターである。第 2 章と第 3 章では正方晶の場合を考慮しており、 $(\delta t_1, t_2) = (0, 0.35)$ とする。

第二項 H_{ASOC} は層依存 Rashba 型 ASOC を表す。ASOC が生じるためには局所的に空間反転対称性が欠如すればよい。したがって、結晶構造が空間反転対称性を保存していたとしても、各原子サイトで空間反転対称性が欠如していれば各原子サイトに ASOC が現れる。この各原子サイトに現れる ASOC は、ユニットセル全体で平均化すると消失するように各原子サイトに依存する。二層系では結合定数は $(\alpha_A, \alpha_B) = (\alpha, -\alpha)$ となる。ここでは Rashba 型の g ベクトル $g_{\mathbf{k}} = (-\sin k_y, \sin k_x, 0)$ を用いる。この層依存 Rashba 型 ASOC が電気四極子秩序状態の熱力学的安定性に与える影響を明らかにすることが目的の一つである。

第三項 H_{\perp} は層間ホッピングを表す。本研究では擬二次元的二層系を対象とするため、小さな層間ホッピングパラメーター $t_{\perp} = 0.1$ を用いる。層間ホッピングと ASOC の比 α/t_{\perp} が ASOC の効果の程度を与えるため [32]、擬二次元的二層系では ASOC の効果が大きくなると期待できる。

第四項 H_f は電子間の前方散乱効果を表す。この有効的な相互作用は二次元ハバードモデルに対して汎関数繰り込み群を適応することにより得られており [83, 84, 85, 86]、 d 波ポメランチュク不安定性 (dPI) と呼ばれるフェルミ面の自発的な変形を誘起する [87, 88, 89, 90]。また、スピン揺らぎを考慮した d - p モデルに基づく解析から dPI が現れることが示されている [91]。対称性の観点から、この dPI は電気四極子モーメント $O_{x^2-y^2}$ と等価である。 H_f では d 波形状因子 $d_{\mathbf{k}} = \cos k_x - \cos k_y$ を採用しており、この前方散乱効果が各層における局所的な電気四極子を誘起する。また、層内と層間の電子間前方散乱効果を考慮しており、 g_1 を層内前方散乱効果の結合定数、 g_2 を層間前方散乱効果の結合定数とする。

2.4 平均場近似

式 (34) の前方散乱効果 H_f に対して平均場近似を適応する。その結果、各層の電気四極子モーメントを表している、 l 層における dPI 秩序変数 Δ_l は

$$\Delta_l = \Delta_{1l} + \Delta_{2l} \quad (37)$$

$$\Delta_{1l} = -\frac{g_1}{N} \sum_{\mathbf{k}} d_{\mathbf{k}} \langle n_{\mathbf{k}l} \rangle \quad (38)$$

$$\Delta_{2l} = -\frac{g_2}{N} \sum_{\mathbf{k}} d_{\mathbf{k}} \langle n_{\mathbf{k}l} \rangle \quad (39)$$

となる。ここで、 \bar{l} は l と異なる層を示す $\{l, \bar{l}\} = \{A, B\}$ 。dPI 秩序変数 Δ_l に対して、 Δ_{1l} は層内からの寄与、 $\Delta_{2\bar{l}}$ は層間からの寄与を表す。

基底 $\hat{C}_{\mathbf{k}}^\dagger = (c_{\mathbf{k}\uparrow A}^\dagger, c_{\mathbf{k}\downarrow A}^\dagger, c_{\mathbf{k}\uparrow B}^\dagger, c_{\mathbf{k}\downarrow B}^\dagger)$ と dPI 秩序変数 Δ_l を用いることで、平均場ハミルトニアンは

$$H^{\text{MF}} = \sum_{\mathbf{k}} \hat{C}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{H}_4^{\text{MF}}(\mathbf{k}) \hat{C}_{\mathbf{k}} + E_{\text{cond}} \quad (40)$$

と書ける。ここで、 E_{cond} は系の凝縮エネルギー

$$E_{\text{cond}} = \frac{N}{2g_1} [(\Delta_{1A})^2 + (\Delta_{1B})^2] + \frac{N}{g_2} \Delta_{2A} \Delta_{2B} \quad (41)$$

を表す。また、 $\hat{H}_4^{\text{MF}}(\mathbf{k})$ は 4×4 行列であり

$$\hat{H}_4^{\text{MF}}(\mathbf{k}) = \begin{pmatrix} \xi_{\mathbf{k}A} & -\alpha\lambda_{\mathbf{k}}^+ & t_{\perp} & 0 \\ -\alpha\lambda_{\mathbf{k}}^- & \xi_{\mathbf{k}A} & 0 & t_{\perp} \\ t_{\perp} & 0 & \xi_{\mathbf{k}B} & \alpha\lambda_{\mathbf{k}}^+ \\ 0 & t_{\perp} & \alpha\lambda_{\mathbf{k}}^- & \xi_{\mathbf{k}B} \end{pmatrix} \quad (42)$$

となる。ここで、 $\lambda_{\mathbf{k}}^{\pm} = \sin k_y \pm i \sin k_x$ と $\xi_{\mathbf{k}l} = \varepsilon_{\mathbf{k}} + d_{\mathbf{k}} \Delta_l$ を導入している。

次に、ユニタリー変換

$$c_{\mathbf{k}sl} = \sum_{a=1}^4 u_{\mathbf{k}sl}^a \gamma_{\mathbf{k}a} \quad (43)$$

を行い $H_4^{\text{MF}}(\mathbf{k})$ を対角化することで、バンド表示における平均場ハミルトニアン

$$H^{\text{MF}} = \sum_{\mathbf{k}} \sum_{a=1}^4 E_{\mathbf{k}a} \gamma_{\mathbf{k}a}^\dagger \gamma_{\mathbf{k}a} + E_{\text{cond}} \quad (44)$$

が得られる。ここで、 $E_{\mathbf{k}a}$ は固有状態 a に属する準粒子のエネルギーを表す。また、式 (38) と (39) は

$$\Delta_{1l} = -\frac{g_1}{N} \sum_{\mathbf{k}, s} \sum_{a=1}^4 d_{\mathbf{k}} |u_{\mathbf{k}sl}^a|^2 f(E_{\mathbf{k}a}) \quad (45)$$

$$\Delta_{2l} = -\frac{g_2}{N} \sum_{\mathbf{k}, s} \sum_{a=1}^4 d_{\mathbf{k}} |u_{\mathbf{k}sl}^a|^2 f(E_{\mathbf{k}a}) \quad (46)$$

と記述される。 $f(E)$ はフェルミ分布関数である。式 (45) と (46) を自己無撞着に解き、通常状態と電気四極子状態と電気八極子状態の自由エネルギーを比較することで系の安定状態を求める。

ここで、エネルギー固有値 $E_{\mathbf{k}a}$ を表記する。式 (42) を対角化するユニタリ行列 $\hat{U}(\mathbf{k})$ は

$$\hat{U}(\mathbf{k}) = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} T_{\mathbf{k}-} & -\frac{\lambda_{\mathbf{k}}^+}{|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|} \sqrt{1-T_{\mathbf{k}+}^2} & \sqrt{1-T_{\mathbf{k}-}^2} & -\frac{\lambda_{\mathbf{k}}^+}{|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|} T_{\mathbf{k}+} \\ \frac{\lambda_{\mathbf{k}}^-}{|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|} T_{\mathbf{k}-} & \sqrt{1-T_{\mathbf{k}+}^2} & \frac{\lambda_{\mathbf{k}}^-}{|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|} \sqrt{1-T_{\mathbf{k}-}^2} & T_{\mathbf{k}+} \\ \sqrt{1-T_{\mathbf{k}-}^2} & -\frac{\lambda_{\mathbf{k}}^+}{|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|} T_{\mathbf{k}+} & -T_{\mathbf{k}-} & \frac{\lambda_{\mathbf{k}}^+}{|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|} \sqrt{1-T_{\mathbf{k}+}^2} \\ \frac{\lambda_{\mathbf{k}}^-}{|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|} \sqrt{1-T_{\mathbf{k}-}^2} & T_{\mathbf{k}+} & -\frac{\lambda_{\mathbf{k}}^-}{|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|} T_{\mathbf{k}-} & -\sqrt{1-T_{\mathbf{k}+}^2} \end{pmatrix} \quad (47)$$

と書ける。ここで、 $|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}| = (\sin^2 k_x + \sin^2 k_y)^{1/2}$ は Rashba 型 \mathbf{g} ベクトルの大きさである。 $T_{\mathbf{k}\pm}$ は

$$T_{\mathbf{k}\pm} = \frac{t_{\perp}}{\sqrt{t_{\perp}^2 + [\alpha_{\mathbf{k}\pm}^d + \sqrt{(\alpha_{\mathbf{k}\pm}^d)^2 + t_{\perp}^2}]^2}} \quad (48)$$

として定義しており、 $\alpha_{\mathbf{k}\pm}^d$ を

$$\alpha_{\mathbf{k}\pm}^d = \alpha |\mathbf{g}_{\mathbf{k}}| \pm d_{\mathbf{k}} \frac{\Delta_A - \Delta_B}{2} \quad (49)$$

として導入している。 $\hat{U}^\dagger(\mathbf{k}) \hat{H}_4^{\text{MF}}(\mathbf{k}) \hat{U}(\mathbf{k})$ を計算することで、エネルギー固有値 $E_{\mathbf{k}a}$ は

$$E_{\mathbf{k}1} = \varepsilon_{\mathbf{k}} + d_{\mathbf{k}} \frac{\Delta_A + \Delta_B}{2} + \sqrt{(\alpha_{\mathbf{k}-}^d)^2 + t_{\perp}^2} \quad (50)$$

$$E_{\mathbf{k}2} = \varepsilon_{\mathbf{k}} + d_{\mathbf{k}} \frac{\Delta_A + \Delta_B}{2} + \sqrt{(\alpha_{\mathbf{k}+}^d)^2 + t_{\perp}^2} \quad (51)$$

$$E_{\mathbf{k}3} = \varepsilon_{\mathbf{k}} + d_{\mathbf{k}} \frac{\Delta_A + \Delta_B}{2} - \sqrt{(\alpha_{\mathbf{k}-}^d)^2 + t_{\perp}^2} \quad (52)$$

$$E_{\mathbf{k}4} = \varepsilon_{\mathbf{k}} + d_{\mathbf{k}} \frac{\Delta_A + \Delta_B}{2} - \sqrt{(\alpha_{\mathbf{k}+}^d)^2 + t_{\perp}^2} \quad (53)$$

と与えられる。

2.5 電気多極子秩序

§ 1.4.3 で記述したように、局所的な空間反転対称性の欠如した結晶における奇パリティ多極子は空間反転対称性を破る偶パリティ多極子秩序により形成される。二層 Rashba 系では偶パリティ電気四極子が層間で強的に秩序状態を形成するか、または反強的に秩序状態を形成するかにより、2つの電気多極子状態が考えられる。図 19 (a) で示されているような層間で強的な電気四極子秩序の場合では系全体の対称性から電気四極子状態に分類される。この電気四極子のモーメントは $O_{x^2-y^2}$ である。一方、図 19 (b) で示されているような層間で反強的な電気四極子秩序状態が形成された場合、系全体の対称性により電気八極子状態に分類される。この電気八極子モーメントは $T_{(x^2-y^2)z}$ となり、系の対称性は点群 D_{4h} から点群 $D_{2d}^{[100]}$ に低下する。

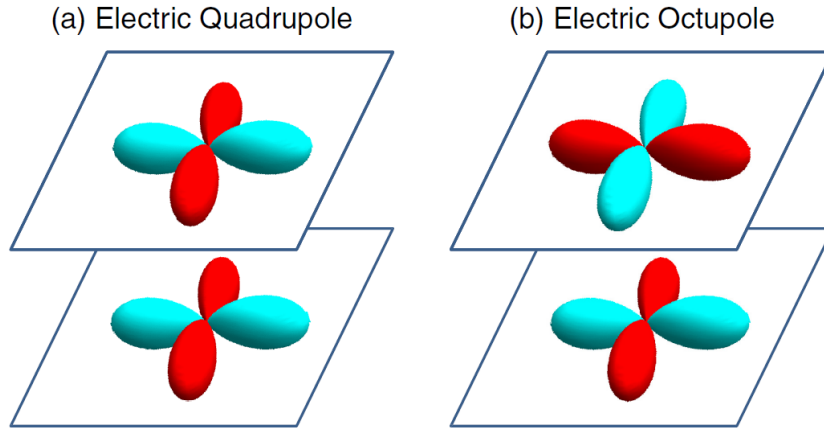


図 19 二層 Rashba 系における電気多極子の概念図 (文献 [55] から引用)。(a) 電気四極子状態、(b) 電気八極子状態を表している。

2.6 電子構造

このセクションでは電気多極子状態の電子構造を説明する。始めに、各電子状態におけるフェルミ面について記述する。簡単化のために層間ホッピング t_{\perp} の効果を無視する。そのため各層の電子間混成は無視できるようになり、フェルミ面は各層で独立となる。図 20 (a) は通常状態におけるフェルミ面を表す。二層ともに Rashba 型 ASOC により、フェルミ面が分裂する [図 20 (a) の左図]。各層におけるフェルミ面は同じ形状であるが、Rashba 型 ASOC の符号が層間で逆符号となるので、層間で逆向きのスピン構造を取る。そのため、系全体でクラマース対を形成する [図 20 (a) の右図]。系全体では空間反転対称性が保存されるため、バンド構造に二重縮退が現れる。この二重縮退はスピン自由度と副格子 (層) 自由度に起因していることを強調しておく。

図 20 (b) は電気四極子状態におけるフェルミ面を表す。この場合、各層のフェルミ面は同じように変形する [図 20 (b) の左図]。各層で逆向きのスピン構造を取るため、系全体のバンド構造にクラマース縮退が生じる [図 20 (b) の右図]。また、フェルミ面の回転対称性は C_4 から C_2 に低下する。

図 20 (c) は電気八極子状態におけるフェルミ面を表す。この場合、各層のフェルミ面は逆向きに変形する [図 20 (c) の左図]。そのため、系全体におけるフェルミ面の回転対称性は C_4 を保つ。しかしながら、電気八極子状態では自発的に空間反転対称性が破れるため、スピン縮退が解ける。このとき、系全体のフェルミ面に対するスピン分裂に対して層依存 Rashba 型 ASOC が重要な役割を果たす (この層依存 Rashba 型 ASOC の効果により各層のバンド構造がスピン分裂を生じる)。このように、奇パリティ多極子秩序状態では副格子に依存する ASOC によりエキゾチックな現象が誘起される可能性がある。図 20 (c) に赤線で示されているように、 $|k_x| = |k_y|$ ではスピン縮退が生じる。現在、電気四極子モーメントは dPI に起因しており、 d 波形状因子 $d_{\mathbf{k}} = \cos k_x - \cos k_y$ によりこのスピン縮退が生じている。そのため、このスピン縮退は系の対称性により保護されたも

の無いことを強調しておく。

次に層間ホッピングが有限の場合を考える $t_{\perp} \neq 0$ 。この層間ホッピングの効果により、結合軌道と反結合軌道のバンド間におけるエネルギー差は増大する。そのため、各層におけるフェルミ面の分裂幅は増大する [図 20 (d) の左図]。しかしながら、層間ホッピングの効果と層依存 Rashba 型 ASOC の効果は競合するため、系全体の各フェルミ面におけるスピン分裂は減少する [図 20 (d) の右図]。層間ホッピングの効果が存在する場合と無い場合に対して、フェルミ面に関する特徴は定量的な違いはあるが定性的には同じである。

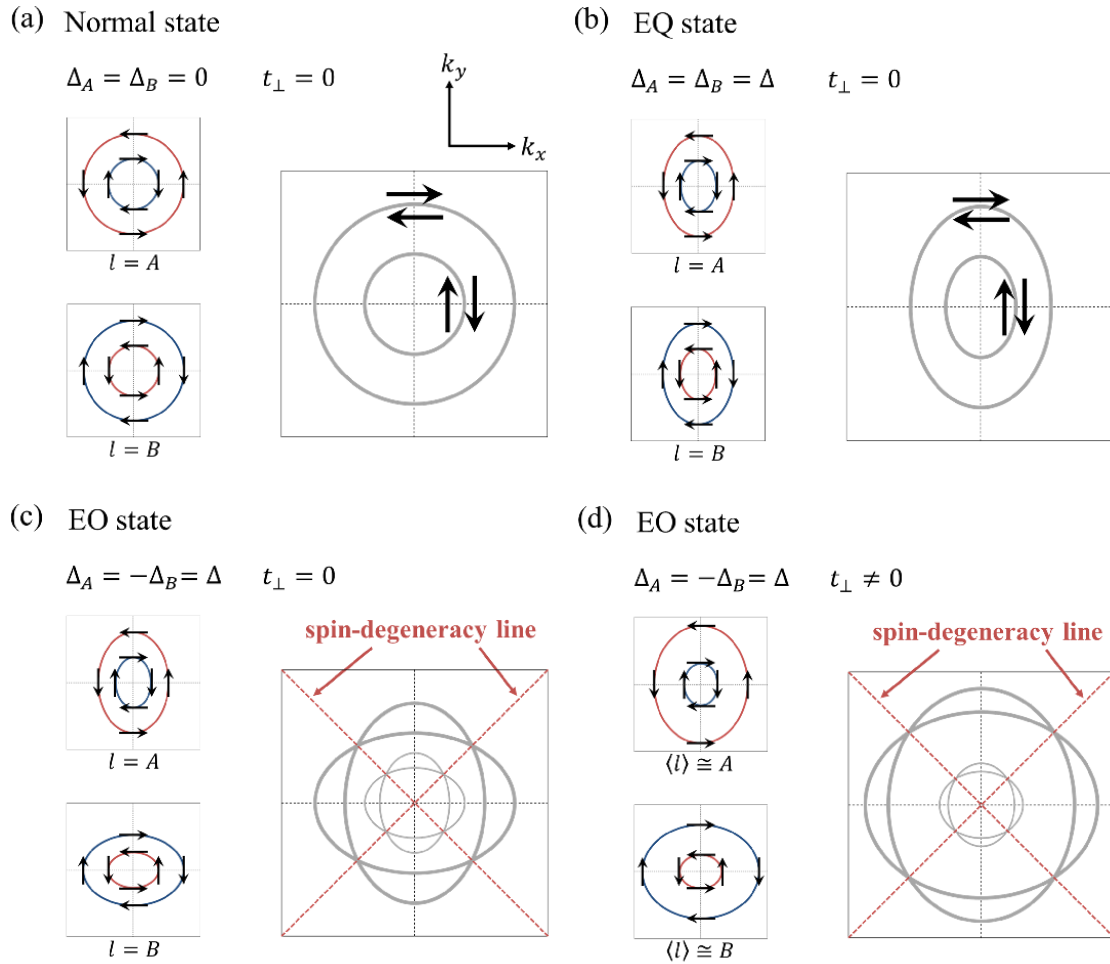


図 20 二層 Rashba 系におけるフェルミ面。(a) 通常状態 $(\Delta_A, \Delta_B) = (0, 0)$ 、(b) 電気四極子状態 $(\Delta_A, \Delta_B) = (\Delta, \Delta)$ 、(c) 電気八極子状態 $(\Delta_A, \Delta_B) = (\Delta, -\Delta)$ の場合を示している。層間ホッピングの効果は考慮していない $t_{\perp} = 0$ 。左図は A 層と B 層におけるフェルミ面、右図は系全体におけるフェルミ面を表す。各層のフェルミ面は ASOC の効果によりスピン分裂を生じる。黒矢印がスピン構造を示す。電気四極子状態では二重縮退が残り、フェルミ面の回転対称性は C_2 である。対して、電気八極子状態では空間反転対称性の破れと ASOC の協力効果により、各フェルミ面はスピン分裂を生じる。系全体のフェルミ面の回転対称性は C_4 である。(d) 層間ホッピングを考慮した場合 $t_{\perp} \neq 0$ における、電気八極子状態でのフェルミ面。(c) の場合と定性的な特徴は同じである。

2.6.1 電気四極子状態

前セクションでも記述したように、電気四極子状態では空間反転対称性が保存されているので各バンドにスピン縮退が生じる。この電気四極子状態は層間で強的な dPI 秩序変数を取る状態として定義される $(\Delta_A, \Delta_B) = (\Delta, \Delta)$ 。このとき、式 (50)-(53) により、電気四極子状態では各エネルギー分散は

$$E_{k1} = E_{k2} = \varepsilon_k + d_k \Delta + \sqrt{(\alpha |g_k|)^2 + t_{\perp}^2} \quad (54)$$

$$E_{k3} = E_{k4} = \varepsilon_k + d_k \Delta - \sqrt{(\alpha |g_k|)^2 + t_{\perp}^2} \quad (55)$$

となる。固有状態 1 と固有状態 2 (1st バンド)、固有状態 3 と固有状態 4 (2nd バンド) がスピン縮退しており同じバンドに属する。図 21 は電気四極子秩序状態におけるフェルミ面を示している。前述した通り、空間反転対称性が保存されているために各バンドが二重縮退しており、フェルミ面の回転対称性は C_2 に低下している。

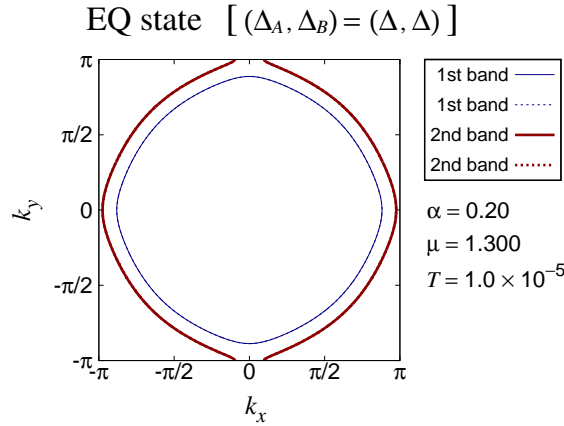


図 21 電気四極子状態におけるフェルミ面。 $g_1 = 0.45$ 、 $g_2 = -0.05$ 、 $\alpha = 0.2$ 、 $\mu = 1.3$ 、 $T = 1.0 \times 10^{-5}$ のパラメーターを用いている。秩序変数は $(\Delta_A, \Delta_B) = (-0.0025, -0.0025)$ となる。青線が 1st バンドのフェルミ面、赤線が 2nd バンドのフェルミ面を表す。

2.6.2 電気八極子状態

このセクションでは電気八極子状態における電子構造を記述する。この電気八極子状態では層間で反強的な dPI 秩序変数で与えられており $(\Delta_A, \Delta_B) = (\Delta, -\Delta)$ 、そのモーメントは $T_{(x^2-y^2)z}$ 対称性をもつ。したがって、電気八極子状態は点群 D_{2d} に属しており、自発的に空間反転対称性を破る。この空間反転対称性の破れの効果と層依存 Rashba 型 ASOC の効果の協力効果により各バ

ンドのスピンの縮退が解ける。式 (50)-(53) から、電気八極子状態では各エネルギー分散は

$$E_{\mathbf{k}1} = \varepsilon_{\mathbf{k}} + \sqrt{(\alpha|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}| - d_{\mathbf{k}}\Delta)^2 + t_{\perp}^2} \quad (56)$$

$$E_{\mathbf{k}2} = \varepsilon_{\mathbf{k}} + \sqrt{(\alpha|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}| + d_{\mathbf{k}}\Delta)^2 + t_{\perp}^2} \quad (57)$$

$$E_{\mathbf{k}3} = \varepsilon_{\mathbf{k}} - \sqrt{(\alpha|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}| - d_{\mathbf{k}}\Delta)^2 + t_{\perp}^2} \quad (58)$$

$$E_{\mathbf{k}4} = \varepsilon_{\mathbf{k}} - \sqrt{(\alpha|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}| + d_{\mathbf{k}}\Delta)^2 + t_{\perp}^2} \quad (59)$$

となる。図 22(a) に電気八極子状態におけるフェルミ面を示す。Rashba 型 ASOC が存在する場合、各バンドはスピンの縮退が解け $E_{\mathbf{k}1} \neq E_{\mathbf{k}2}$ と $E_{\mathbf{k}3} \neq E_{\mathbf{k}4}$ になる。波数空間における 2nd バンドのスピンの分裂の様子を図 22 (b) に示す。ここで 2nd バンドは式 (58) と (59) に対応するが、 $E_{\mathbf{k}3} \geq E_{\mathbf{k}4}$ として $\Delta E^{2\text{nd}}(k_x, k_y) = E_{\mathbf{k}3} - E_{\mathbf{k}4}$ をプロットしている。時間反転対称性が保たれているので、例えば $(k_x, k_y) = (0, 0)$ などの時間反転不変運動量ではバンド構造にクラマース縮退が存在する。電気四極子状態の場合とは異なり、電気八極子状態におけるフェルミ面の回転対称性は C_4 である。

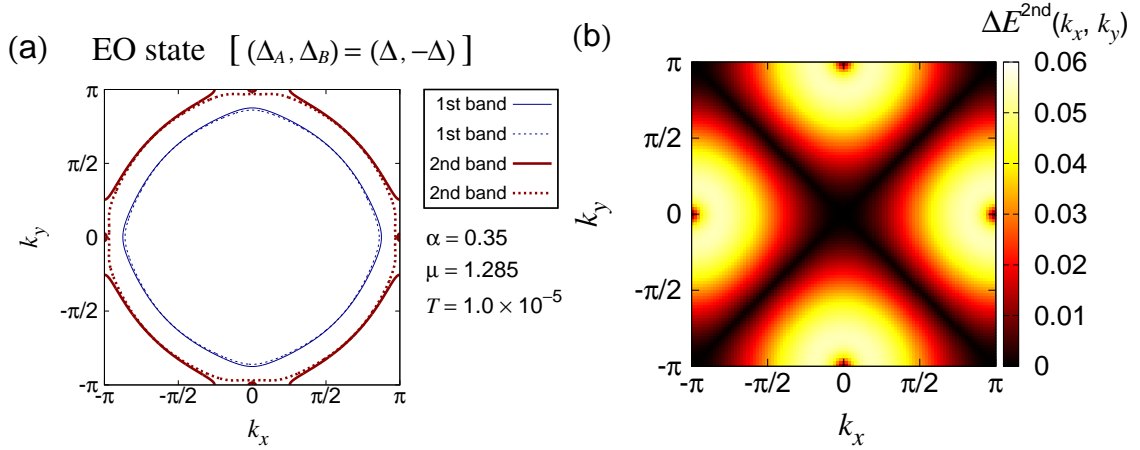


図 22 (a) 電気八極子状態におけるフェルミ面。 $g_1 = 0.45, g_2 = -0.05, \alpha = 0.35, \mu = 1.285, T = 1.0 \times 10^{-5}$ のパラメーターを用いている。秩序変数は $(\Delta_A, \Delta_B) = (-0.018, 0.018)$ となる。青線が 1st バンドのフェルミ面、赤線が 2nd バンドのフェルミ面を表す。自発的な空間反転対称性の破れにより $E_{\mathbf{k}1} \neq E_{\mathbf{k}2}, E_{\mathbf{k}3} \neq E_{\mathbf{k}4}$ となる。(b) 2nd バンドにおけるスピンの分裂。 d 波形状因子により $|k_x| = |k_y|$ ではスピンの分裂はゼロになる。

次に、スピン構造について記述する。電気八極子状態におけるスピン構造は有効 g ベクトル

$$\mathbf{g}_{\mathbf{k}}^i = \frac{E_{\mathbf{k},2i} - E_{\mathbf{k},2i-1}}{2} \frac{\mathbf{S}_{\mathbf{k},2i}^{\text{av}}}{|\mathbf{S}_{\mathbf{k},2i}^{\text{av}}|} \quad (60)$$

により記述される。ここで、 i はバンド指標である ($i = 1, 2$)。付録 A に示されているように固有状態 a のスピン期待値 $\mathbf{S}_{\mathbf{k},a}^{\text{av}} = \langle \sum_{s,s',l} \sigma^{ss'} c_{\mathbf{k}s l}^\dagger c_{\mathbf{k}s' l} \rangle_a$ を計算するにより、有効 g ベクトルの解析

表式

$$\mathbf{g}_{\mathbf{k}}^1 = \frac{\sqrt{(\alpha_{\mathbf{k}+}^d)^2 + t_{\perp}^2} - \sqrt{(\alpha_{\mathbf{k}-}^d)^2 + t_{\perp}^2}}{2\sqrt{\sin^2 k_x + \sin^2 k_y}} (-\sin k_y, \sin k_x, 0) \quad (61)$$

$$\mathbf{g}_{\mathbf{k}}^2 = -\mathbf{g}_{\mathbf{k}}^1 \quad (62)$$

が得られる。

図 23 は 1/4 ブリルアンゾーンにおける有効 g ベクトル $\mathbf{g}_{\mathbf{k}}^2$ の波数依存性を示している。矢印の長さがスピン分裂の大きさ、矢印の向きがスピン構造を示している。このスピン構造は点群 C_{4v} で特徴付けられる Rashba 型スピン構造とは異なっており、このスピン構造は電気八極子状態の点群 D_{2d} により特徴付けられる。スピン構造の対称性は $k_y \hat{x} + k_x \hat{y}$ となる。点群 D_{2d} の生成元は (1) xz 面に関する鏡映 M_{xz} と (2) z 軸まわり $\pi/2$ 回転と xy 面に関する鏡映を組み合わせた操作である回映 S_4 である。まず M_{xz} によって波数とスピンは

$$(k_x, k_y, k_z) \rightarrow (k_x, -k_y, k_z) \quad (63)$$

$$(s_x, s_y, s_z) \rightarrow (-s_x, s_y, -s_z) \quad (64)$$

のように変換される。また S_4 では

$$(k_x, k_y, k_z) \xrightarrow[z\text{-axis}]{\pi/2 \text{ Rot.}} (-k_y, k_x, k_z) \xrightarrow[xy\text{-plane}]{\text{Mir. ref.}} (-k_y, k_x, -k_z) \quad (65)$$

$$(s_x, s_y, s_z) \rightarrow (-s_y, s_x, s_z) \rightarrow (s_y, -s_x, s_z) \quad (66)$$

のように変換される。 $k_y \hat{x} + k_x \hat{y}$ の対称性をもつスピン構造がこれらの対称操作の下で不変となる。

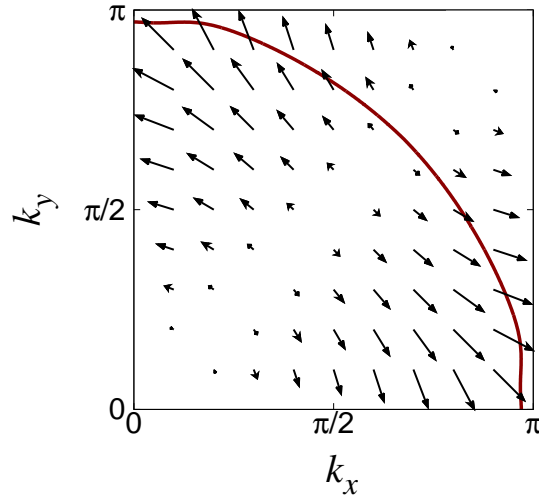


図 23 電気八極子状態における 2nd バンドの有効 g ベクトル $\mathbf{g}_{\mathbf{k}}^2$ 。ここで $g_1 = 0.45$ 、 $g_2 = -0.05$ 、 $T = 1.0 \times 10^{-5}$ 、 $\alpha = 0.35$ 、 $\mu = 1.285$ のパラメーターを用いている。赤実線は $(E_{\mathbf{k}3} + E_{\mathbf{k}4})/2$ のゼロ点を示している。

2.7 電気八極子秩序状態の熱力学的安定性

このセクションでは、二層 Rashba 系における電気多極子秩序状態の熱力学的安定性を調べる。二次相転移近傍では dPI 秩序変数の収束性が悪いため、多極子感受率の線形化方程式を用いて熱力学的安定性を調べる。そこで、まず多極子感受率を導入する。次に、多極子感受率の解析式を示すことで、Rashba 型 ASOC の熱力学的安定性に対する影響を調べる。最後に数値計算結果を示す。

2.7.1 多極子感受率

スピンと層に依存する多極子感受率を

$$\chi_{sl,s'l'}^d(\mathbf{q}, i\omega_n) = \frac{1}{N} \int_0^{1/T} d\tau e^{i\omega_n \tau} \langle n_{sl}^d(\mathbf{q}, \tau) n_{s'l'}^d(-\mathbf{q}, 0) \rangle \quad (67)$$

として定義する。ここで、 $\omega_n = 2n\pi T$ はボソンの松原振動数、 $n_{sl}^d(\mathbf{q}) = \sum_{\mathbf{k}} d_{\mathbf{k}} c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}/2,s,l}^\dagger c_{\mathbf{k}-\mathbf{q}/2,s,l}$ は d 波密度演算子である。本研究では、電子間における前方散乱過程を考えているので一様で静的な場合を考慮する $(\mathbf{q}, \omega_n) \rightarrow (\mathbf{0}, 0)$ 。このとき、既約多極子感受率は

$$\chi_{sl,s'l'}^{d,0}(\mathbf{0}, 0) = -\frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}, a, a'} \lim_{q \rightarrow 0} d_{\mathbf{k}} d_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} \frac{f(E_{\mathbf{k}a'}) - f(E_{\mathbf{k}+\mathbf{q}a})}{E_{\mathbf{k}a'} - E_{\mathbf{k}+\mathbf{q}a}} A_{\mathbf{k}, sl, s'l'}^{aa'}(\mathbf{q}) \quad (68)$$

と書ける。ここで、係数 $A_{\mathbf{k}, sl, s'l'}^{aa'}(\mathbf{q})$ は

$$A_{\mathbf{k}, sl, s'l'}^{aa'}(\mathbf{q}) = u_{\mathbf{k}+\mathbf{q}sl}^a u_{\mathbf{k}+\mathbf{q}s'l'}^{a*} u_{\mathbf{k}s'l'}^{a'} u_{\mathbf{k}sl}^{a'*} \quad (69)$$

として導入されており、 $E_{\mathbf{k}a}$ と $u_{\mathbf{k}sl}^a$ は相互作用のないハミルトニアン $H_0 = H_{\text{kin}} + H_{\text{ASOC}} + H_{\perp}$ に対するユニタリー変換によって得られる。

求めたい多極子感受率は式 (67) に関して、スピン和を取ればよいので多極子感受率は

$$\chi_{ll'}^d(\mathbf{0}, 0) = \sum_{s, s'} \chi_{sl, s'l'}^d(\mathbf{0}, 0) \quad (70)$$

となる。ここで乱雑位相近似 (RPA) を用ると、多極子感受率の行列表記は

$$\hat{\chi}^d(\mathbf{0}, 0) = \begin{pmatrix} \chi_{AA}^d(\mathbf{0}, 0) & \chi_{AB}^d(\mathbf{0}, 0) \\ \chi_{BA}^d(\mathbf{0}, 0) & \chi_{BB}^d(\mathbf{0}, 0) \end{pmatrix} \quad (71)$$

$$= \frac{\hat{\chi}^{d,0}(\mathbf{0}, 0)}{\hat{1} + \hat{g}\hat{\chi}^{d,0}(\mathbf{0}, 0)} \quad (72)$$

と記述される。ここで、 $\hat{\chi}^{d,0}(\mathbf{0}, 0)$ は既約感受率を成分とする行列を表しており

$$\chi_{ll'}^{d,0}(\mathbf{0}, 0) = \sum_{s, s'} \chi_{sl, s'l'}^{d,0}(\mathbf{0}, 0) \quad (73)$$

と書ける。 \hat{g} は前方散乱効果の結合定数に関する 2×2 行列であり

$$\hat{g} = \begin{pmatrix} -g_1 & -g_2 \\ -g_2 & -g_1 \end{pmatrix} \quad (74)$$

と与えられる。

式 (72) における多極子感受率の発散により、多極子秩序状態の二次相転移が示される。この発散点では $-\hat{g}\hat{\chi}^{d,0}(\mathbf{0}, 0) = \hat{1}$ を満たす。そこで、 $-\hat{g}\hat{\chi}^{d,0}(\mathbf{0}, 0)$ を対角化することにより、電気多極子秩序に関する 2 つの固有値

$$\lambda_{\text{EO}} = (g_1 - g_2) (\chi_{AA}^{d,0} - \chi_{AB}^{d,0}) \quad \text{for EO order} \quad (75)$$

$$\lambda_{\text{EQ}} = (g_1 + g_2) (\chi_{AA}^{d,0} + \chi_{AB}^{d,0}) \quad \text{for EQ order} \quad (76)$$

を得る。ここで、 $\chi_{AA}^{d,0} = \chi_{BB}^{d,0}$ と $\chi_{AB}^{d,0} = \chi_{BA}^{d,0}$ の関係を用いている。電気八極子秩序は $\lambda_{\text{EO}} = 1$ 、電気四極子秩序は $\lambda_{\text{EQ}} = 1$ の場合に生じる。

2.7.2 既約感受率の解析表現

ここでは、既約感受率 $\chi_{AA}^{d,0}(\mathbf{0}, 0)$ と $\chi_{AB}^{d,0}(\mathbf{0}, 0)$ の解析表式を示す (詳細は付録 B を参照)。

$$\begin{aligned} \chi_{AA}^{d,0}(\mathbf{0}, 0) = & \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} d_{\mathbf{k}}^2 \left[\frac{1}{4T} \left\{ T_{\mathbf{k}}^4 + (1 - T_{\mathbf{k}}^2)^2 \right\} \left\{ \frac{1}{\cosh^2(E_{\mathbf{k}1}/2T)} + \frac{1}{\cosh^2(E_{\mathbf{k}3}/2T)} \right\} \right. \\ & \left. + \frac{T_{\mathbf{k}}^2(1 - T_{\mathbf{k}}^2)}{\sqrt{(\alpha|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|)^2 + t_{\perp}^2}} \left\{ \tanh(E_{\mathbf{k}1}/2T) - \tanh(E_{\mathbf{k}3}/2T) \right\} \right] \quad (77) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \chi_{AB}^{d,0}(\mathbf{0}, 0) = & \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} d_{\mathbf{k}}^2 T_{\mathbf{k}}^2 (1 - T_{\mathbf{k}}^2) \left[\frac{1}{2T} \left\{ \frac{1}{\cosh^2(E_{\mathbf{k}1}/2T)} + \frac{1}{\cosh^2(E_{\mathbf{k}3}/2T)} \right\} \right. \\ & \left. - \frac{1}{\sqrt{(\alpha|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|)^2 + t_{\perp}^2}} \left\{ \tanh(E_{\mathbf{k}1}/2T) - \tanh(E_{\mathbf{k}3}/2T) \right\} \right] \quad (78) \end{aligned}$$

ここで、エネルギー固有値 $E_{\mathbf{k}a}$ は相互作用のないハミルトニアン H_0 から得られており

$$E_{\mathbf{k}1} = E_{\mathbf{k}2} = \varepsilon_{\mathbf{k}} + \sqrt{(\alpha|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|)^2 + t_{\perp}^2} \quad (79)$$

$$E_{\mathbf{k}3} = E_{\mathbf{k}4} = \varepsilon_{\mathbf{k}} - \sqrt{(\alpha|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|)^2 + t_{\perp}^2} \quad (80)$$

で与えられており、 $T_{\mathbf{k}}$ は

$$T_{\mathbf{k}} = \frac{t_{\perp}}{\sqrt{t_{\perp}^2 + [\alpha|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}| + \sqrt{(\alpha|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|)^2 + t_{\perp}^2}]^2}} \quad (81)$$

として導入される。式 (77) と (78) の既約感受率に対して、第一項はバンド内からの寄与を第二項はバンド間からの寄与を表している。

2.7.3 反対称スピン軌道相互作用の効果

ここでは、層依存 Rashba 型 ASOC に対して 2 つの極限值を考慮することにより、多極子感受率に対する ASOC の効果を調べる。

まず、ASOC が存在しない場合 $\alpha/t_{\perp} = 0$ を考える。このとき、式 (81) は $T_{\mathbf{k}} = 1/\sqrt{2}$ となる。そのため、式 (77) と (78) の既約感受率は

$$\chi_{AA}^{d,0}(\mathbf{0}, 0) = \frac{1}{4N} \sum_{\mathbf{k}} d_{\mathbf{k}}^2 \left[\frac{1}{2T} \left\{ \frac{1}{\cosh^2(E_{\mathbf{k}1}/2T)} + \frac{1}{\cosh^2(E_{\mathbf{k}3}/2T)} \right\} + \frac{1}{t_{\perp}} \left\{ \tanh(E_{\mathbf{k}1}/2T) - \tanh(E_{\mathbf{k}3}/2T) \right\} \right] \quad (82)$$

$$\chi_{AB}^{d,0}(\mathbf{0}, 0) = \frac{1}{4N} \sum_{\mathbf{k}} d_{\mathbf{k}}^2 \left[\frac{1}{2T} \left\{ \frac{1}{\cosh^2(E_{\mathbf{k}1}/2T)} + \frac{1}{\cosh^2(E_{\mathbf{k}3}/2T)} \right\} - \frac{1}{t_{\perp}} \left\{ \tanh(E_{\mathbf{k}1}/2T) - \tanh(E_{\mathbf{k}3}/2T) \right\} \right] \quad (83)$$

となる。ここで、エネルギー分散は $E_{\mathbf{k}1} = \varepsilon_{\mathbf{k}} + t_{\perp}$ と $E_{\mathbf{k}3} = \varepsilon_{\mathbf{k}} - t_{\perp}$ と書ける。式 (82) と (83) を比較すると、 $\chi_{AA}^{d,0}$ と $\chi_{AB}^{d,0}$ のバンド内からの寄与 (第一項) は等しく、バンド間からの寄与 (第二項) は逆符号となる。さらに、 $\chi_{AA}^{d,0}$ は常に正の値を取るが、 $\chi_{AB}^{d,0}$ はバンド間からの寄与により負の値を取る可能性がある。十分低温ではバンド内からの寄与がフェルミ準位の状態密度に比例する。そのため、フェルミ準位がヴァン・ホープ特異点近傍に存在する場合、フェルミ準位の状態密度は非常に大きな値を取るため、 $\chi_{AB}^{d,0}$ は正の値を取る。したがって、電気多極子秩序に関する固有値 (75) と (76) から、電気四極子秩序が現れやすくなる。このような ASOC が考慮されずにヴァン・ホープ特異点近傍にフェルミ準位が存在する場合、電気四極子秩序が安定となることは先行研究により示されている [92, 93]。

次に、ASOC の効果が非常に大きい場合 $\alpha/t_{\perp} = \infty$ を考える。このとき、 $T_{\mathbf{k}} = 0$ となるので既約感受率は

$$\chi_{AA}^{d,0}(\mathbf{0}, 0) = \frac{1}{4NT} \sum_{\mathbf{k}} d_{\mathbf{k}}^2 \left\{ \frac{1}{\cosh^2(E_{\mathbf{k}1}/2T)} + \frac{1}{\cosh^2(E_{\mathbf{k}3}/2T)} \right\} \quad (84)$$

$$\chi_{AB}^{d,0}(\mathbf{0}, 0) = 0 \quad (85)$$

と書ける。ここで、エネルギー分散は $E_{\mathbf{k}1} = \varepsilon_{\mathbf{k}} + \alpha|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|$ と $E_{\mathbf{k}3} = \varepsilon_{\mathbf{k}} - \alpha|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|$ となる。 $\alpha/t_{\perp} = \infty$ では ASOC によって層間運動エネルギーの効果が抑えられる [32]。したがって、層間既約感受率は層間運動エネルギーの寄与で与えられるため、 $\alpha/t_{\perp} = \infty$ の極限では層間既約感受率 $\chi_{AB}^{d,0}(\mathbf{0}, 0)$ はゼロとなる。さらに、dPI 秩序変数 Δ_A と Δ_B の結合に対する層間エネルギーの効果が無くなるため、電気多極子秩序相の安定性は前方散乱効果に依存すると考えられる。式 (75) と (76) から、

特に層間前方散乱効果 g_2 が電気多極子秩序相の安定性に対して大きな役割を果たしていることが分かる。

2.7.4 状態密度と相図

このセクションでは、数値計算で得られた状態密度と相図を示す。特に層依存 Rashba 型 ASOC の効果に注目する。dPI は状態密度の大きな場合に生じやすいため、通常状態における状態密度 $\rho(\varepsilon)$ を

$$\rho(\varepsilon) = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}, a} \delta(\varepsilon - E_{\mathbf{k}a}) \quad (86)$$

として計算する。

図 24 は様々な ASOC の大きさに対する状態密度の温度依存性を示している。ヴァン・ホープ特異点 $\mathbf{k} = (\pm\pi, 0)$ 、 $(0, \pm\pi)$ に対応する化学ポテンシャルは $\mu \simeq 1.3$ または 1.5 なので、状態密度 $\rho(\varepsilon)$ は $\varepsilon \simeq 1.3$ または 1.5 で大きな値を取る。エネルギー分散 $E_{\mathbf{k}1}$ と $E_{\mathbf{k}2}$ をもつ高エネルギー準位におけるバンドのフェルミ面は $\mu \simeq 1.5$ でヴァン・ホープ特異点に達する。一方、エネルギー分散 $E_{\mathbf{k}3}$ と $E_{\mathbf{k}4}$ をもつ低エネルギー準位におけるバンドのフェルミ面は $\mu \simeq 1.3$ でヴァン・ホープ特異点に達する。ASOC が増加すると $\mu \simeq 1.3$ での状態密度のピークが増加する振る舞いが見られ、対して、 $\mu \simeq 1.5$ での状態密度のピークは減少する。また、 $\mu \simeq 1.3$ におけるピークは低エネルギー側へシフトしている。

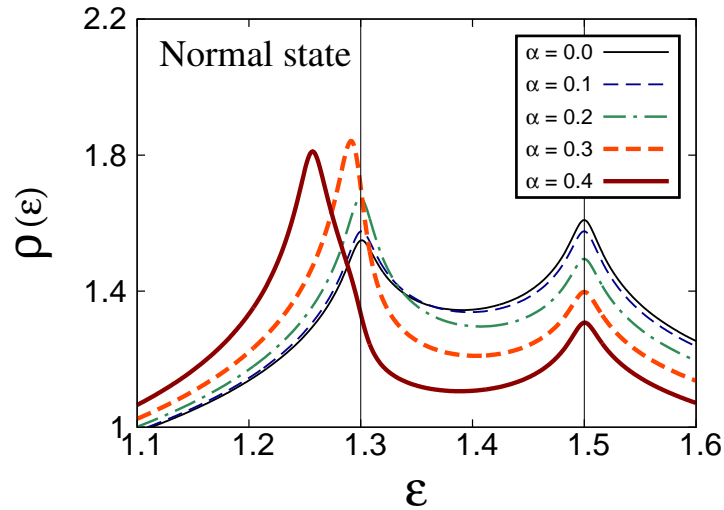


図 24 通常状態における状態密度 $\rho(\varepsilon)$ 。ここでは $\mu = 0$ としている。

この状態密度のピーク位置で電気多極子秩序が生じやすいと考えられる。そこで $\mu \simeq 1.3$ 近傍における $\mu - \alpha$ 相図を調べた。図 25 は $\mu - \alpha$ 相図を示している。ここでは $F(\Delta_A, \Delta_B)$ を自由エネルギーとして、多極子状態の凝縮エネルギー $\delta F = F(0, 0) - F(\Delta_A, \Delta_B)$ をプロットしている。状態密度の ASOC 依存性から予想されるように、ASOC により δF が増大する振る舞いが得られた。さらに ASOC を大きくすると、状態密度のピークと一致して多極子秩序相が低い化学ポテン

シャルへとシフトする様子が得られた。また、 $\mu \simeq 1.5$ では ASOC によって電気多極子秩序相は消失する。

ASOC の効果が小さい場合、 $\chi_{AB}^{d,0}(\mathbf{0}, 0) > 0$ の条件では電気四極子秩序状態の方が電気八極子秩序状態よりも運動エネルギーを得る。そのため、フェルミ準位がヴァン・ホッフ特異点近傍に存在するとき、 $\chi_{AB}^{d,0}(\mathbf{0}, 0) > 0$ となるため電気四極子秩序状態が安定となる。この振る舞いは図 25 の ASOC の大きさが小さな領域で確認できる。対して、ASOC の大きさがある程度の大きな領域では電気八極子秩序状態が安定となる。この安定性の原因は、ASOC の効果が大きくなることで $\chi_{AB}^{d,0}(\mathbf{0}, 0)$ の大きさが減少することと、弱い層間の前方散乱効果 $g_2 < 0$ である。この結果は、層依存の Rashba 型 ASOC が電気四極子秩序状態の運動エネルギーの得を抑え、奇パリティ電気八極子秩序状態の安定性に対して優位に働くことを示している。

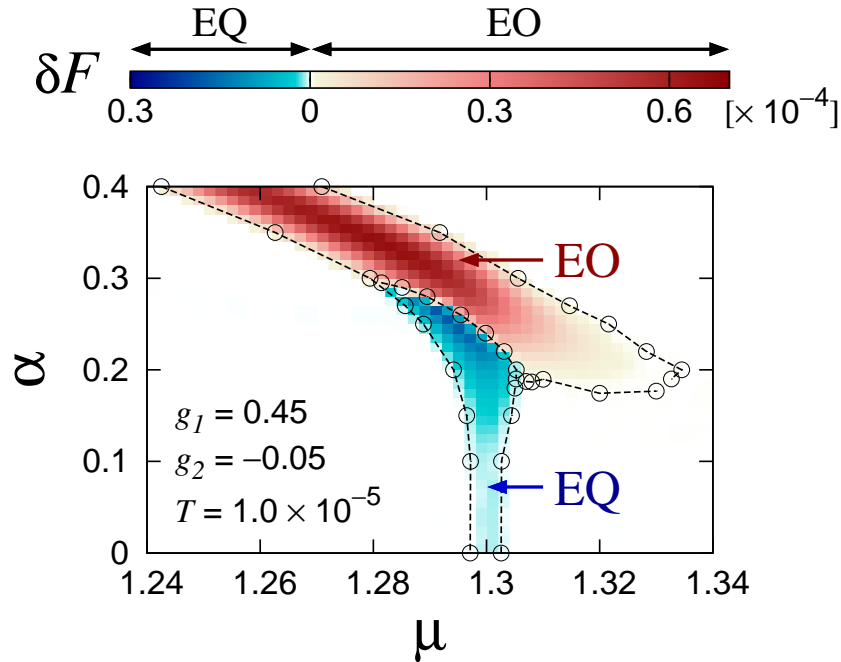


図 25 電気多極子秩序相に対する $\mu - \alpha$ 相図。 $g_1 = 0.45$ 、 $g_2 = -0.05$ 、 $T = 1.0 \times 10^{-5}$ のパラメーターを用いている。赤色領域が電気八極子秩序相、青色領域が電気四極子秩序相を表している。黒丸と点線は一次相転移を示している。

図 26 は $T = 0.01$ 、 $\mu = 1.3$ での $g_1 - g_2$ 面における相図である。図 26 (a) で示されているように、 $\alpha = 0$ では電気四極子秩序状態と電気八極子秩序状態の相境界は g_1 の大きさに依存する。一方、ASOC の大きさが大きな領域では、多極子状態の安定性は g_1 に依存しなくなり、 g_2 によって決定される (図 26 (b))。特に、図 26 (b) では $g_2 = 0$ の場合でさえ電気八極子秩序状態が安定となることが示されている。

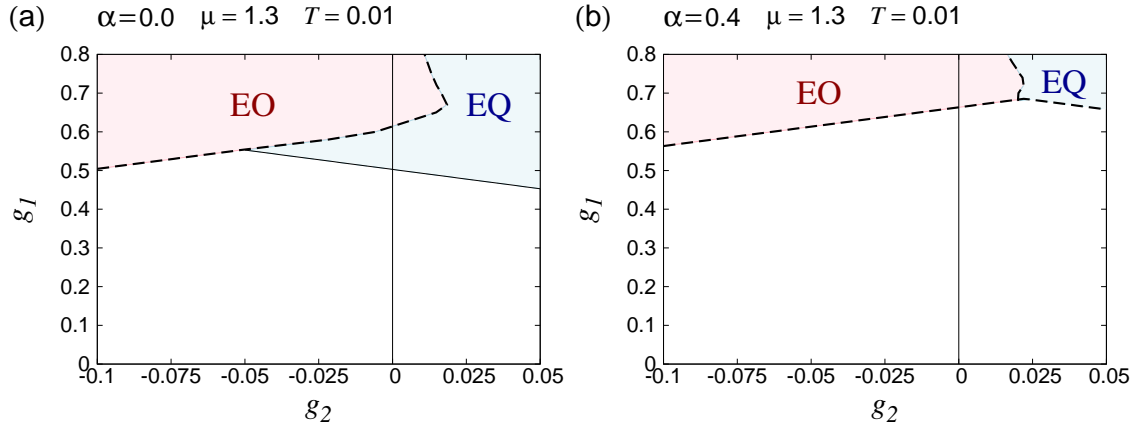


図 26 $T = 0.01$ 、 $\mu = 1.3$ における電気多極子秩序相に対する $g_1 - g_2$ 相図。(a) $\alpha = 0$ 、(b) $\alpha = 0.4$ の場合を示す。点線は一次相転移、実線は二次相転移を示している。

2.7.5 多極子感受率

このセクションでは多極子感受率の数値計算結果を示す。図 27 は既約感受率 $\chi_{AA}^{d,0}$ と $\chi_{AB}^{d,0}$ の化学ポテンシャル依存性を表している。図 27 (a) で示されているように、層内既約感受率 $\chi_{AA}^{d,0}$ はヴァン・ホープ特異点上の μ でピークを取る。ASOC が大きい領域では、 $\chi_{AA}^{d,0}$ の化学ポテンシャル依存性は状態密度の化学ポテンシャル依存性と似た振る舞いをする。この振る舞いは式 (84) から予想される。ASOC を増大することにより、 $\mu \simeq 1.3$ のピークは増加するが、 $\mu \simeq 1.5$ のピークは減少する。ASOC が存在しない場合、式 (82) の第二項で表されるバンド間からの寄与により、 $\mu = 1.3 \sim 1.5$ の領域で $\chi_{AA}^{d,0}$ のフラットな振る舞いが現れる。

一方、図 27 (b) で示されているように、層間既約感受率 $\chi_{AB}^{d,0}$ は正負の値を取る。ヴァン・ホープ特異点近傍では $\chi_{AB}^{d,0}$ は正の値を取り、 $\mu \simeq 1.4$ では $\chi_{AB}^{d,0}$ は負の値を取る。 $\chi_{AB}^{d,0} < 0$ は各層の dPI 秩序変数 Δ_A と Δ_B の間における負の相関を示している。また式 (85) で予想されるように、ASOC を増大させるに伴い $\chi_{AB}^{d,0}$ の大きさは減少する。ASOC の大きな領域では電子の波動関数が各層に局在するようになるので、運動エネルギーは dPI 秩序変数の層間関係に依存しなくなる。そのため、多極子状態の安定性は層間の前方散乱効果 g_2 により決定されるようになる。

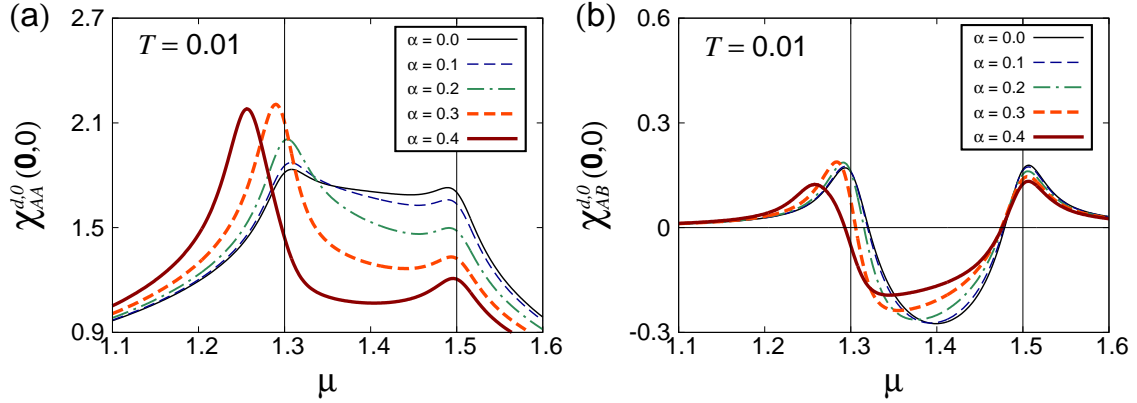


図 27 $T = 0.01$ における既約感受率 (a) $\chi_{AA}^{d,0}(\mathbf{0}, 0)$ と (b) $\chi_{AB}^{d,0}(\mathbf{0}, 0)$ の化学ポテンシャル依存性。 $\chi_{AA}^{d,0}(\mathbf{0}, 0) = \chi_{BB}^{d,0}(\mathbf{0}, 0)$ 、 $\chi_{AB}^{d,0}(\mathbf{0}, 0) = \chi_{BA}^{d,0}(\mathbf{0}, 0)$ となることを確認している。

2.7.6 二次相転移

式 (75) と (76) の固有値 λ_{EO} と λ_{EQ} は多極子秩序状態に関する二次相転移を示している。そこで式 (77) と (78) を用いることで、 λ_{EO} と λ_{EQ} の解析式は

$$\lambda_{EO} = \frac{g_1 - g_2}{N} \sum_{\mathbf{k}} d_{\mathbf{k}}^2 \left[\frac{1}{4T} (2T_{\mathbf{k}}^2 - 1)^2 \left\{ \frac{1}{\cosh^2(E_{\mathbf{k}1}/2T)} + \frac{1}{\cosh^2(E_{\mathbf{k}3}/2T)} \right\} + \frac{2T_{\mathbf{k}}^2(1 - T_{\mathbf{k}}^2)}{\sqrt{(\alpha|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|)^2 + t_{\perp}^2}} \{ \tanh(E_{\mathbf{k}1}/2T) - \tanh(E_{\mathbf{k}3}/2T) \} \right] \quad (87)$$

$$\lambda_{EQ} = \frac{g_1 + g_2}{4NT} \sum_{\mathbf{k}} d_{\mathbf{k}}^2 \left\{ \frac{1}{\cosh^2(E_{\mathbf{k}1}/2T)} + \frac{1}{\cosh^2(E_{\mathbf{k}3}/2T)} \right\} \quad (88)$$

となる。式 (88) から、 λ_{EQ} に対する ASOC の効果はエネルギー分散中に含まれる。ASOC が存在しない場合 $\alpha = 0$ では、 λ_{EO} は

$$\lambda_{EO} = \frac{g_1 - g_2}{2Nt_{\perp}} \sum_{\mathbf{k}} d_{\mathbf{k}}^2 \{ \tanh(E_{\mathbf{k}1}/2T) - \tanh(E_{\mathbf{k}3}/2T) \} \quad (89)$$

となる。この λ_{EO} はバンド間からの寄与から得られており、対して λ_{EQ} はバンド内からの寄与で得られている。次に ASOC が非常に大きい場合 $\alpha/t_{\perp} = \infty$ では、 λ_{EO} は

$$\lambda_{EO} = \frac{g_1 - g_2}{4NT} \sum_{\mathbf{k}} d_{\mathbf{k}}^2 \left\{ \frac{1}{\cosh^2(E_{\mathbf{k}1}/2T)} + \frac{1}{\cosh^2(E_{\mathbf{k}3}/2T)} \right\} \quad (90)$$

となる。したがって、 λ_{EO} は結合定数を除いて λ_{EQ} と等しくなる。

図 28 は固有値 λ_{EO} と λ_{EQ} の化学ポテンシャル依存性を示している。比較的高温 $T = 0.01$ を考えているので、バンド間からの寄与は小さい。そのため、図 28 (a) で示されているように、 $\alpha = 0$ でさえ電気八極子秩序状態は不安定である。 λ_{EO} の振る舞いは λ_{EQ} とは異なっている。 λ_{EO} の

ピークは $\mu \simeq 1.4$ で生じている。このピークは図 27 (b) で示されているように、層間既約感受率 $\chi_{AB}^{d,0}$ の大きな負の値からもたらされる。2つのヴァン・ホープ特異点の中間に化学ポテンシャルがある場合 ($\mu \simeq 1.4$)、 $\chi_{AB}^{d,0}$ は負のピークを取る。ASOC を増加させるにつれて、 λ_{EO} の振る舞いは λ_{EQ} に似てくる。この振る舞いは図 28 (c) と (d) に示されている。 $\mu \simeq 1.3$ 近傍では状態密度がピークを取るため、多極子感受率も $\mu \simeq 1.3$ 近傍で増加する。

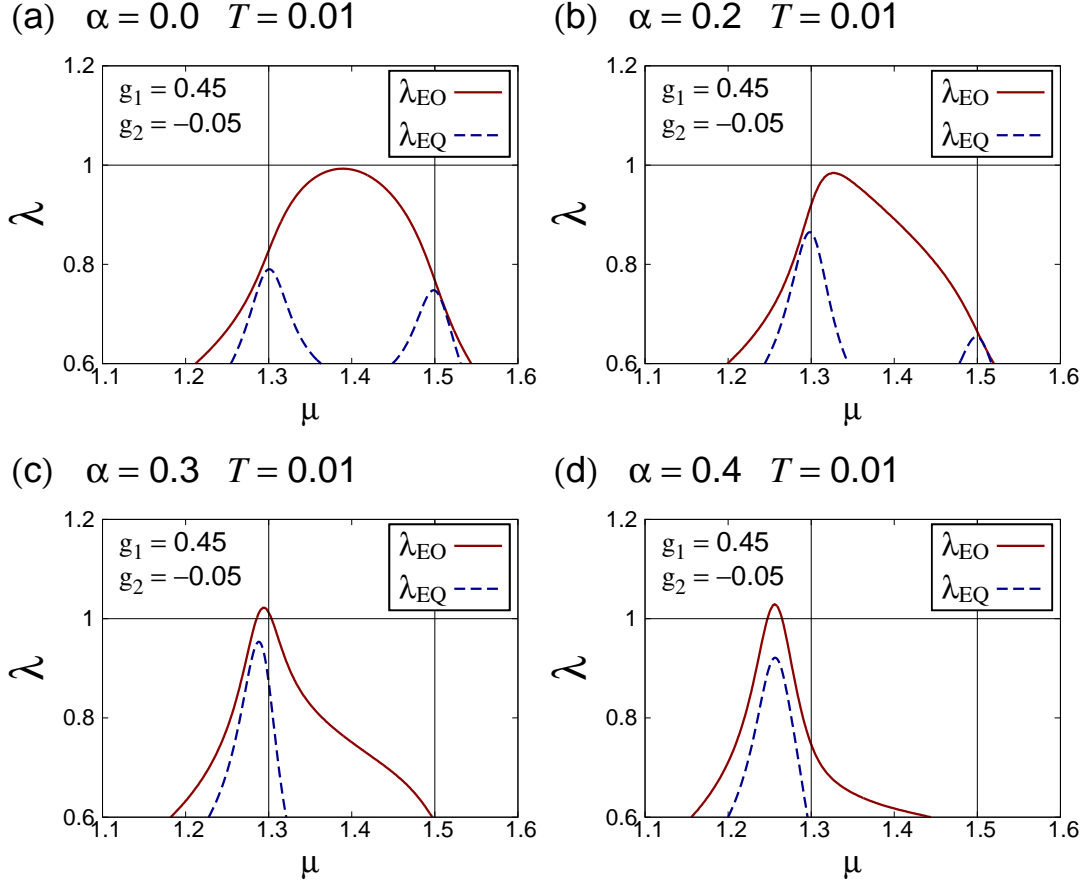


図 28 $g_1 = 0.45$ 、 $g_2 = -0.05$ 、 $T = 0.01$ における固有値 λ_{EO} と λ_{EQ} の化学ポテンシャル依存性。(a) $\alpha = 0$ 、(b) $\alpha = 0.2$ 、(c) $\alpha = 0.3$ 、(d) $\alpha = 0.4$ を用いている。赤実線が λ_{EO} 、青点線が λ_{EQ} を示している。

Rashba 型 ASOC は λ_{EO} の温度依存性にも大きな影響を与える。図 29 は温度 $T = 0.002 \sim 0.01$ までの、 λ_{EO} と λ_{EQ} を示している。図 29 (a) から λ_{EQ} は温度低下に伴い増加することが分かる。一方、図 29 (b) で表されているように、 $\alpha = 0$ では λ_{EO} はほとんど温度依存性を示さない。これは λ_{EQ} はバンド内からの寄与で与えられており、 $\alpha = 0$ では λ_{EO} はバンド間からの寄与で与えられることに起因する。より詳しく言えば、式 (89) より λ_{EO} は 2つのフェルミ面に挟まれた運動量をもつ電子からの寄与により与えられるが、一方、式 (88) より λ_{EQ} はフェルミ準位近傍 $|E_{ka}| < 2T$ に対応する運動量をもつ電子からの寄与で与えられる。そのため λ_{EQ} に対する大きな状態密度の効果は温度によってぼやけるが、低温ではヴァン・ホープ特異点における状態密度の

ピークの効果が顕著になるため大きな λ_{EQ} が現れる。したがって、ASOC が存在しない場合には低温で電気四極子秩序状態が安定となりやすい。

ASOC の効果が大きい場合、 λ_{EO} と λ_{EQ} はともにバンド内からの寄与で与えられる (式 (90) と (88))。したがって図 29 (c) で示されているように、温度を低下させるに伴い λ_{EO} は増加する。 λ_{EO} の温度依存性は $\alpha = 0.2 \sim 0.3$ で劇的に変化すること、これは $\alpha/t_{\perp} \simeq 2$ で電子構造が結合・反結合軌道から各層が独立した系にクロスオーバーしていることを示している。この電子構造のクロスオーバーは多層系超伝導体に関する先行研究でも示されている [32, 33, 35, 37]。

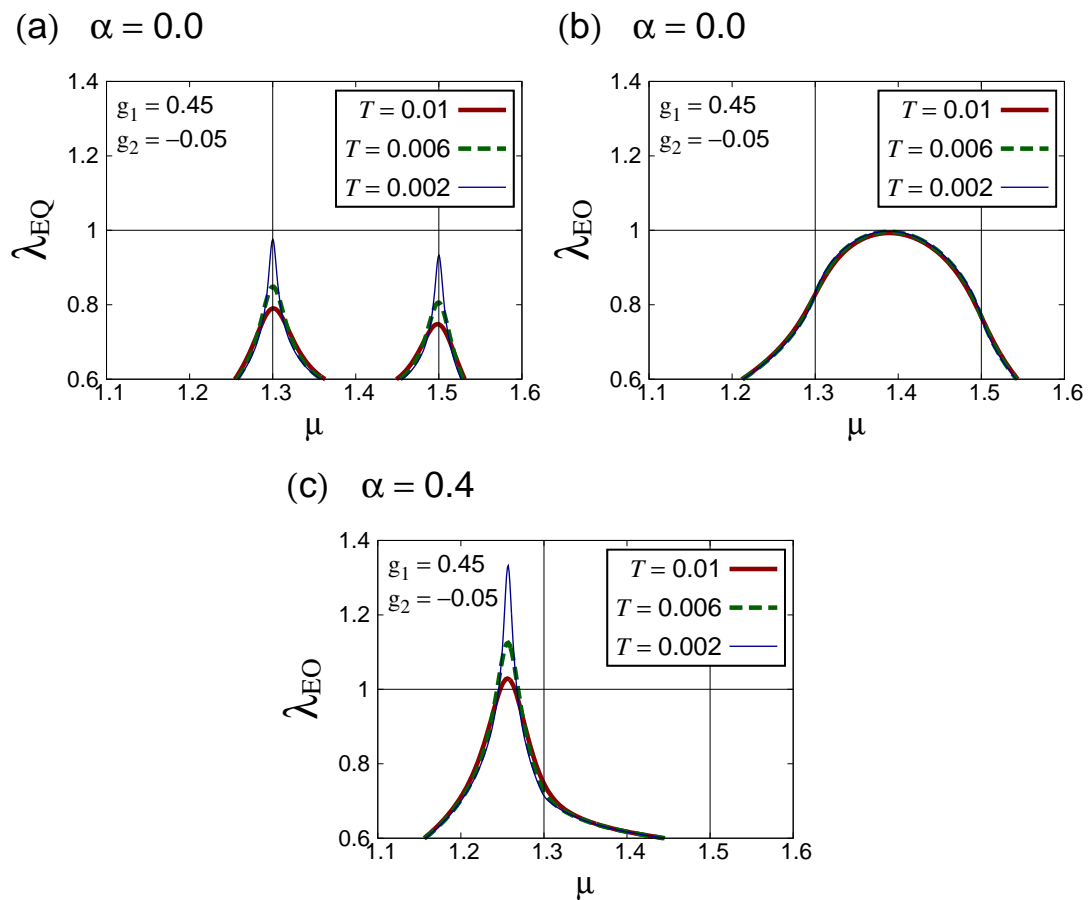


図 29 $T = 0.01, 0.006, 0.002$ での固有値 λ_{EO} と λ_{EQ} 。(a) $\alpha = 0$ における λ_{EQ} 、(b) $\alpha = 0$ における λ_{EO} 、(c) $\alpha = 0.4$ における λ_{EO} を表している。太い赤実線が $T = 0.01$ 、緑点線が $T = 0.006$ 、細い青実線が $T = 0.002$ の場合を示している。

2.8 磁場中における電気八極子状態

このセクションでは磁場中における電気八極子秩序状態に注目する。この磁場の効果をゼーマン効果

$$H_{\text{Zeeman}} = - \sum_{\mathbf{k}, s, s', l} \mathbf{h} \cdot \boldsymbol{\sigma}^{ss'} c_{\mathbf{k}sl}^\dagger c_{\mathbf{k}s'l} \quad (91)$$

としてハミルトニアン H に加える。

図 30 は大きな ASOC 下での $[001]$ 方向に磁場を印加した場合 ($\mathbf{h} = h\hat{z}$) の $h - T$ 相図を示している。ドーム型の転移温度線が現れる。低磁場領域では一次相転移が現れるが、高磁場領域では二次相転移が生じる。さらに、 $h = 0.054$ で量子臨界点が現れる。この結果は二層系で ASOC を考慮していない場合の結果とは異なる。

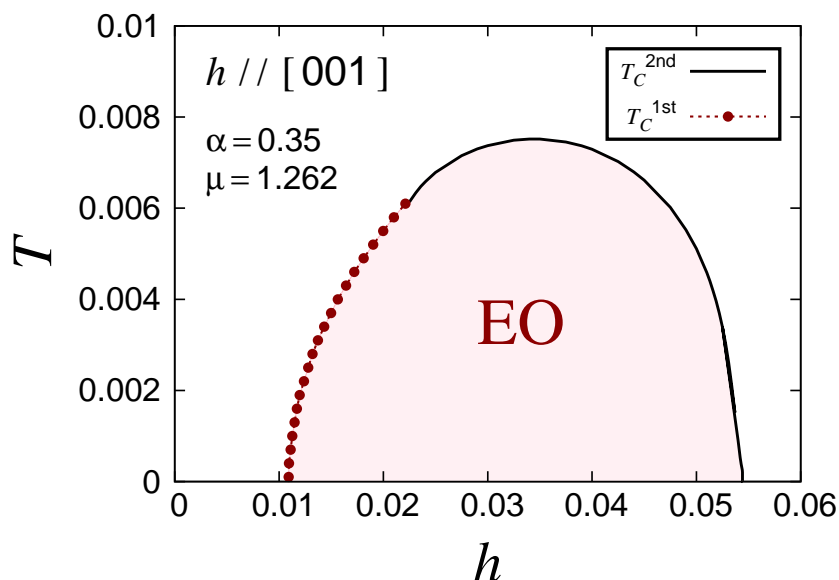


図 30 磁場を $[001]$ 方向に印加した場合の $h - T$ 相図。 $g_1 = 0.45$ 、 $g_2 = -0.05$ 、 $\alpha = 0.35$ 、 $\mu = 1.262$ のパラメータを用いている。赤丸が一次相転移線 T_c^{1st} 、黒実線が二次相転移線 T_c^{2nd} を表している。赤背景領域が電気八極子秩序相を示している。

次に、面内磁場を印加した場合を調べる。用いたパラメータは $g_1 = 0.45$ 、 $g_2 = -0.05$ 、 $\alpha = 0.35$ 、 $\mu = 1.262$ 、 $T = 1.0 \times 10^{-6}$ 、 $\mathbf{h} = 0.02\hat{x}$ である。このとき、得られた dPI 秩序変数は $(\Delta_A, \Delta_B) \simeq (-0.0097, 0.0097)$ である。図 31 は $E_1(k_x, k_y) - E_1(k_x, -k_y)$ をプロットしている。ここで、 $E_{\mathbf{k}a} = E_a(k_x, k_y)$ は $E_1(k_x, k_y) \geq E_2(k_x, k_y) \geq E_3(k_x, k_y) \geq E_4(k_x, k_y)$ の関係を満たしている。 $E_1(k_x, k_y) - E_1(k_x, -k_y)$ はバンド構造の非対称性を表している。そのため、図 31 は電気八極子秩序相で面内磁場を加えることで非対称なバンド構造が生じることを示している。このことは空間反転対称性の欠如した結晶でのゼーマン効果によるバンドシフトと類似している。

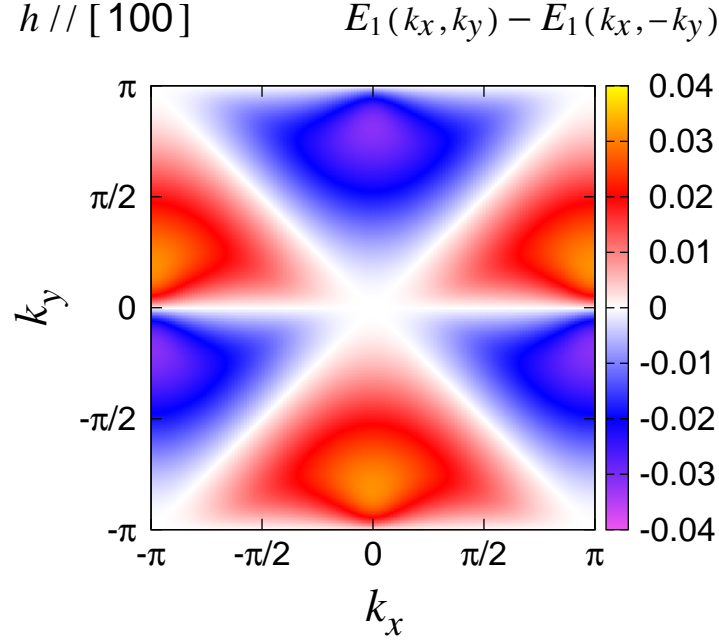


図 31 [100] 面内磁場中における電気八極子秩序状態での非対称なバンド構造 $E_1(k_x, k_y) - E_1(k_x, -k_y)$ 。

ここで非対称なバンド構造を調べるために、有効的な 2 バンドモデル

$$H_{\text{eff}} = \sum_{i=1}^2 \sum_{\mathbf{k}, s, s'} \left[\xi_{\mathbf{k}}^i \sigma_0^{ss'} + (\mathbf{g}_{\mathbf{k}}^i - \mathbf{h}) \cdot \boldsymbol{\sigma}^{ss'} \right] a_{\mathbf{k}s}^\dagger a_{\mathbf{k}s'} \quad (92)$$

を導入する。ここで、 $\xi_{\mathbf{k}}^i = (E_{\mathbf{k}, 2i} + E_{\mathbf{k}, 2i-1})/2$ とする。ゼーマンエネルギーが ASOC の大きさよりも十分小さい場合、式 (92) のエネルギー分散は

$$E_{\mathbf{k}, \pm i} = \xi_{\mathbf{k}}^i \pm |\mathbf{g}_{\mathbf{k}}^i - \mathbf{h}| \simeq \xi_{\mathbf{k}}^i \pm |\mathbf{g}_{\mathbf{k}}^i| \mp \frac{\mathbf{g}_{\mathbf{k}}^i \cdot \mathbf{h}}{|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}^i|} \quad (93)$$

となる。バンドの非対称性は最後の項 $\mp (\mathbf{g}_{\mathbf{k}}^i \cdot \mathbf{h})/|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}^i|$ に起因する。電気八極子秩序状態では有効 g ベクトルが $\mathbf{g}_{\mathbf{k}}^i \propto (\sin k_y, \sin k_x, 0)$ となる。そのため、面内磁場中における電気八極子秩序相では式 (93) から、非対称性なバンド構造

$$E_a(k_x, k_y) = E_a(-k_x, k_y) \neq E_a(k_x, -k_y) \quad \text{for } \mathbf{h} \parallel [100] \quad (94)$$

$$E_a(k_x, k_y) = E_a(k_x, -k_y) \neq E_a(-k_x, k_y) \quad \text{for } \mathbf{h} \parallel [010] \quad (95)$$

が得られる。

2.9 まとめ

この章では、二層 Rashba 系を対象として電気多極子状態の熱力学的安定性に対する Rashba 型 ASOC の効果を調べた。

電気多極子の電子構造は以下のように記述される。電気四極子状態におけるバンド構造の回転対称性は C_4 から C_2 に低下しており、空間反転対称性が保存されているためスピン縮退している。一方、電気八極子状態では空間反転対称性が自発的に破れるため、Rashba 型 ASOC との協力効果により各バンドのスピン縮退は解ける。また、電気八極子状態の回転対称性は C_4 である。この電気八極子状態は点群 D_{2d} に属するために、波数空間におけるスピン構造の対称性は $k_y\hat{x} + k_x\hat{y}$ となる。

電気多極子状態の安定性に対する Rashba 型 ASOC の効果を電気多極子感受率を用いて調べた。その結果、Rashba 型 ASOC の効果が大きな場合と小さな場合で、電気多極子状態の熱力学的安定性に関するメカニズムが異なることを示した。Rashba 型 ASOC が大きい場合では準粒子の波動関数は各層に局在するため、二層間ホッピングに伴う運動エネルギーは減少する。その場合、電気四極子状態での運動エネルギーの利得は抑えられる。したがって、層間前方散乱効果が電気八極子状態の安定性に大きく影響することになり、特に層間前方散乱効果が斥力の場合では電気八極子状態が安定となりやすい。この奇パリティ電気多極子における安定化のメカニズムは多層 Rashba 系における奇パリティ超伝導状態の場合と類似している [33]。層依存 Rashba 型 ASOC により層間の Josephson 結合が抑えられることにより、面直磁場中ではスピン一重項超伝導秩序変数の空間変調を伴う奇パリティ超伝導状態 (ペア密度波状態) が安定化する。

[001] 軸方向に磁場を印加した場合における、電気八極子秩序状態の安定性を調べた。 h - T 相図において、ドーム型の電気八極子秩序相が現れる。さらに、高磁場側で空間反転対称性の有無が異なる電子状態を伴う二相間に量子臨界点が現れることを示した。

電気八極子状態におけるスピン構造は $k_y\hat{x} + k_x\hat{y}$ の対称性をもつため、面内磁場中における電気八極子秩序状態では非対称なバンド構造が現れる。ヘリカル超伝導状態が安定となる場合、非対称なバンド構造を伴う超伝導性が現れる。さらに、奇パリティ磁気多極子状態でのヘリカル超伝導性が示されている [49]。特徴的なことは、奇パリティ磁気多極子状態では空間反転対称性と時間反転対称性が同時に破れるために、外部磁場を印加することなくヘリカル超伝導性が現れることである。

3 二層 Rashba 系における電気多極子秩序状態での磁気電気応答

3.1 導入

スピン軌道相互作用は電子のスピン自由度と電荷自由度を結びつけるため、内因性の量子現象に対して重要な役割を果たす。p 型半導体 [17] や 2 次元 n 型半導体ヘテロ構造 [18] において、スピン軌道相互作用に起因する内因性スピンホール効果が理論的に予測されている。実験的には半導体 GaAs において光学的手法 [94]、(Al,Ga)As/GaAs ヘテロ構造で pn 接合を組み込んだ発光ダイオードに対する円偏光の測定 [95] などからスピンホール効果が観測されている。序章で説明したように、2 次元 Rashba 系では ASOC の効果により電子のスピンと運動量が結びつくことで、磁気電気効果・異常ホール効果・スピンホール効果が生じる。本研究における電気八極子秩序相では、運動量空間において Rashba 系とは異なる点群 D_{2d} で特徴付けられるスピン構造が現れる。したがって、電気八極子秩序状態では特有の磁気電気応答が現れると期待できる。本章では電気八極子秩序相における磁気電気応答に注目して、二層 Rashba 系での電気多極子秩序状態におけるスピンホール効果と磁気電気効果 (エーデルシュタイン効果) を明らかにする。また、 α 型ピクロア酸化物 $\text{Cd}_2\text{Re}_2\text{O}_7$ は $T_s = 200\text{K}$ より低温で電気抵抗が減少することが報告されており、 T_s 以下で立方晶 (O_h) から正方晶 (D_{2d}) へ構造転移を生じている [96]。したがって、 T_s 以下で点群 D_{2d} に属する電気八極子状態が実現している可能性がある [97]。そのため、本章では $\text{Cd}_2\text{Re}_2\text{O}_7$ を念頭に置いて磁気電気応答を調べる。

3.2 スピンホール効果

線形応答理論を用いると、スピンホール効果は

$$J_\mu^{sz} = \sigma_{\mu\nu}^{\text{SHE}} E_\nu \quad (96)$$

と書ける。ここで、 J_μ^{sz} は量子化軸を z 軸とした μ 方向へのスピン流、 $\sigma_{\mu\nu}^{\text{SHE}}$ はスピンホール伝導率、 E_ν は ν 方向への電場を表している。また、 μ と ν は方向指標である ($\mu, \nu = x, y$)。久保公式を用いると、スピンホール伝導率は

$$\sigma_{\mu\nu}^{\text{SHE}} = \lim_{\omega \rightarrow 0} \frac{K_{\mu\nu}^{\text{SHE}}(\omega) - K_{\mu\nu}^{\text{SHE}}(0)}{i\omega} \quad (97)$$

$$K_{\mu\nu}^{\text{SHE}}(\omega) = K_{\mu\nu}^{\text{SHE}}(i\omega_n) \Big|_{i\omega_n \rightarrow \omega + i0} \quad (98)$$

と計算される。ここで、応答関数 $K_{\mu\nu}^{\text{SHE}}$ は

$$K_{\mu\nu}^{\text{SHE}}(i\omega_n) = \frac{1}{N} \int_0^{1/T} d\tau \langle T_\tau \{ J_\mu^{sz}(\tau) J_\nu(0) \} \rangle e^{i\omega_n \tau} \quad (99)$$

となる。 J_ν は電場 E_ν で誘起される電流を示す。スピン流演算子 J_μ^{sz} を

$$J_\mu^{sz} = \frac{1}{2} g \mu_B \sum_{\mathbf{k}} \hat{C}_{\mathbf{k}}^\dagger \left\{ \hat{v}_{\mathbf{k}\mu}, \hat{\sigma}_4^z \right\} \hat{C}_{\mathbf{k}} \quad (100)$$

$$\hat{\sigma}_4^z = \begin{pmatrix} \sigma^z & 0 \\ 0 & \sigma^z \end{pmatrix} \quad (101)$$

として導入する。ここで、速度演算子 $\hat{v}_{\mathbf{k}\mu} = \partial \hat{H}_4^{\text{MF}}(\mathbf{k}) / \partial k_\mu$ 、 g は g 因子、 μ_B はボーア磁子である。電流演算子 J_ν を

$$J_\nu = e \sum_{\mathbf{k}} \hat{C}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{v}_{\mathbf{k}\nu} \hat{C}_{\mathbf{k}} \quad (102)$$

として定義する。ここで、 e は電荷である。

式 (44) の平均場ハミルトニアンに基づいたユニタリー変換を行うことにより、バンド表示におけるスピホール伝導率の解析式が得られる。付録 C に示しているように、スピホール伝導率の対角成分 $\sigma_{\mu\mu}^{\text{SHE}}$ はゼロになる。スピホール伝導率の非対角成分 $\sigma_{\mu\nu}^{\text{SHE}} (\mu \neq \nu)$ は

$$\sigma_{\mu\nu}^{\text{SHE}} = \sigma_{\mu\nu}^{\text{SHE(C)}} + \sigma_{\mu\nu}^{\text{SHE(NC)}} \quad (103)$$

と書ける。スピホール伝導率の非対角成分は応答関数 $K_{\mu\nu}^{\text{SHE}}$ のバンド間からの寄与で与えられており、2つの寄与に分けることができる。第一項 $\sigma_{\mu\nu}^{\text{SHE(C)}}$ は $\{E_{\mathbf{k}1}, E_{\mathbf{k}2}\}$ と $\{E_{\mathbf{k}3}, E_{\mathbf{k}4}\}$ 間のバンド分裂により与えられる寄与であり、層依存 Rashba 型 ASOC と層間ホッピングの効果で生じる。この寄与は局所的な空間反転対称性の欠如に起因しており、系が空間反転対称性を保つ場合でも有限となる。そのため、通常状態・電気四極子秩序状態・電気八極子秩序状態の各状態において $\sigma_{\mu\nu}^{\text{SHE(C)}}$ は有限となる。対して、第二項 $\sigma_{\mu\nu}^{\text{SHE(NC)}}$ は空間反転対称性の欠如に起因する寄与である。電気八極子秩序状態は自発的に空間反転対称性を破るため、この空間反転対称性の破れと層依存 Rashba 型 ASOC の協力効果により $\sigma_{\mu\nu}^{\text{SHE(NC)}}$ は有限となる。つまり、 $\sigma_{\mu\nu}^{\text{SHE(NC)}}$ は $E_{\mathbf{k}1}$ と $E_{\mathbf{k}2}$ 間のバンド分裂と $E_{\mathbf{k}3}$ と $E_{\mathbf{k}4}$ 間のバンド分裂により与えられる。これらのバンド間からの寄与に関して、図 32 に直感的な描像を示す。

次にスピホール伝導率の解析式を示す。 σ_{xy}^{SHE} は

$$\sigma_{xy}^{\text{SHE}} = \sigma_{xy}^{\text{SHE(C)}} + \sigma_{xy}^{\text{SHE(NC)}} \quad (104)$$

$$\begin{aligned} \sigma_{xy}^{\text{SHE(C)}} = & -\frac{\alpha g \mu_B e}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\sin k_x \cos k_y}{|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|} \left[\left(\frac{\partial \varepsilon_{\mathbf{k}}}{\partial k_x} \right) \left\{ D_{14}(\mathbf{k}) + D_{23}(\mathbf{k}) \right\} \left\{ T_{\mathbf{k}-}^2 + T_{\mathbf{k}+}^2 - 1 \right\} \right. \\ & \left. - \sin k_x \left\{ D_{14}(\mathbf{k}) T_{AB}^{(1)}(\mathbf{k}) + D_{23}(\mathbf{k}) T_{BA}^{(1)}(\mathbf{k}) \right\} \left\{ T_{\mathbf{k}-} - T_{\mathbf{k}+} + \sqrt{1 - T_{\mathbf{k}-}^2} \sqrt{1 - T_{\mathbf{k}+}^2} \right\} \right] \quad (105) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \sigma_{xy}^{\text{SHE(NC)}} = & -\frac{\alpha g \mu_B e}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\sin k_x \cos k_y}{|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|} \left[\left(\frac{\partial \varepsilon_{\mathbf{k}}}{\partial k_x} \right) \left\{ D_{12}(\mathbf{k}) - D_{34}(\mathbf{k}) \right\} \left\{ T_{\mathbf{k}-}^2 - T_{\mathbf{k}+}^2 \right\} \right. \\ & \left. - \sin k_x \left\{ D_{12}(\mathbf{k}) T_{AB}^{(2)}(\mathbf{k}) - D_{34}(\mathbf{k}) T_{BA}^{(2)}(\mathbf{k}) \right\} \left\{ T_{\mathbf{k}-} \sqrt{1 - T_{\mathbf{k}+}^2} - T_{\mathbf{k}+} \sqrt{1 - T_{\mathbf{k}-}^2} \right\} \right] \quad (106) \end{aligned}$$

$$\sigma_{\mu\nu}^{\text{SHE}} = \sigma_{\mu\nu}^{\text{SHE(C)}} + \sigma_{\mu\nu}^{\text{SHE(NC)}}$$

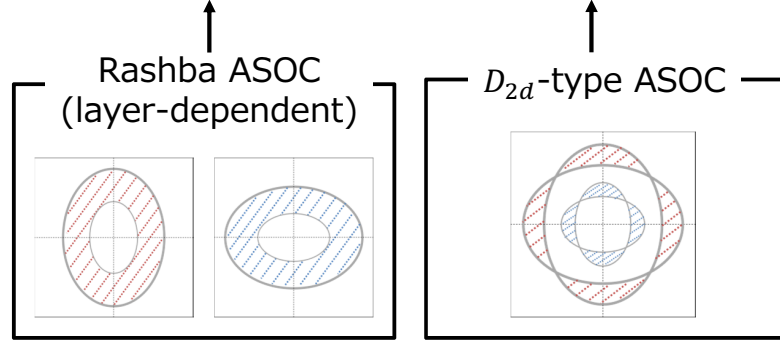


図 32 スピンホール伝導率における 2 種類のバンド間からの寄与。四角枠内では ASOC の効果によりスピ分裂したフェルミ面を示している。(この図では電気八極子状態におけるフェルミ面を表している)。ASOC の効果によりバンド分裂したフェルミ面間の運動量を赤・青斜線で表している。 $\sigma_{\mu\nu}^{\text{SHE(C)}}$ は層依存 Rashba 型 ASOC によりバンド分裂したフェルミ面間の運動量をもつ電子におけるバンド間からの寄与である。対して、 $\sigma_{\mu\nu}^{\text{SHE(NC)}}$ は系の空間反転対称性が破れた場合に有限となる。電気八極子秩序状態では自発的な空間反転対称性の破れに起因するバンド分裂が生じる (右側の四角枠内)。このバンド分裂したフェルミ面間の運動量をもつ電子におけるバンド間からの寄与が $\sigma_{\mu\nu}^{\text{SHE(NC)}}$ となる。通常状態と電気四極子秩序状態では空間反転対称性が保たれているため、 $\sigma_{\mu\nu}^{\text{SHE(NC)}} = 0$ となる。

と記述される。また、 σ_{yx}^{SHE} は

$$\sigma_{yx}^{\text{SHE}} = \sigma_{yx}^{\text{SHE(C)}} + \sigma_{yx}^{\text{SHE(NC)}} \quad (107)$$

$$\begin{aligned} \sigma_{yx}^{\text{SHE(C)}} = & \frac{\alpha g \mu_B e}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\cos k_x \sin k_y}{|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|} \left[\left(\frac{\partial \varepsilon_{\mathbf{k}}}{\partial k_y} \right) \left\{ D_{14}(\mathbf{k}) + D_{23}(\mathbf{k}) \right\} \left\{ T_{\mathbf{k}-}^2 + T_{\mathbf{k}+}^2 - 1 \right\} \right. \\ & \left. + \sin k_y \left\{ D_{14}(\mathbf{k}) T_{AB}^{(1)}(\mathbf{k}) + D_{23}(\mathbf{k}) T_{BA}^{(1)}(\mathbf{k}) \right\} \left\{ T_{\mathbf{k}-} - T_{\mathbf{k}+} + \sqrt{1 - T_{\mathbf{k}-}^2} \sqrt{1 - T_{\mathbf{k}+}^2} \right\} \right] \end{aligned} \quad (108)$$

$$\begin{aligned} \sigma_{yx}^{\text{SHE(NC)}} = & \frac{\alpha g \mu_B e}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\cos k_x \sin k_y}{|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|} \left[\left(\frac{\partial \varepsilon_{\mathbf{k}}}{\partial k_y} \right) \left\{ D_{12}(\mathbf{k}) - D_{34}(\mathbf{k}) \right\} \left\{ T_{\mathbf{k}-}^2 - T_{\mathbf{k}+}^2 \right\} \right. \\ & \left. + \sin k_y \left\{ D_{12}(\mathbf{k}) T_{AB}^{(2)}(\mathbf{k}) - D_{34}(\mathbf{k}) T_{BA}^{(2)}(\mathbf{k}) \right\} \left\{ T_{\mathbf{k}-} \sqrt{1 - T_{\mathbf{k}+}^2} - T_{\mathbf{k}+} \sqrt{1 - T_{\mathbf{k}-}^2} \right\} \right] \end{aligned} \quad (109)$$

となる。ここで、 $T_{ll'}^{(1)}(\mathbf{k})$ 、 $T_{ll'}^{(2)}(\mathbf{k})$ 、 $D_{ab}(\mathbf{k})$ を

$$T_{ll'}^{(1)}(\mathbf{k}) = \Delta_l T_{\mathbf{k}-} T_{\mathbf{k}+} - \Delta_{l'} \sqrt{1 - T_{\mathbf{k}-}^2} \sqrt{1 - T_{\mathbf{k}+}^2} \quad (110)$$

$$T_{ll'}^{(2)}(\mathbf{k}) = \Delta_l T_{\mathbf{k}-} \sqrt{1 - T_{\mathbf{k}+}^2} + \Delta_{l'} T_{\mathbf{k}+} \sqrt{1 - T_{\mathbf{k}-}^2} \quad (111)$$

$$D_{ab}(\mathbf{k}) = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\varepsilon}{\pi} f(\varepsilon) \left[-\frac{\partial \text{Re} G_{\mathbf{k}b}^{\text{R}}(\varepsilon)}{\partial \varepsilon} \text{Im} G_{\mathbf{k}a}^{\text{R}}(\varepsilon) + \text{Im} G_{\mathbf{k}b}^{\text{R}}(\varepsilon) \frac{\partial \text{Re} G_{\mathbf{k}a}^{\text{R}}(\varepsilon)}{\partial \varepsilon} \right] \quad (112)$$

として導入している。式 (112) により、 $E_{\mathbf{k}a} = E_{\mathbf{k}b}$ の場合に $D_{ab}(\mathbf{k}) = 0$ となる。この関係からも、スピンホール伝導率はバンド間からの寄与により与えられることが確認できる。また、バンド基底における遅延グリーン関数は $G_{\mathbf{k}a}^{\text{R}}(\varepsilon) = [\varepsilon - E_{\mathbf{k}a} + i\gamma]^{-1}$ と書ける。ここで、簡単化のためにバンドと運動量に依存しない準粒子ダンピング γ を考慮している。スピンホール伝導率はバンド間からの寄与により与えられるため、準粒子ダンピング $\gamma \rightarrow 0$ の極限を考える (準粒子の寿命が ∞)。その場合、 $D_{ab}(\mathbf{k})$ は

$$D_{ab}(\mathbf{k}) = -\frac{f(E_{\mathbf{k}a}) - f(E_{\mathbf{k}b})}{[E_{\mathbf{k}a} - E_{\mathbf{k}b}]^2} \quad (113)$$

と記述される ($E_{\mathbf{k}a} \neq E_{\mathbf{k}b}$)。さらに、各成分をあらわに書くと

$$D_{14}(\mathbf{k}) = -\frac{f(E_{\mathbf{k}1}) - f(E_{\mathbf{k}4})}{\left[\sqrt{(\alpha_{\mathbf{k}+}^d)^2 + t_{\perp}^2} + \sqrt{(\alpha_{\mathbf{k}-}^d)^2 + t_{\perp}^2} \right]^2} \quad (114)$$

$$D_{23}(\mathbf{k}) = -\frac{f(E_{\mathbf{k}2}) - f(E_{\mathbf{k}3})}{\left[\sqrt{(\alpha_{\mathbf{k}+}^d)^2 + t_{\perp}^2} + \sqrt{(\alpha_{\mathbf{k}-}^d)^2 + t_{\perp}^2} \right]^2} \quad (115)$$

$$D_{12}(\mathbf{k}) = -\frac{f(E_{\mathbf{k}1}) - f(E_{\mathbf{k}2})}{\left[\sqrt{(\alpha_{\mathbf{k}+}^d)^2 + t_{\perp}^2} - \sqrt{(\alpha_{\mathbf{k}-}^d)^2 + t_{\perp}^2} \right]^2} \quad (116)$$

$$D_{34}(\mathbf{k}) = -\frac{f(E_{\mathbf{k}3}) - f(E_{\mathbf{k}4})}{\left[\sqrt{(\alpha_{\mathbf{k}+}^d)^2 + t_{\perp}^2} - \sqrt{(\alpha_{\mathbf{k}-}^d)^2 + t_{\perp}^2} \right]^2} \quad (117)$$

となる。

本セクションでは結晶構造が正方晶の場合を考慮するため、式 (35) と (36) において $\delta t_1 = 0$ とする。図 33 はスピンホール伝導率 σ_{xy}^{SHE} 、 $\sigma_{xy}^{\text{SHE(C)}}$ 、 $\sigma_{xy}^{\text{SHE(NC)}}$ の化学ポテンシャル依存性を示している。図 33 (a) では $\mu \simeq 1.3$ 近傍において電気四極子秩序状態が安定となる。通常状態と電気四極子秩序状態では $\sigma_{xy}^{\text{SHE(NC)}} = 0$ のために、 $\sigma_{xy}^{\text{SHE}} = \sigma_{xy}^{\text{SHE(C)}}$ となる。通常状態と電気四極子状態ではともに空間反転対称性が保たれているため、通常状態と電気四極子秩序状態間におけるスピンホール伝導率の振る舞いに大きな違いは見られない。一方、電気八極子秩序状態におけるスピンホール伝導率は増大する。図 33 (b) では $1.2669 < \mu < 1.2875$ において電気八極子秩序状態が安定となる。また、電気八極子秩序状態では $\sigma_{xy}^{\text{SHE(NC)}}$ が有限となり、その大きさは $\sigma_{xy}^{\text{SHE(C)}}$ に匹敵する。そのため $\mu \simeq 1.2669$ と $\mu \simeq 1.2875$ では二次相転移が生じるが、これら相境界でスピンホール伝導率 σ_{xy}^{SHE} に不連続な飛びが生じる。この飛びは準粒子の寿命を無限大と仮定しているた

めに生じる。有限の寿命を考慮した場合、 $\sigma_{xy}^{\text{SHE(NC)}}$ の飛びは幅を持つようになる。準粒子の寿命がどちらの場合でも、電気八極子秩序相におけるスピンホール伝導率の振る舞いに定性的な違いは無い。

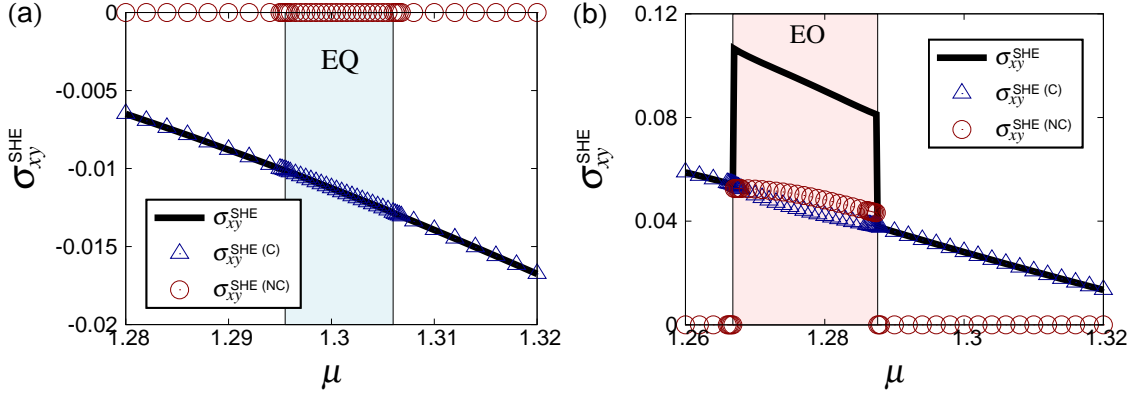


図 33 スピンホール伝導率 σ_{xy}^{SHE} の化学ポテンシャル依存性。(a) $g_1 = 0.45$, $g_2 = 0.05$, $\alpha = 0.1$, $T = 0.01$ のパラメーターを用いている。青背景が電気四極子秩序状態の安定領域を示す。(b) $g_1 = 0.45$, $g_2 = -0.05$, $\alpha = 0.35$, $T = 0.01$ のパラメーターを用いている。赤背景が電気八極子秩序状態の安定領域を示す。黒実線が σ_{xy}^{SHE} 、青三角が $\sigma_{xy}^{\text{SHE(C)}}$ 、赤丸が $\sigma_{xy}^{\text{SHE(NC)}}$ を示す。電気八極子秩序状態のみ $\sigma_{xy}^{\text{SHE(NC)}}$ が有限の値を取る。

次に、スピンホール伝導率に対する層内前方散乱効果の影響を調べる。数値計算結果を示す前に、解析式を用いて $g_1 \rightarrow \infty$ の極限における $\sigma_{\mu\nu}^{\text{SHE}}$ の振る舞いを見てみる。 $g_1 \rightarrow \infty$ の場合、dPI 秩序変数の大きさは層依存 Rashba 型 ASOC と層間ホッピングの大きさよりも十分大きくなる $|\Delta_l| \gg \alpha|g_{\mathbf{k}}|, t_{\perp}$ 。この場合、スピンホール伝導率に対する ASOC の効果が抑えられる。電気四極子秩序状態 $\Delta_A = \Delta_B = \Delta \rightarrow \infty$ では、エネルギー分散が $E_{\mathbf{k}a} = d_{\mathbf{k}}\Delta$ となり 4 重縮退する。このとき、式 (112) から $D_{ab}(\mathbf{k}) = 0$ となるため、スピンホール伝導率はゼロになる。続いて、電気八極子秩序状態 $\Delta_A = -\Delta_B = \Delta \rightarrow \infty$ の場合を考える。この場合、式 (48) は $T_{\mathbf{k}+} = 0$ と $T_{\mathbf{k}-} = 1$ となる。したがって、式 (105) と (108) から $\sigma_{\mu\nu}^{\text{SHE(C)}} = 0$ となる。エネルギー分散は $E_{\mathbf{k}1} = E_{\mathbf{k}2} = d_{\mathbf{k}}\Delta, E_{\mathbf{k}3} = E_{\mathbf{k}4} = -d_{\mathbf{k}}\Delta$ と記述される。式 (112) により、このエネルギー分散の 2 重縮退により $D_{12}(\mathbf{k}) = D_{34}(\mathbf{k}) = 0$ となる。したがって、式 (106) と (109) から $\sigma_{\mu\nu}^{\text{SHE(NC)}} = 0$ が得られる。以上より、層内前方散乱効果が非常に大きい場合 $g_1 \rightarrow \infty$ では、電気四極子秩序状態と電気八極子秩序状態ともにスピンホール伝導率はゼロに近づくと予想される。

図 34 はスピンホール伝導率 σ_{xy}^{SHE} の層内前方散乱効果の結合定数 g_1 依存性を示している。図 34 (a) と (b) は通常状態と電気四極子秩序状態におけるスピンホール伝導率を表しており、(a) では $\Delta_l > 0$ 、(b) では $\Delta_l < 0$ となる。電気四極子秩序相の相境界において、スピンホール伝導率は連続的に変化する。また、(a) と (b) とともにリフシツツ転移点 ($g_1 \simeq 0.6$) 近傍でスピンホール伝導率のピークを示す。解析式を用いて予想したように、 g_1 を増加させると σ_{xy}^{SHE} は減少する。スピンホール伝導率の大きさは Δ_l の符号に依存する。図 34 (a) と (b) の挿図で示されているように、電気四極子状態の電子構造は異方性をもつ。そのため、誘起されやすいスピン流の方向はこの異方性

に起因する。

図 34 (c) に示されているように、電気八極子秩序状態の相境界 ($g_1 \simeq 0.501$) ではスピンホール伝導率に不連続な飛びが現れる。この相転移点近傍で σ_{xy}^{SHE} はピークを取る。また、強結合領域 $g_1 > 0.6$ では $\sigma_{\mu\nu}^{\text{SHE(C)}}$ と $\sigma_{\mu\nu}^{\text{SHE(NC)}}$ の打ち消し合いが生じるために、スピンホール伝導率は減少する。点群 D_{4h} における ASOC は $-k_y\hat{x} + k_x\hat{y}$ の対称性を持ち、一方、点群 D_{2d} における ASOC は $k_y\hat{x} + k_x\hat{y}$ の対称性をもつ。前者は $\sigma_{\mu\nu}^{\text{SHE(C)}}$ に、後者は $\sigma_{\mu\nu}^{\text{SHE(NC)}}$ に寄与する。この \hat{x} における成分 $\pm k_y$ の違いにより、 $\sigma_{\mu\nu}^{\text{SHE(C)}}$ と $\sigma_{\mu\nu}^{\text{SHE(NC)}}$ が異なる符号を取る。また、解析式から予想したように、 g_1 を増加させると $\sigma_{\mu\nu}^{\text{SHE(C)}}$ と $\sigma_{\mu\nu}^{\text{SHE(NC)}}$ の大きさは減少する。さらに、dPI 秩序変数を $(\Delta_A, \Delta_B) = (\Delta, -\Delta) \rightarrow (-\Delta, \Delta)$ と変換してもスピンホール伝導率は不変である。これは、電気八極子状態におけるフェルミ面の回転対称性が C_4 であることに起因する。

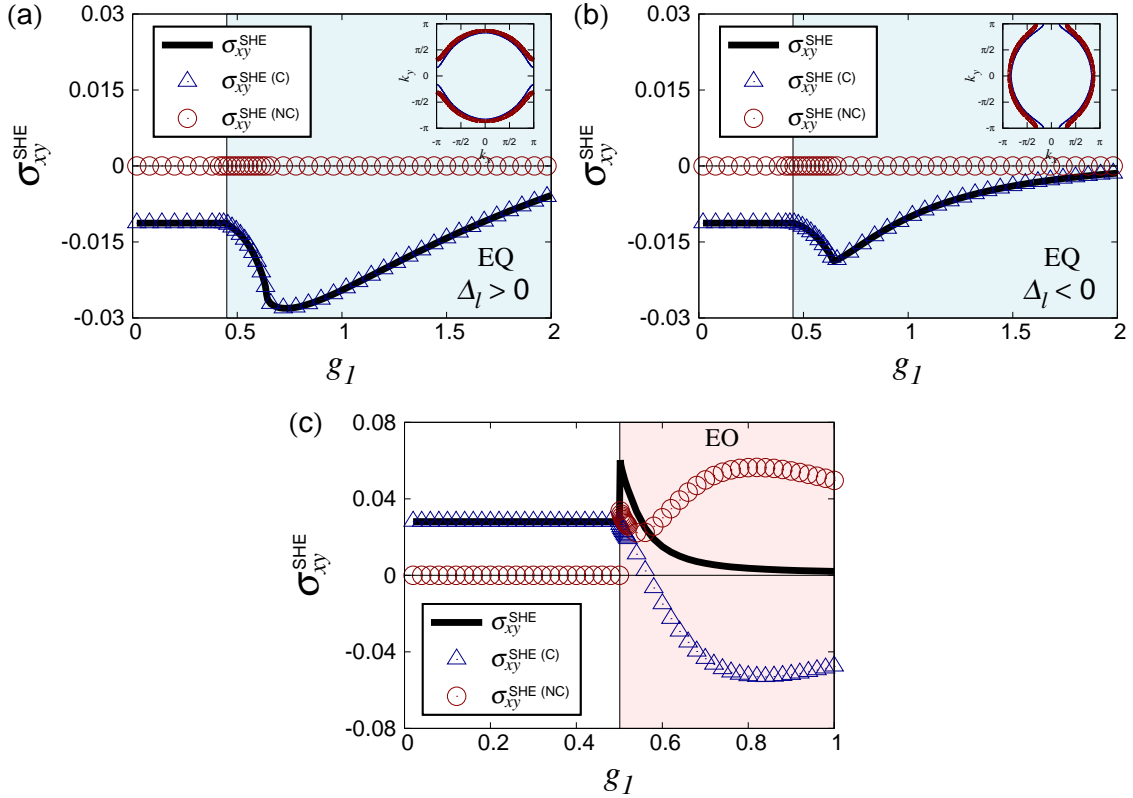


図 34 スピンホール伝導率 σ_{xy}^{SHE} の g_1 依存性。(a) と (b) では $g_2 = 0.05$ 、 $\alpha = 0.1$ 、 $\mu = 1.3$ 、 $T = 0.01$ のパラメータを用いている。青背景が電気四極子秩序状態の安定領域を示す。(a) $\Delta_l > 0$ の場合、(b) $\Delta_l < 0$ の場合を示す。右上挿図が $g_1 = 0.7$ におけるフェルミ面を表している。dPI 秩序変数 Δ_l の正負により、フェルミ面の位相が $\pi/2$ 異なる。(c) $g_2 = -0.05$ 、 $\alpha = 0.35$ 、 $\mu = 1.3$ 、 $T = 0.01$ 場合。赤背景が電気八極子秩序状態の安定領域を示す。黒実線が σ_{xy}^{SHE} 、青三角が $\sigma_{xy}^{\text{SHE(C)}}$ 、赤丸が $\sigma_{xy}^{\text{SHE(NC)}}$ を示す。

電気八極子秩序状態におけるスピンホール伝導率のピークは層依存の Rashba 型 ASOC に依存する。図 35 に様々な ASOC の大きさにおけるスピンホール伝導率 σ_{xy}^{SHE} の前方散乱効果の結合定

数 g_1 依存性を示す。弱結合領域では通常状態が安定となり、 α を増加させると σ_{xy}^{SHE} は正の値へとシフトする。さらに、 g_1 を増加させると電気八極子秩序相への相転移点で σ_{xy}^{SHE} に飛びが生じ、その相転移点近傍にピークが現れる。 $\alpha = 0.1 \sim 0.3$ において、 α を増加させると σ_{xy}^{SHE} のピークは増加する。また、 g_1 を非常に大きくすると、 α の大きさに関係なくスピンホール伝導率の大きさはゼロに近づく。

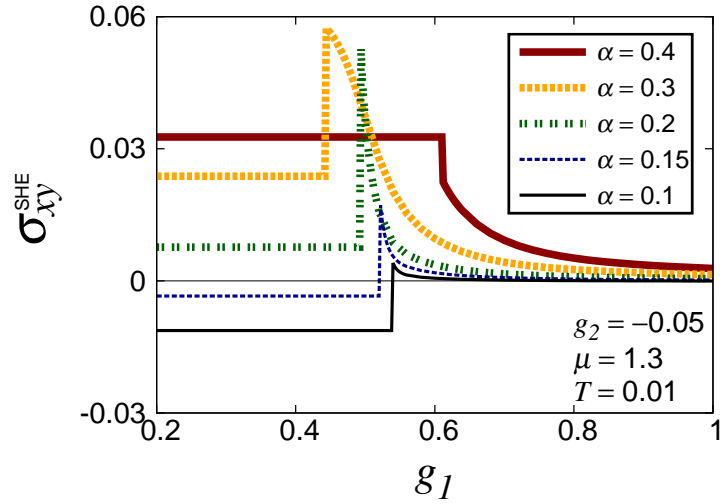


図 35 $\alpha = 0.1 \sim 0.4$ におけるスピンホール伝導率 σ_{xy}^{SHE} の g_1 依存性。 $g_2 = -0.05$ 、 $\mu = 1.3$ 、 $T = 0.01$ のパラメータを用いている。 σ_{xy}^{SHE} が g_1 に依存しない弱結合領域では通常状態が安定となる。 σ_{xy}^{SHE} に飛びが現れる点で通常状態と電気八極子秩序状態の相転移が生じる。相転移点以上の g_1 では電気八極子秩序状態が安定となる。

図 36 はスピンホール伝導率 σ_{xy}^{SHE} と σ_{yx}^{SHE} の温度依存性を表している。図 36 (a) では $g_1 = 0.6$ の強結合領域、(b) では $g_1 = 0.45$ の弱結合領域の場合を示しており、ともに電気八極子秩序状態が安定となる。 $|\Delta_l| \gg \alpha|\mathbf{g}_k|$ となる強結合領域では低温ではスピンホール効果が抑えられるが、相境界では $\sigma_{\mu\nu}^{\text{SHE(NC)}}$ の寄与によりスピンホール伝導率に不連続な飛びが現れる。この飛びが電気八極子秩序状態における空間反転対称性の破れを特徴づけている。対して、 $|\Delta_l| < \alpha|\mathbf{g}_k|$ となる弱結合領域ではスピンホール伝導率における温度依存性はほとんど現れない。図 37 に示されているように、この場合フェルミ面に対する温度依存性は小さい。また、図 36 (c) から通常状態と電気四極子秩序状態におけるスピンホール伝導率の振る舞いにはほとんど違いが無いことが分かった。

通常状態と電気八極子秩序状態では $\sigma_{xy}^{\text{SHE}} = -\sigma_{yx}^{\text{SHE}}$ となる。このことをスピンホール伝導率の解析式を用いて調べてみる。 $x \leftrightarrow y$ とした場合、式 (49) より $\alpha_{\mathbf{k}\pm}^d \rightarrow \alpha_{\mathbf{k}\mp}^d$ 、式 (48) より $T_{\mathbf{k}\pm} \rightarrow T_{\mathbf{k}\mp}$ となる。その結果、式 (50) - (53) よりエネルギー分散は $(E_{\mathbf{k}1}, E_{\mathbf{k}2}, E_{\mathbf{k}3}, E_{\mathbf{k}4}) \rightarrow (E_{\mathbf{k}2}, E_{\mathbf{k}1}, E_{\mathbf{k}4}, E_{\mathbf{k}3})$ となる。したがって、式 (112) から $D_{ab}(\mathbf{k})$ は $(D_{14}, D_{23}, D_{12}, D_{34}) \rightarrow (D_{23}, D_{14}, -D_{12}, -D_{34})$ と変換される。式 (105)、(106)、(108)、(109) を用いると、通常状態と電気八極子秩序状態では $\sigma_{xy}^{\text{SHE(C)}} \rightarrow -\sigma_{yx}^{\text{SHE(C)}}$ と $\sigma_{xy}^{\text{SHE(NC)}} \rightarrow -\sigma_{yx}^{\text{SHE(NC)}}$ が得られる。したがって、通常状態と電気八極子秩序状態では $\sigma_{xy}^{\text{SHE}} = -\sigma_{yx}^{\text{SHE}}$ となる。また、電気四極子秩序状態では

電子構造の回転対称性が破れるため $\sigma_{xy}^{\text{SHE}} \neq -\sigma_{yx}^{\text{SHE}}$ となる。

さらに、運動量空間におけるスピン構造からもスピンホール伝導率 σ_{xy}^{SHE} と σ_{yx}^{SHE} の関係性が確認できる。2バンドモデルでの一般的な g ベクトルにおけるスピンホール伝導率は

$$\sigma_{xy}^{\text{SHE}} = \frac{eg\mu_B}{2} \sum_{\mathbf{k}} \sum_{\tau=\pm} \frac{\tau f(\varepsilon_{\mathbf{k}\tau})}{2\alpha|\mathbf{g}(\mathbf{k})|^3} \frac{k_x}{m} \left[g_y(\mathbf{k}) \frac{\partial g_x(\mathbf{k})}{\partial k_y} - g_x(\mathbf{k}) \frac{\partial g_y(\mathbf{k})}{\partial k_y} \right] \quad (118)$$

$$\sigma_{yx}^{\text{SHE}} = \frac{eg\mu_B}{2} \sum_{\mathbf{k}} \sum_{\tau=\pm} \frac{\tau f(\varepsilon_{\mathbf{k}\tau})}{2\alpha|\mathbf{g}(\mathbf{k})|^3} \frac{k_y}{m} \left[g_y(\mathbf{k}) \frac{\partial g_x(\mathbf{k})}{\partial k_x} - g_x(\mathbf{k}) \frac{\partial g_y(\mathbf{k})}{\partial k_x} \right] \quad (119)$$

と記述される。ここで、 m は電子の質量、 $\varepsilon_{\mathbf{k}\pm} = \varepsilon_{\mathbf{k}} \pm \alpha|\mathbf{g}(\mathbf{k})|$ を表している。通常状態では点群 C_{4v} の対称性に属するスピン構造は $-k_y\hat{x} + k_x\hat{y}$ の構造をもち、 g ベクトルは $\mathbf{g}(\mathbf{k}) \propto (-k_y, k_x, 0)$ となる。一方、電気八極子秩序状態では点群 D_{2d} の対称性に属するスピン構造は $k_y\hat{x} + k_x\hat{y}$ の構造をもち、 g ベクトルは $\mathbf{g}(\mathbf{k}) \propto (k_y, k_x, 0)$ となる。式 (118) と (119) にこれらの g ベクトルを適応すると、通常状態と電気八極子秩序状態ともにスピンホール伝導率は $\sigma_{xy}^{\text{SHE}} = -\sigma_{yx}^{\text{SHE}}$ を満たす。これらのスピンホール伝導率に関する結果より、通常状態と電気八極子秩序状態ではスピン流は同じ方向に誘起される。しかしながら、特に相転移温度近傍では $\sigma_{\mu\nu}^{\text{SHE(NC)}}$ の寄与により、電気八極子秩序相におけるスピン流の大きさは増大する。

このセクションの最後に、電気八極子秩序状態での電場誘起スピン流の方向依存性について述べる。付録 C に示しているように、スピンホール伝導率の対角成分はゼロになる $\sigma_{xx}^{\text{SHE}} = \sigma_{yy}^{\text{SHE}} = 0$ 。したがって、電場誘起スピン流の方向依存性はスピンホール伝導率の非対角成分により与えられる。図 38 は電気八極子秩序状態での電場誘起スピン流の方向依存性を示す。スピン流は電場の印加方向に対して垂直方向に誘起される $\mathbf{J}^{sz} \perp \mathbf{E}$ 。このスピン流の方向依存性は通常状態の場合と同じであるが、電気八極子秩序状態におけるスピン流の大きさは通常状態の場合と比較して定量的に異なることを強調しておく。

3.3 磁気電気効果

このセクションでは磁気電気効果 (エーデルシュタイン効果) を調べる。磁気電気効果は空間反転対称性と時間反転対称性がともに破れた場合に生じるために、電気八極子秩序状態では散逸過程の下で磁気電気効果が現れると期待できる。

磁気電気効果は磁気電気係数 $\Upsilon_{\mu\nu}$ を用いることで

$$M_\mu = -\Upsilon_{\mu\nu} E_\nu \quad (120)$$

と記述される。ここで、 M_μ は μ 方向の磁気モーメントであり、 E_ν は ν 方向の印加電場である。久保公式を用いることで、磁気電気係数 $\Upsilon_{\mu\nu}$ は

$$\Upsilon_{\mu\nu} = \lim_{\omega \rightarrow 0} \frac{K_{\mu\nu}^{\text{ME}}(\omega) - K_{\mu\nu}^{\text{ME}}(0)}{i\omega} \quad (121)$$

$$K_{\mu\nu}^{\text{ME}}(\omega) = K_{\mu\nu}^{\text{ME}}(i\omega_n) \Big|_{i\omega_n \rightarrow \omega + i0} \quad (122)$$

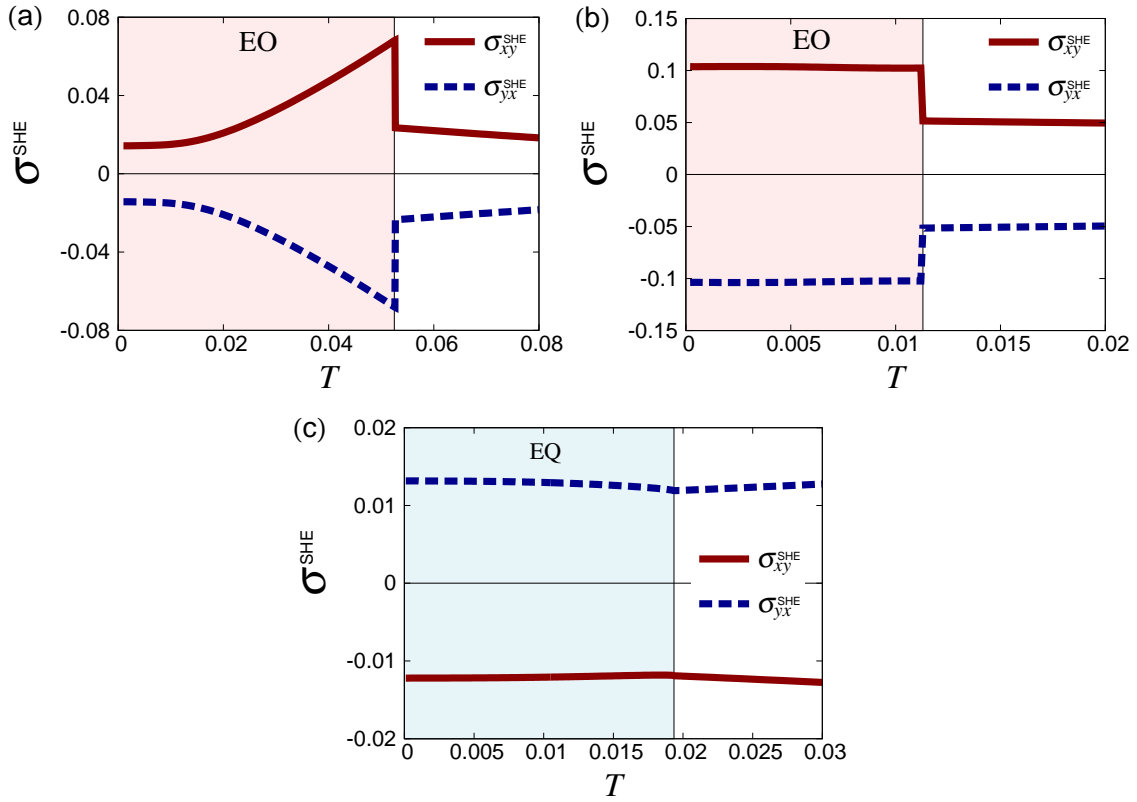


図 36 スピンホール伝導率 σ_{xy}^{SHE} と σ_{yx}^{SHE} の温度依存性。(a) $g_1 = 0.6, g_2 = -0.05, \alpha = 0.35, \mu = 1.3$ の場合。(b) $g_1 = 0.45, g_2 = -0.05, \alpha = 0.35, \mu = 1.27$ の場合。赤背景が電気八極子秩序相を表している。赤実線が σ_{xy}^{SHE} 、青点線が σ_{yx}^{SHE} を示している。(c) $g_1 = 0.5, g_2 = 0.05, \alpha = 0.1, \mu = 1.3$ の場合。青背景が電気四極子秩序相を表している。電気四極子秩序状態では $|\sigma_{xy}^{\text{SHE}}| \neq |\sigma_{yx}^{\text{SHE}}|$ となる。

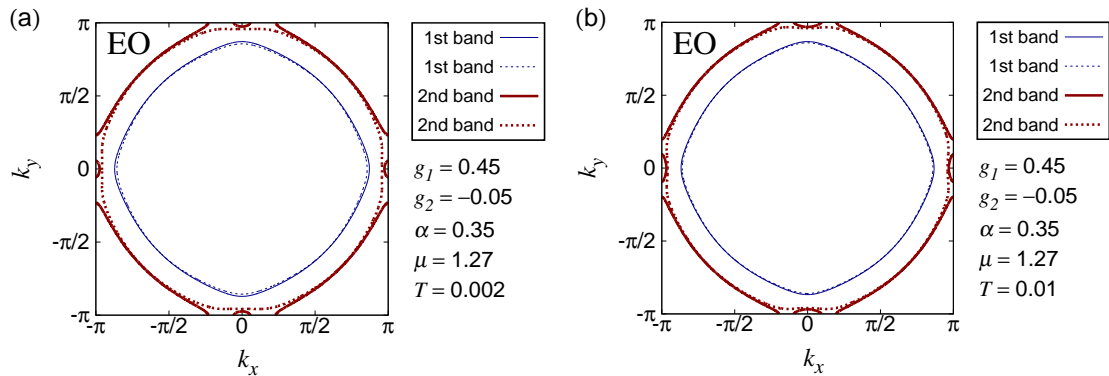


図 37 図 36 (b) での電気八極子秩序状態におけるフェルミ面。(a) $T = 0.002$ 、(b) $T = 0.01$ の場合を示す。

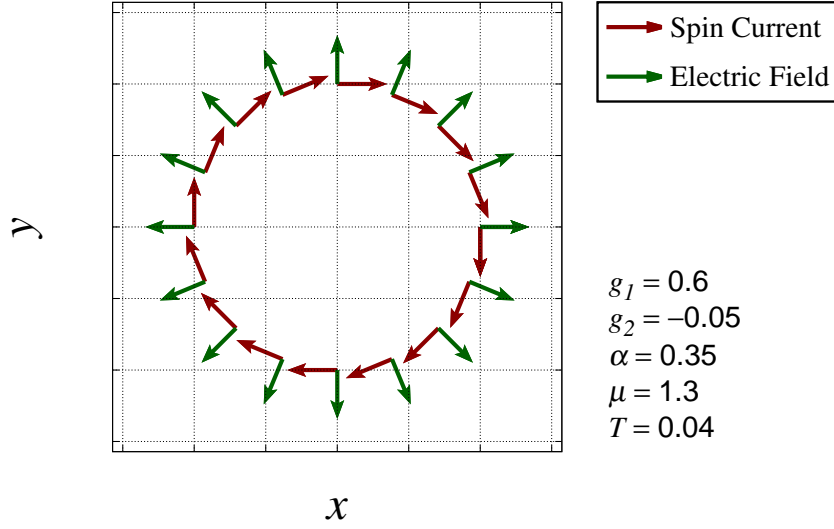


図 38 電気八極子秩序状態における電場誘起スピン流。 $g_1 = 0.6$ 、 $g_2 = -0.05$ 、 $\alpha = 0.35$ 、 $\mu = 1.3$ 、 $T = 0.04$ のパラメーターを用いている。赤矢印がスピン流、緑矢印が電場を表している。

として計算される。応答関数 $K_{\mu\nu}^{\text{ME}}$ は

$$K_{\mu\nu}^{\text{ME}}(i\omega_n) = \frac{1}{N} \int_0^{1/T} d\tau \langle T_\tau \{ S_\mu(\tau) J_\nu(0) \} \rangle e^{i\omega_n \tau} \quad (123)$$

と書ける。ここで、 S_μ はスピン演算子であり

$$S_\mu = \frac{1}{2} g \mu_B \sum_{\mathbf{k}} \hat{C}_{\mathbf{k}} \begin{pmatrix} \sigma^\mu & 0 \\ 0 & \sigma^\mu \end{pmatrix} \hat{C}_{\mathbf{k}} \quad (124)$$

となる。

ユニタリー変換を行うことにより、スピン演算子 S_μ と電流演算子 J_ν のバンド表示が得られる。これらを用いることで、磁気電気係数 $\Upsilon_{\mu\nu}$ の具体的な表式を得ることができる。磁気電気係数は

$$\Upsilon_{\mu\nu} = \Upsilon_{\mu\nu}^{\text{intra}} + \Upsilon_{\mu\nu}^{\text{inter(C)}} + \Upsilon_{\mu\nu}^{\text{inter(NC)}} \quad (125)$$

と記述することができ、 $\Upsilon_{\mu\nu}^{\text{intra}}$ はバンド内からの寄与、 $\Upsilon_{\mu\nu}^{\text{inter(C)}}$ と $\Upsilon_{\mu\nu}^{\text{inter(NC)}}$ はバンド間からの寄与を表している。さらに、スピンホール伝導率の場合と同じく、バンド間からの寄与は2つの種類に分割される。 $\Upsilon_{\mu\nu}^{\text{inter(C)}}$ は層依存の Rashba 型 ASOC と層間ホッピングの効果から得られる寄与であり、 $\Upsilon_{\mu\nu}^{\text{inter(NC)}}$ は層依存の Rashba 型 ASOC と空間反転対称性の破れの複合効果により得られる寄与である。

磁気電気係数 $\Upsilon_{\mu\nu}$ の具体的な表式を示す。まず、 Υ_{xy} は

$$\Upsilon_{xy} = \Upsilon_{xy}^{\text{intra}} + \Upsilon_{xy}^{\text{inter(C)}} + \Upsilon_{xy}^{\text{inter(NC)}} \quad (126)$$

$$\begin{aligned} \Upsilon_{xy}^{\text{intra}} = \frac{g\mu_B e}{2N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\sin k_y}{|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|} \left[\left(\frac{\partial E_{\mathbf{k}1}}{\partial k_y} \right) I_{11}(\mathbf{k}) - \left(\frac{\partial E_{\mathbf{k}2}}{\partial k_y} \right) I_{22}(\mathbf{k}) \right. \\ \left. + \left(\frac{\partial E_{\mathbf{k}3}}{\partial k_y} \right) I_{33}(\mathbf{k}) - \left(\frac{\partial E_{\mathbf{k}4}}{\partial k_y} \right) I_{44}(\mathbf{k}) \right], \end{aligned} \quad (127)$$

$$\Upsilon_{xy}^{\text{inter(C)}} = \frac{\alpha g\mu_B e}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\sin^2 k_x \cos k_y}{|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|^2} \left[-I_{41}(\mathbf{k}) + I_{32}(\mathbf{k}) \right] \left[T_{\mathbf{k}-}^2 + T_{\mathbf{k}+}^2 - 1 \right] \quad (128)$$

$$\Upsilon_{xy}^{\text{inter(NC)}} = \frac{\alpha g\mu_B e}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\sin^2 k_x \cos k_y}{|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|^2} \left[-I_{21}(\mathbf{k}) + I_{43}(\mathbf{k}) \right] \left[T_{\mathbf{k}-}^2 - T_{\mathbf{k}+}^2 \right] \quad (129)$$

と記述される。また、 Υ_{yx} は

$$\Upsilon_{yx} = \Upsilon_{yx}^{\text{intra}} + \Upsilon_{yx}^{\text{inter(C)}} + \Upsilon_{yx}^{\text{inter(NC)}} \quad (130)$$

$$\begin{aligned} \Upsilon_{yx}^{\text{intra}} = -\frac{g\mu_B e}{2N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\sin k_x}{|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|} \left[\left(\frac{\partial E_{\mathbf{k}1}}{\partial k_x} \right) I_{11}(\mathbf{k}) - \left(\frac{\partial E_{\mathbf{k}2}}{\partial k_x} \right) I_{22}(\mathbf{k}) \right. \\ \left. + \left(\frac{\partial E_{\mathbf{k}3}}{\partial k_x} \right) I_{33}(\mathbf{k}) - \left(\frac{\partial E_{\mathbf{k}4}}{\partial k_x} \right) I_{44}(\mathbf{k}) \right], \end{aligned} \quad (131)$$

$$\Upsilon_{yx}^{\text{inter(C)}} = -\frac{\alpha g\mu_B e}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\cos k_x \sin^2 k_y}{|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|^2} \left[-I_{41}(\mathbf{k}) + I_{32}(\mathbf{k}) \right] \left[T_{\mathbf{k}-}^2 + T_{\mathbf{k}+}^2 - 1 \right] \quad (132)$$

$$\Upsilon_{yx}^{\text{inter(NC)}} = -\frac{\alpha g\mu_B e}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\cos k_x \sin^2 k_y}{|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|^2} \left[-I_{21}(\mathbf{k}) + I_{43}(\mathbf{k}) \right] \left[T_{\mathbf{k}-}^2 - T_{\mathbf{k}+}^2 \right] \quad (133)$$

と書ける。ここで、 $T_{\mathbf{k}\pm}$ は式 (48) で定義されており、 $I_{ab}(\mathbf{k})$ は

$$I_{ab}(\mathbf{k}) = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\varepsilon}{\pi} \{-f'(\varepsilon)\} \text{Im}G_{\mathbf{k}a}^{\text{R}}(\varepsilon) \text{Im}G_{\mathbf{k}b}^{\text{R}}(\varepsilon) \quad (134)$$

として導入される。ここで、 $f'(E_{\mathbf{k}a})$ はフェルミ分布関数の一階微分である。

次に、バンド内の寄与に対して準粒子ダンピング γ を導入する。ここでは簡単化のために、 γ は運動量とバンドに依存しないと仮定する。その場合、磁気電気係数のバンド内からの寄与 $\Upsilon_{xy}^{\text{intra}}$ [式 (127)] と $\Upsilon_{yx}^{\text{intra}}$ [式 (131)] は

$$\begin{aligned} \Upsilon_{xy}^{\text{intra}} = \frac{g\mu_B e}{4\gamma N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\sin k_y}{|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|} \left[\left(\frac{\partial E_{\mathbf{k}1}}{\partial k_y} \right) \{-f'(E_{\mathbf{k}1})\} - \left(\frac{\partial E_{\mathbf{k}2}}{\partial k_y} \right) \{-f'(E_{\mathbf{k}2})\} \right. \\ \left. + \left(\frac{\partial E_{\mathbf{k}3}}{\partial k_y} \right) \{-f'(E_{\mathbf{k}3})\} - \left(\frac{\partial E_{\mathbf{k}4}}{\partial k_y} \right) \{-f'(E_{\mathbf{k}4})\} \right] \end{aligned} \quad (135)$$

$$\begin{aligned} \Upsilon_{yx}^{\text{intra}} = -\frac{g\mu_B e}{4\gamma N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\sin k_x}{|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|} \left[\left(\frac{\partial E_{\mathbf{k}1}}{\partial k_x} \right) \{-f'(E_{\mathbf{k}1})\} - \left(\frac{\partial E_{\mathbf{k}2}}{\partial k_x} \right) \{-f'(E_{\mathbf{k}2})\} \right. \\ \left. + \left(\frac{\partial E_{\mathbf{k}3}}{\partial k_x} \right) \{-f'(E_{\mathbf{k}3})\} - \left(\frac{\partial E_{\mathbf{k}4}}{\partial k_x} \right) \{-f'(E_{\mathbf{k}4})\} \right] \end{aligned} \quad (136)$$

となる。

ここで、バンド間からの寄与に関して記述する。バンド間散乱の効果は非常に小さいと考えられるため、バンド間散乱に対する準粒子ダンピングはゼロの極限を取ると仮定する。この場合、 $-\text{Im}G_{\mathbf{k}a}^R(\varepsilon)/\pi = \delta(\varepsilon - E_{\mathbf{k}a})$ の関係が満たされる。したがって、 $a \neq b$ での $I_{ab}(\mathbf{k})$ [式 (134)] は

$$I_{ab}(\mathbf{k}) = \pi\{-f'(E_{\mathbf{k}a})\} \delta(E_{\mathbf{k}a} - E_{\mathbf{k}b}) \quad (137)$$

となる。この表式を用いて、磁気電気係数に対するバンド間からの寄与 $\Upsilon_{xy}^{\text{inter}}$ [式 (128)-(129)] と $\Upsilon_{yx}^{\text{inter}}$ [式 (132)-(133)] を計算する。

ここから正方晶 ($\delta t_1 = 0$) における磁気電気効果の結果を示す。図 39 に磁気電気係数 Υ_{xy} の化学ポテンシャル依存性を示す。磁気電気効果は空間反転対称性が破れた場合に生じるために、通常状態では Υ_{xy} はゼロとなる。これは解析式からも確認できる。通常状態のエネルギー分散は 2 重縮退している ($E_{\mathbf{k}1} = E_{\mathbf{k}2}$, $E_{\mathbf{k}3} = E_{\mathbf{k}4}$) ため、式 (128) と (135) から $\Upsilon_{xy}^{\text{inter(C)}} = \Upsilon_{xy}^{\text{intra}} = 0$ が得られる。さらに、 $T_{\mathbf{k}+} = T_{\mathbf{k}-}$ [式 (48)] となるため、式 (129) から $\Upsilon_{xy}^{\text{inter(D2d)}} = 0$ となる。したがって、通常状態では $\Upsilon_{xy} = 0$ となり磁気電気効果は生じない。対して、電気八極子秩序状態は空間反転対称性を自発的に破るため、磁気電気係数 Υ_{xy} が有限となる。 Υ_{xy} は主にバンド内からの寄与 $\Upsilon_{xy}^{\text{intra}}$ で与えられる $|\Upsilon_{xy}^{\text{intra}}| \gg |\Upsilon_{xy}^{\text{inter(C)}} + \Upsilon_{xy}^{\text{inter(NC)}}|$ 。このことは、磁気電気効果が電場によるフェルミ面の変化により誘起されることを表している。バンド内における準粒子ダンピングを大きくした場合 $\gamma = 0.1$ でも、 $\Upsilon_{xy}^{\text{intra}}$ が Υ_{xy} に対して主な寄与となる。

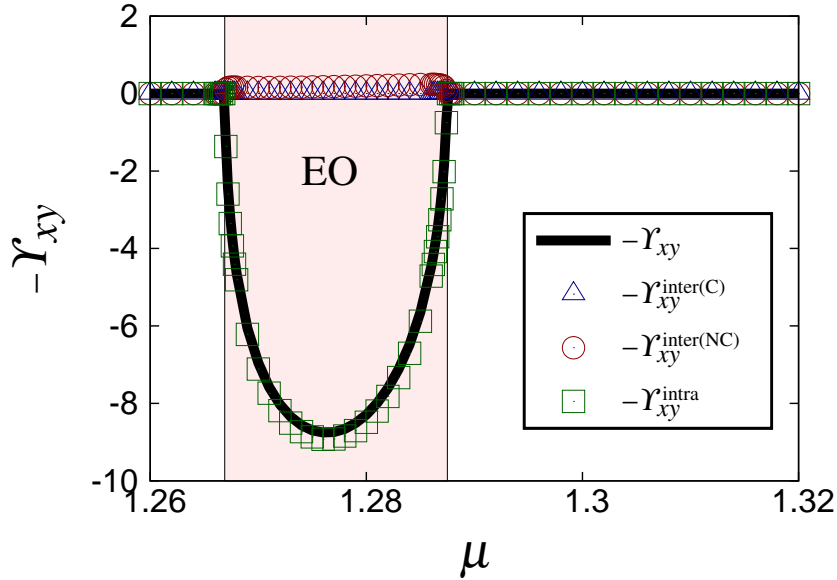


図 39 磁気電気係数 Υ_{xy} の化学ポテンシャル依存性。 $g_1 = 0.45$, $g_2 = -0.05$, $\alpha = 0.35$, $T = 0.01$, $\gamma = 1.0 \times 10^{-3}$ のパラメーターを用いている。黒実線が $-\Upsilon_{xy}$ 、青三角が $-\Upsilon_{xy}^{\text{inter(C)}}$ 、赤丸が $-\Upsilon_{xy}^{\text{inter(NC)}}$ 、緑四角が $-\Upsilon_{xy}^{\text{intra}}$ を示している。赤背景が電気八極子秩序状態が安定となる領域である。

図 40 は電気八極子秩序状態における磁気電気係数 Υ_{xy} と Υ_{yx} の温度依存性を表している。電

電気八極子秩序状態では点群 D_{2d} により特徴付けられるスピン構造が現れるため、磁気電気係数は $\Upsilon_{xy} = \Upsilon_{yx}$ となる。この結果は、Rashba 系の場合 $\Upsilon_{xy} = -\Upsilon_{yx}$ とは異なっている。また温度を低下させると、磁気電気係数の大きさは $T \simeq 0.06$ で緩やかなピークを取り減少する。磁気電気係数は主にバンド内からの寄与 $\Upsilon_{\mu\nu}^{\text{intra}}$ により決定されるため、フェルミ面の温度依存性が磁気電気係数の温度依存性に大きく影響する。

ここで、解析式を用いて磁気電気係数の関係性を調べてみる。 $x \leftrightarrow y$ とすると、エネルギー固有値は $(E_{k_1}, E_{k_2}, E_{k_3}, E_{k_4}) \rightarrow (E_{k_2}, E_{k_1}, E_{k_4}, E_{k_3})$ と変換される。そのため、式 (127) と (131) からバンド内からの寄与は $\Upsilon_{xy}^{\text{intra}} = \Upsilon_{yx}^{\text{intra}}$ となる。同様に、式 (128)、(132)、(129)、(133) を用いることでバンド間からの寄与は $\Upsilon_{xy}^{\text{inter(C)}} = \Upsilon_{yx}^{\text{inter(C)}}$ と $\Upsilon_{xy}^{\text{inter(NC)}} = \Upsilon_{yx}^{\text{inter(NC)}}$ となる。以上より、電気八極子秩序状態における磁気電気係数は $\Upsilon_{xy} = \Upsilon_{yx}$ となる。

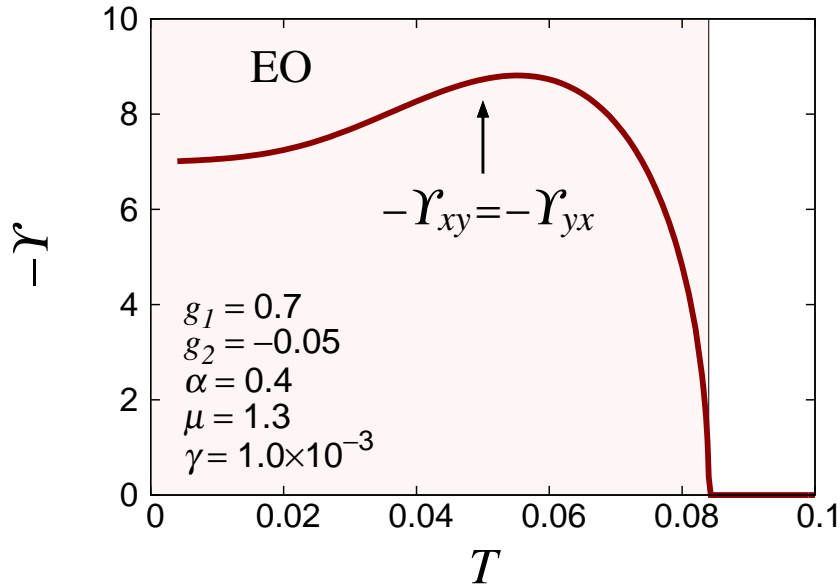


図 40 磁気電気係数 Υ_{xy} と Υ_{yx} の温度依存性。 $g_1 = 0.7$ 、 $g_2 = -0.05$ 、 $\alpha = 0.4$ 、 $\mu = 1.3$ 、 $\gamma = 1.0 \times 10^{-3}$ のパラメーターを用いている。赤線が $-\Upsilon_{xy} = -\Upsilon_{yx}$ を表している。

電気八極子秩序状態における電場誘起磁気モーメントの方向依存性を述べる。付録 C に示しているように、磁気電気係数の対角成分 Υ_{xx} と Υ_{yy} はゼロとなる。したがって、磁気モーメントは磁気電気係数の非対角成分 Υ_{xy} と Υ_{yx} により与えられる。図 41 は電場により誘起される磁気モーメントを示している。電気八極子秩序状態では点群 D_{2d} により特徴付けられるスピン構造が現れるため、このスピン構造を反映した磁気電気効果が生じる。 $\mathbf{E} \parallel [110]$ 方向に電場を印加した場合、電場に対して平行方向に磁気モーメントが誘起される $\mathbf{M} \parallel \mathbf{E}$ 。対して、 $\mathbf{E} \parallel [100]$ または $[010]$ 方向に電場を印加した場合、電場に対して垂直方向に磁気モーメントが誘起される $\mathbf{M} \perp \mathbf{E}$ 。この磁気モーメントの応答は、Rashba 系の場合 ($\mathbf{M} \perp \mathbf{E}$) と鏡映対称性の破れたカイラル結晶の場合 ($\mathbf{M} \parallel \mathbf{E}$) と異なる。

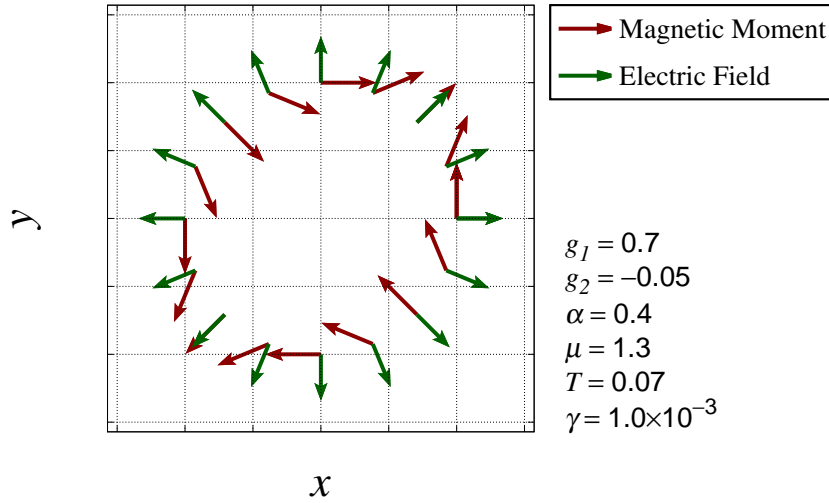


図 41 電気八極子秩序状態における電場誘起磁気モーメントの方向依存性。 $g_1 = 0.7$ 、 $g_2 = -0.05$ 、 $\alpha = 0.4$ 、 $\mu = 1.3$ 、 $T = 0.07$ 、 $\gamma = 1.0 \times 10^{-3}$ のパラメータを用いている。赤矢印が磁気モーメント、緑矢印が印加電場を表す。

3.4 まとめ

この章では、二層 Rashba 系における電気多極子秩序相での磁気電気応答を調べた。スピンホール伝導率は 2 つのバンド間からの寄与があることを示した [式 103]。一つは層依存 Rashba 型 ASOC の効果により与えられる寄与 $\sigma_{\mu\nu}^{\text{SHE(C)}}$ であり、もう一つは空間反転対称性の破れに起因する寄与 $\sigma_{\mu\nu}^{\text{SHE(NC)}}$ である。 $\sigma_{\mu\nu}^{\text{SHE(NC)}}$ により電気八極子秩序状態の相境界でスピンホール伝導率に不連続な飛びが現れ、また、電気八極子秩序相ではスピンホール伝導率の大きさが増大することを示した。対して、電気四極子秩序状態と通常状態ではスピンホール伝導率の振る舞いに大きな違いが無いことが分かった。そのため、スピンホール効果の測定により電気八極子秩序状態と電気四極子秩序状態を区別することができる。また、磁気電気効果が電気八極子秩序状態で生じることを示した。この磁気電気効果は主にバンド内からの寄与 $\Upsilon_{\mu\nu}^{\text{intra}}$ により与えられる。さらに、Rashba 系の場合とは異なる点群 D_{2d} に特徴付けられる磁気モーメントの電場依存性を明らかにした。表 42 にこれらの結果を示す。また、 α 型パイクロア酸化物 $\text{Cd}_2\text{Re}_2\text{O}_7$ で実現している可能性がある電気八極子状態と本章で考慮した電気八極子状態は同じ点群 D_{2d} に属する。そのため、本章で示した磁気電気応答が $\text{Cd}_2\text{Re}_2\text{O}_7$ の電気八極子秩序状態に対して更なる実験的プローブとなる可能性がある。

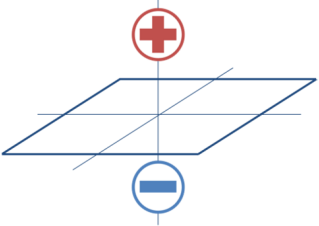
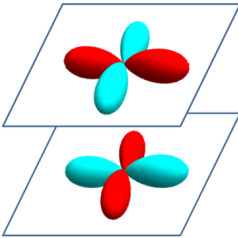
	電気双極子秩序相	電気八極子秩序相
	 <p>基底関数：z</p>	 <p>基底関数：$z(x^2 - y^2)$</p>
スピン構造	$-k_y \hat{x} + k_x \hat{y}$	$k_y \hat{x} + k_x \hat{y}$
スピホール伝導率	$\sigma_{xy}^{\text{SHE}} = -\sigma_{yx}^{\text{SHE}}$	$\sigma_{xy}^{\text{SHE}} = -\sigma_{yx}^{\text{SHE}}$
磁気電気係数	$Y_{xy} = -Y_{yx}$	$Y_{xy} = Y_{yx}$

図 42 磁気電気応答のまとめ。電気八極子秩序状態におけるスピン構造、スピホール伝導率、磁気電気係数を示している。Rashba 系の場合と比較するために、点群 C_{4v} に属する電気双極子秩序状態の場合も記載してある。

4 銅酸化物高温超伝導体 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ における電気八極子秩序状態の実現可能性

4.1 導入

近年、磁気トルク測定により、二層系銅酸化物高温超伝導体 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ (YBCO) の擬ギャップ状態への変化が電子ネマティック相への相転移であることが明らかにされた [98]。YBCO の結晶構造は a 軸と b 軸が非等価な直方晶に属するため、この相転移が電子系による回転対称性の破れに起因している可能性は低いと考えられる。実際、結晶構造由来の弱いネマティシティが報告されている [99]。また、光学的測定による方向二色性 [100] や第 2 高周波応答 [101] の観測から、擬ギャップ相では電子系による空間反転対称性の破れが生じている可能性がある。そこで、本章では前章で用いた二層 Rashba モデルを YBCO に適応することで、擬ギャップ相における電気八極子状態の実現可能性を調べる。

本章の構成は以下のようになる。初めに、簡単な二層系銅酸化物高温超伝導 YBCO に関するレビューを行う。そのあとに計算結果を示す。まず、電気八極子状態を表す秩序変数とネマティシティを示す。この計算結果により、電気八極子秩序による自発的な空間反転対称性の破れと、相転移近傍におけるネマティシティのキンク的な振る舞いが示される。次に磁気感受率を計算する。その結果、相境界近傍における磁気トルクのキンク的な振る舞いが現れること、さらに電気八極子秩序相で磁気感受率が減少することが示される。これらの計算結果は実験結果とコンシステントである。また、大きな磁気異方性を伴う超伝導体が現れる可能性に関して記述する。最後に磁気電気応答を調べる。

4.2 二層系銅酸化物高温超伝導 YBCO に関するレビュー

4.2.1 銅酸化物高温超伝導体

1986 年、ベドノルツとミュラーにより銅酸化物高温超伝導体が発見された [102]。これら超伝導体の転移温度 T_c は 100K を超える場合もあり、従来のフォノン機構から予想される T_c よりはるかに高い転移温度である (BCS 理論の理論的上限值 $\sim 40\text{K}$)。この超伝導発現機構は強い電子相関が原因であることが示唆されている。なぜなら、電荷移動型モット絶縁体である反強磁性絶縁体に電荷キャリアをドーピングすることにより超伝導が実現するからである。さらに、クーパー対を形成する電子間の相対角運動量がゼロでない実験結果 ($l = 2$) [103, 104] も得られており、強い電子相関に基づいた超伝導発現機構が示唆されている。

4.2.2 銅酸化物高温超伝導体における電子構造

銅酸化物高温超伝導体において電流は CuO_2 面を流れる。 CuO_2 面の電子状態では Cu^{2+} は $(3d)^9$ 、 O^{2-} は $(2p)^6$ の電子配置を取る。 CuO_2 面における Cu 原子の d 軌道電子は、周りに囲ま

れた酸素原子に起因する斜方晶場により縮退が解ける。その結果、Cu の $3d_{x^2-y^2}$ 軌道が最も高いエネルギー準位に位置する。そのため、Cu の $d_{x^2-y^2}$ 軌道に電子が1つ占有された状態となる [図43 参照]。Cu 原子間に O 原子が挟まっているため、電子は O の $2p$ 軌道を通じて Cu の $3d$ 軌道へ飛び移る。

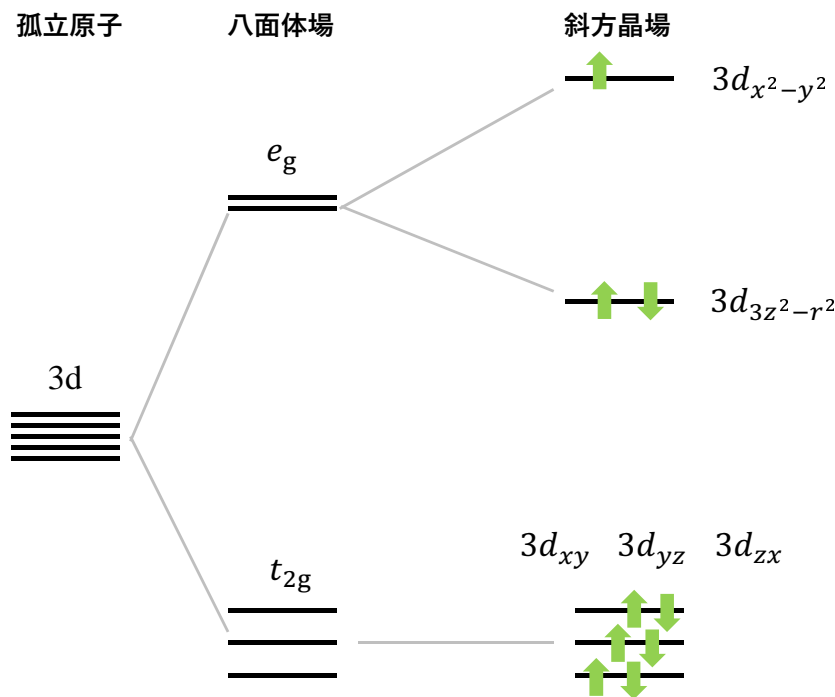


図 43 Cu^{2+} のエネルギー準位。緑矢印がスピンを示す。

$d_{x^2-y^2}$ 電子間のサイト内クーロン相互作用がバンド幅よりも大きい場合、ハーフフィリングでは $d_{x^2-y^2}$ 軌道に電子が二重占有できないためモット絶縁体となる。電荷移動型モット絶縁体のバンドギャップは、電子に占有された O の $2p$ バンドとハバード分裂した Cu の $3d$ バンドの非占有バンド ($3d_{x^2-y^2}$ 軌道上部ハバードバンド) により構成される。占有バンドでは Cu の $d_{x^2-y^2}$ 軌道と O の p_σ 軌道が強く混成するため、ホールドープした場合、Zhang-Rice 一重項 (Cu の $3d^9$ のスピンと O $2p$ 軌道に入ったホールのスピンによる一重項) がバンドを形成する。Zhang-Rice 一重項バンドは O の $2p$ バンドの頂上からバンドギャップ中に押し出される。そのため、Zhang-Rice 一重項バンドを有効的な下部ハバードバンドと見なすことにより、ホールドープした場合の電子構造を Cu サイトのみを考慮した $3d_{x^2-y^2}$ 軌道の単一バンドモデルで記述することができる。

4.2.3 擬ギャップ

擬ギャップとは、高温超伝導体の正常状態で様々なスペクトルに現れるギャップを指す。ホールドープ型高温超伝導体の不足ドープ領域で観測される擬ギャップ状態は角度分解光電子分光 (ARPES) により得られている。擬ギャップ状態では、運動量空間において $\mathbf{k} = (\pi, 0)$ 、 $(0, \pi)$ 近

傍 (d 波超伝導の秩序変数のノード $|k_x| = |k_y|$ から最も離れたアンチノード領域) でギャップが開いており、 $\mathbf{k} = (\pi/2, \pi/2)$ 近傍 (ノード領域) ではギャップがゼロとなる。したがって、ノード方向 $\mathbf{k} = (\pi/2, \pi/2)$ 近傍の領域にフェルミアークが生じる [図 44 参照]。擬ギャップはフェルミ準位 E_F が $\mathbf{k} = (\pi, 0)$ 、 $(0, \pi)$ のヴァン・ホープ特異点よりも下に位置する場合に現れる。

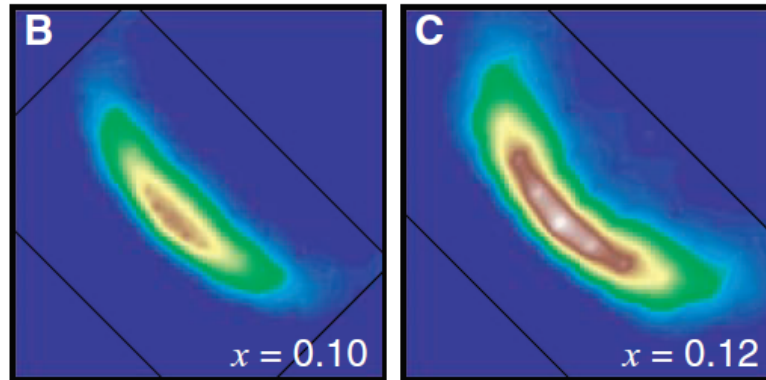


図 44 ARPES により測定された $\text{Ca}_{2-x}\text{Na}_x\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ におけるフェルミアーク (文献 [105] より引用)。

4.2.4 YBCO の結晶構造

ホールドープされた YBCO の結晶構造は直方晶 (点群 D_{4h}) に属しており、空間反転対称性が保存された構造をしている [図 45 参照]。また酸素 O が抜けることで、 b 軸方向に対して CuO チェーンが存在する。したがって、 CuO_2 面に対して a 軸方向と b 軸方向が非等価になり結晶構造の回転対称性は C_2 に低下する。そのため、結晶構造に由来するネマティシティが通常状態で存在することになり、NMR 測定によりこのネマティシティの存在が示唆されている [99]。

4.2.5 磁気トルク測定と相転移

近年、YBCO に対して超高感度磁気測定が行われており、擬ギャップ状態における磁氣的性質が明らかにされた [98]。YBCO での CuO_2 面は a 軸と b 軸で非等価であるため、通常状態における磁氣的性質は異方性をもつ。図 46(a) で示されているように、擬ギャップ状態への転移温度近傍で磁気異方性の温度依存性にキックが現れる。さらに面内-面直磁気感受率異方性の温度依存性も転移温度近傍で変化して、擬ギャップ相で磁気感受率の異方性が減少する振る舞いが見られる [図 46 (b) 参照]。このことは、通常状態から擬ギャップ状態へ二次相転移していることを示しており、擬ギャップ秩序状態では何らかの対称性が破れていることを示唆している。第 2 高周波応答の光学測定 [101] (図 47 参照) やテラヘルツ分光測定 [100] により、擬ギャップ相では空間反転対称性を破る電子状態が実現していることが示唆されている。

図 48 は YBCO における温度-ホールドープ相図を示している。磁気トルク測定 [98]、中性子散乱測定 [109, 110, 111]、ネルンスト効果 [112]、テラヘルツ領域の偏光測定 [100]、超音波測定 [113]、カー効果 [114]、X 線回折 [115, 116] などにより、この相図は得られている。

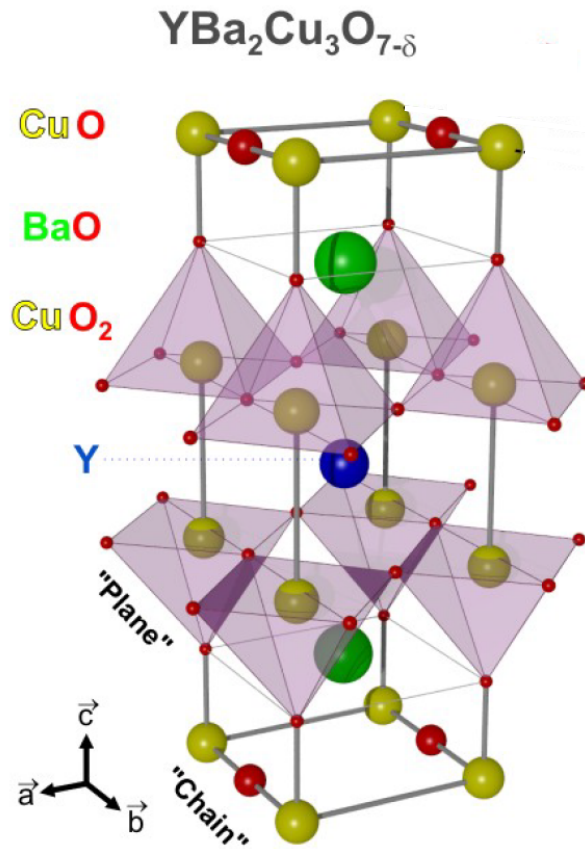


図 45 YBCO の結晶構造。CuO チェーンにより、ユニットセルが直方晶に変形する ($a = 0.382\text{nm}$ 、 $b = 0.389\text{nm}$ 、 $c = 1.167\text{nm}$ [106])。CuO₂ 面で電気伝導が生じる。

4.2.6 核磁気共鳴 (NMR)

核スピン格子緩和率は核磁気緩和時間 T_1 を用いて

$$\frac{1}{T_1} \propto T \sum_{\mathbf{q}} |A(\mathbf{q})|^2 \frac{\text{Im}\chi(\mathbf{q}, \omega_0)}{\omega_0} \quad (138)$$

と表される。ここで、 $A(\mathbf{q})$ は核サイトの形状因子、 $\chi(\mathbf{q}, \omega_0)$ は電子スピンの動的磁化率、 ω_0 は NMR の共鳴周波数である。CuO₂ 面での Cu 核に関する各スピン格子緩和率 $1/^{63}\text{T}_1$ は反強磁性スピン揺らぎに対応する波数 $\mathbf{q} = (\pi, \pi)$ 近傍からの寄与が大きくなる。ナイトシフトは静的スピン磁化率に比例する量である。したがって、通常金属ではナイトシフトはフェルミ準位の状態密度に比例する。YBCO に対して NMR 測定が行われており、擬ギャップ相では核スピン格子緩和率とナイトシフトともに減少する振る舞いが観測されている [図 49 参照]。

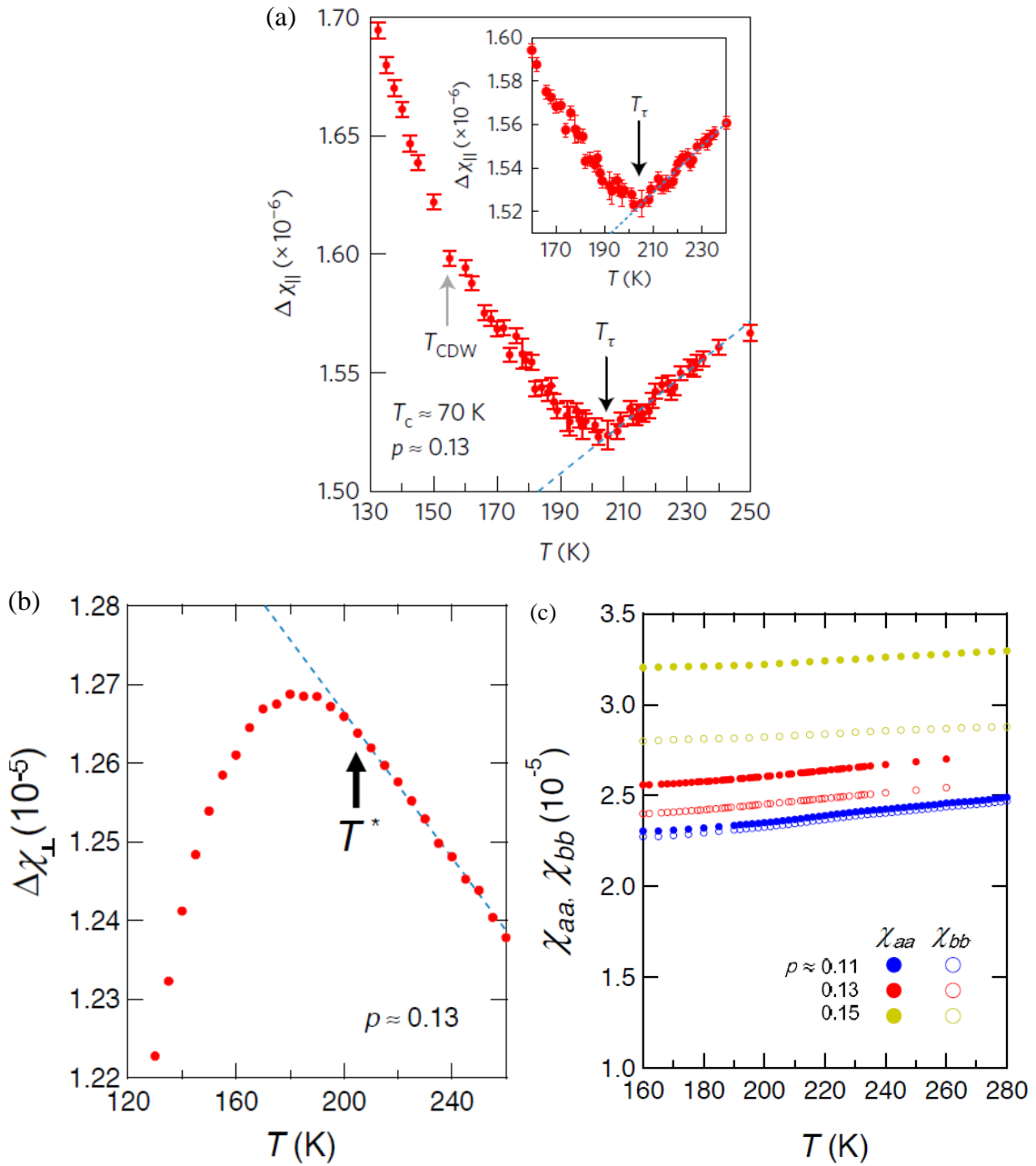


図 46 YBCO における磁気トルク測定 (文献 [98] より引用)。(a) ホールドーブ量 $\rho \approx 0.13$ における面内磁気感受率異方性 $\Delta\chi_{||} = \chi_{aa} - \chi_{bb}$ 。(b) ホールドーブ量 $\rho \approx 0.13$ における面内-面直磁気感受率異方性 $\Delta\chi_{\perp} = \chi_{cc} - \chi_{||}$ 。(c) 面内磁気感受率 χ_{aa} と χ_{bb} の温度依存性。

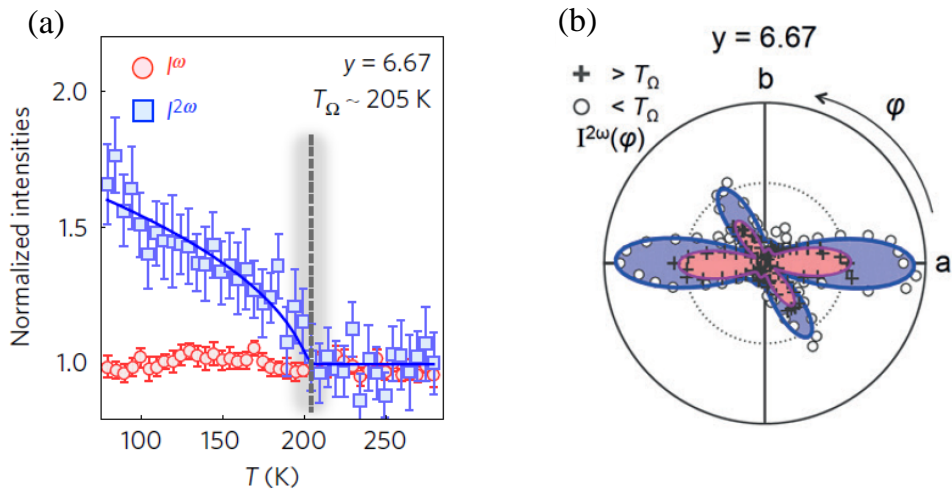


図 47 (a) YBCO における線形応答と第 2 高周波応答 (文献 [101] より引用)。青四角が第 2 高周波応答の強さを示しており、空間反転対称性の破れの度合いを表している。また応答の強さは通常状態の場合により規格化されている。(b) 通常状態と擬ギャップ相における第 2 高周波応答。赤領域が通常状態、青領域が擬ギャップ相の場合を示す。

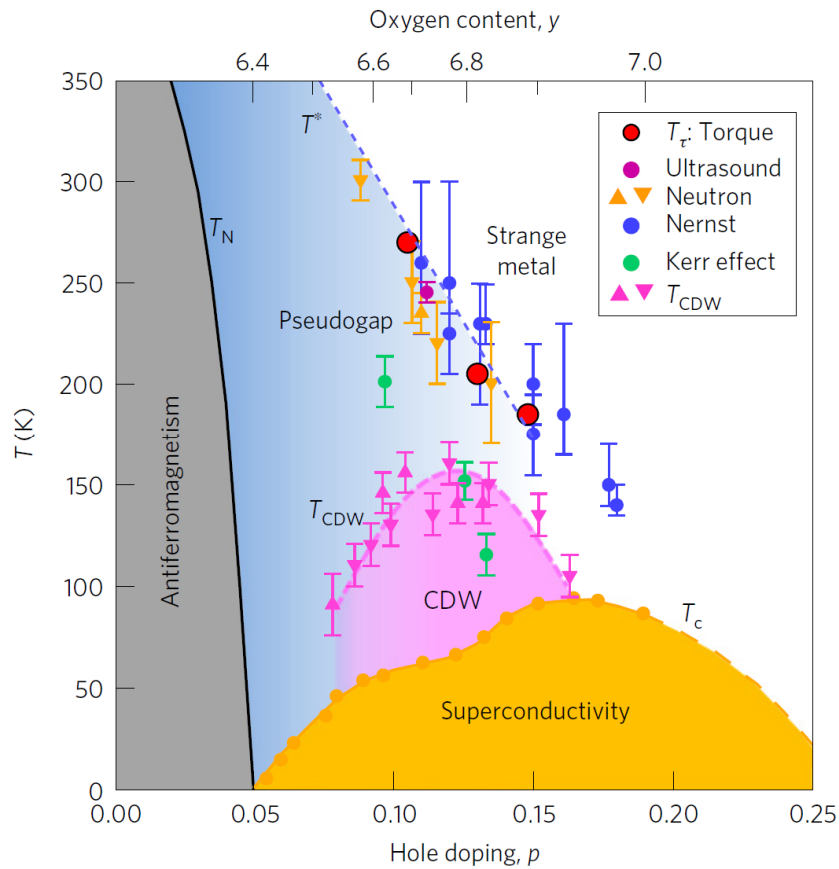


図 48 YBCO における温度-ホールドーピング相図 (文献 [98] より引用)。

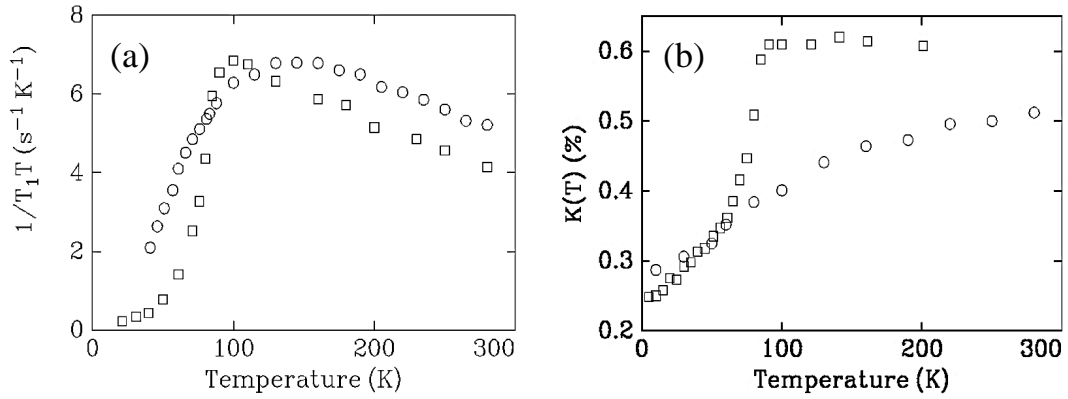


図 49 YBCO における NMR 測定。(a) $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.95}$ (四角) と $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.94}$ (丸) における ^{63}Cu スピン格子緩和率 (文献 [107] より引用)。(b) $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.95}$ (四角) と $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.94}$ (丸) における ^{63}Cu ナイトシフト (文献 [108] より引用)。

4.3 秩序変数とネマティシティ

このセクションから YBCO を対象とする計算結果を示す。モデルは前章同様に二層 Rashba モデルを用いている。また、YBCO の結晶構造は直方晶であり点群 D_{2h} に属するため、 CuO_2 面内の非等価性を最近接ホッピングの異方性として考慮する (式 (35) と (36) において $\delta t_1 \neq 0$)。パラメーターは $(t_1, t_2, t_{\perp}, \delta t_1, \alpha, \mu, g_1, g_2) = (1.0, -0.25, 0.1, 0.05, 0.05, -0.6, 0.9, -0.25)$ を採用する。このパラメーターを用いた場合の通常状態におけるフェルミ面を図 50 に示す。

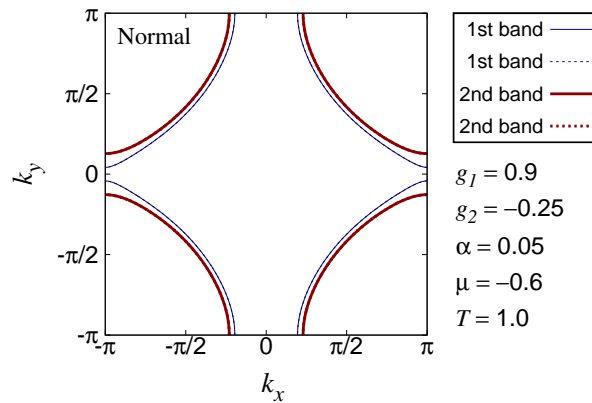


図 50 温度 $T = 1.0$ での通常状態におけるフェルミ面。

ここで、空間反転対称性の破れを伴う電気八極子状態の秩序変数と系のネマティシティの温度依

存性を示す。電気八極子状態の秩序変数 Δ_{EO} と系のネマティシティ Δ_N を

$$\Delta_{EO} = \frac{\Delta_B - \Delta_A}{2} \quad (139)$$

$$\Delta_N = \frac{\Delta_A + \Delta_B}{2} \quad (140)$$

と定義する。また、結晶構造由来のネマティシティを δ とする。図 51 は Δ_{EO} と Δ_N の温度依存性を示している。 $T > 0.1127$ となる高温側では、 $\Delta_{EO} = 0$ の空間反転対称性が保たれた通常状態が安定となる。また、系のネマティシティは結晶構造由来のネマティシティである ($\Delta_N = \delta$)。温度を下げていくと、 $T_c \simeq 0.1127$ で系は通常相から電気八極子秩序相へと二次相転移を生じる。この相転移温度以下では $\Delta_{EO} \neq 0$ となり、空間反転対称性の破れた系となる。また、電気八極子秩序相では系のネマティシティが結晶構造由来のネマティシティに対して非等価となり、相転移温度近傍で系のネマティシティにキックが現れる $\Delta_N \propto T_c - T$ [図 51 の挿図]。この電気八極子状態は点群は C_{2v} に分類される。また各層のネマティシティが異なるため $\Delta_A \neq \Delta_B$ 、各層の電荷が非等価になっている。そのため c 軸方向に誘電性が現れると予想される。

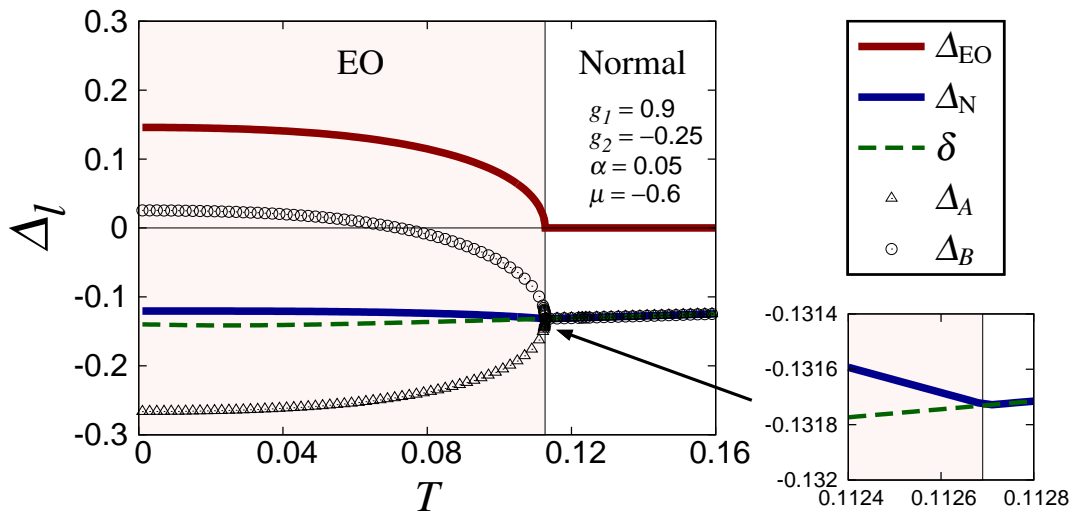


図 51 秩序変数とネマティシティの温度依存性。 l 層のネマティシティ Δ_l は式 (37) で与えられる。電気八極子状態の秩序変数 Δ_{EO} を赤色の実線、系のネマティシティ Δ_N を青色の実線、結晶構造由来のネマティシティ δ を緑色の点線、 A 層のネマティシティ Δ_A を黒色の三角、 B 相のネマティシティ Δ_B を黒色の丸で表している。赤色背景の温度領域が電気八極子秩序相である。転移温度 $T_c = 0.1127$ で二次相転移が生じる。右下挿図は Δ_N と δ の T_c 近傍での拡大図。

4.4 磁気トルクと擬ギャップ

磁気トルク測定により、擬ギャップ状態への相転移温度近傍でキック的な振る舞いが観測されている [図 46 (a)]。そこで、本セクションでは磁気感受率を計算することで磁気トルクの温度依存性

を調べる。磁気感受率を

$$\chi_{\mu\nu}(\mathbf{q}, i\omega_n) = \frac{1}{N} \int_0^{1/T} d\tau \langle T_\tau \{ S_\mu(-\mathbf{q}, \tau) S_\nu(\mathbf{q}, 0) \} \rangle e^{i\omega_n \tau} \quad (141)$$

として導入する。ここで、 $S_\mu(\mathbf{q}) = \sum_{\mathbf{k}} \sum_{s,s',l,l'} \langle sl | \hat{S}_\mu | s'l' \rangle c_{\mathbf{k}+\mathbf{q},s,l}^\dagger c_{\mathbf{k},s',l'}$ はスピン演算子であり、 $\omega_n = 2n\pi T$ はボソンの松原振動数である。また、 μ と ν は方向指標として導入される ($\mu, \nu = x, y$)。空間的一様で静的な場合を考慮すると ($\lim_{\mathbf{q} \rightarrow \mathbf{0}} \lim_{\omega_n \rightarrow 0}$)、磁気感受率は

$$\chi_{\mu\nu} = \chi_{\mu\nu}^{\text{P}} + \chi_{\mu\nu}^{\text{VV}} \quad (142)$$

$$\chi_{\mu\nu}^{\text{P}} = \frac{1}{N} \sum_{E_{\mathbf{k}a}=E_{\mathbf{k}b}} \sum_{\mathbf{k}} [\tilde{S}_\mu(\mathbf{k})]_{ab} [\tilde{S}_\nu(\mathbf{k})]_{ba} \{-f'(E_{\mathbf{k}a})\} \quad (143)$$

$$\chi_{\mu\nu}^{\text{VV}} = -\frac{1}{N} \sum_{E_{\mathbf{k}a} \neq E_{\mathbf{k}b}} \sum_{\mathbf{k}} [\tilde{S}_\mu(\mathbf{k})]_{ab} [\tilde{S}_\nu(\mathbf{k})]_{ba} \frac{f(E_{\mathbf{k}a}) - f(E_{\mathbf{k}b})}{E_{\mathbf{k}a} - E_{\mathbf{k}b}} \quad (144)$$

となる。ここで、 $[\tilde{S}_\mu(\mathbf{k})]_{ab} = \langle a | \tilde{S}_\mu(\mathbf{k}) | b \rangle$ はバンド表示におけるスピン演算子であり、 $f'(E)$ はフェルミ分布関数の一階微分である。スピン感受率 $\chi_{\mu\nu}$ はバンド内からの寄与によるパウリ感受率 $\chi_{\mu\nu}^{\text{P}}$ とバンド間からの寄与によるヴァンヴレック感受率 $\chi_{\mu\nu}^{\text{VV}}$ に分割される。

$[\tilde{S}_\mu(\mathbf{k})]_{ab}$ の各成分を計算することにより、スピン感受率の対角成分 $\chi_{\mu\mu}$ が得られる。まず、通常状態のスピン感受率 $\chi_{\mu\mu} = \chi_{\mu\mu}^{\text{P}} + \chi_{\mu\mu}^{\text{VV}}$ は

$$\chi_{\mu\mu}^{\text{P}} = \frac{g^2 \mu_{\text{B}}^2}{4N} \sum_{\mathbf{k}, a} \frac{\sin^2 k_{\bar{\mu}} + \{T^{(2)}(\mathbf{k})\}^2 \sin^2 k_\mu}{|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|^2} \{-f'(E_{\mathbf{k}a})\} \quad (145)$$

$$\chi_{\mu\mu}^{\text{VV}} = -\frac{g^2 \mu_{\text{B}}^2}{2N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\{T^{(1)}(\mathbf{k})\}^2 \sin^2 k_\mu}{|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|^2} \{F_{14}(\mathbf{k}) + F_{23}(\mathbf{k})\} \quad (146)$$

と記述される。ここで、 $\bar{\mu}$ は μ と異なる方向を表す $\{\mu, \bar{\mu}\} = \{x, y\}$ 。さらに、 $T^{(1)}(\mathbf{k})$ 、 $T^{(2)}(\mathbf{k})$ 、 $F_{ab}(\mathbf{k})$ を

$$T^{(1)}(\mathbf{k}) = T_{\mathbf{k}-} T_{\mathbf{k}+} - \sqrt{1 - T_{\mathbf{k}-}^2} \sqrt{1 - T_{\mathbf{k}+}^2} \quad (147)$$

$$T^{(2)}(\mathbf{k}) = T_{\mathbf{k}-} \sqrt{1 - T_{\mathbf{k}+}^2} + T_{\mathbf{k}+} \sqrt{1 - T_{\mathbf{k}-}^2} \quad (148)$$

$$F_{ab}(\mathbf{k}) = \frac{f(E_{\mathbf{k}a}) - f(E_{\mathbf{k}b})}{E_{\mathbf{k}a} - E_{\mathbf{k}b}} \quad (149)$$

として導入した。一方、電気八極子状態のスピン感受率 $\chi_{\mu\mu} = \chi_{\mu\mu}^{\text{P}} + \chi_{\mu\mu}^{\text{VV}}$ は

$$\chi_{\mu\mu}^{\text{P}} = \frac{g^2 \mu_{\text{B}}^2}{4N} \sum_{\mathbf{k}, a} \frac{\sin^2 k_{\bar{\mu}}}{|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|^2} \{-f'(E_{\mathbf{k}a})\} \quad (150)$$

$$\chi_{\mu\mu}^{\text{VV}} = -\frac{g^2 \mu_{\text{B}}^2}{2N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\sin^2 k_\mu}{|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|^2} \left[\{T^{(1)}(\mathbf{k})\}^2 \{F_{14}(\mathbf{k}) + F_{23}(\mathbf{k})\} + \{T^{(2)}(\mathbf{k})\}^2 \{F_{12}(\mathbf{k}) + F_{34}(\mathbf{k})\} \right] \quad (151)$$

と書ける。通常状態では空間反転対称性と時間反転対称性が保存されるために、各バンドはクラマース対を形成している ($E_{k1} = E_{k2}$, $E_{k3} = E_{k4}$)。この関係は式 (145) のパウリ感受率の第二項として現れる $\{a, b\} = \{1, 2\}$, $\{3, 4\}$ 。一方、電気八極子状態ではこのスピン縮退は解けるので ($E_{k1} \neq E_{k2}$, $E_{k3} \neq E_{k4}$)、式 (151) のヴァンブレック感受率の第二項として寄与することになる。

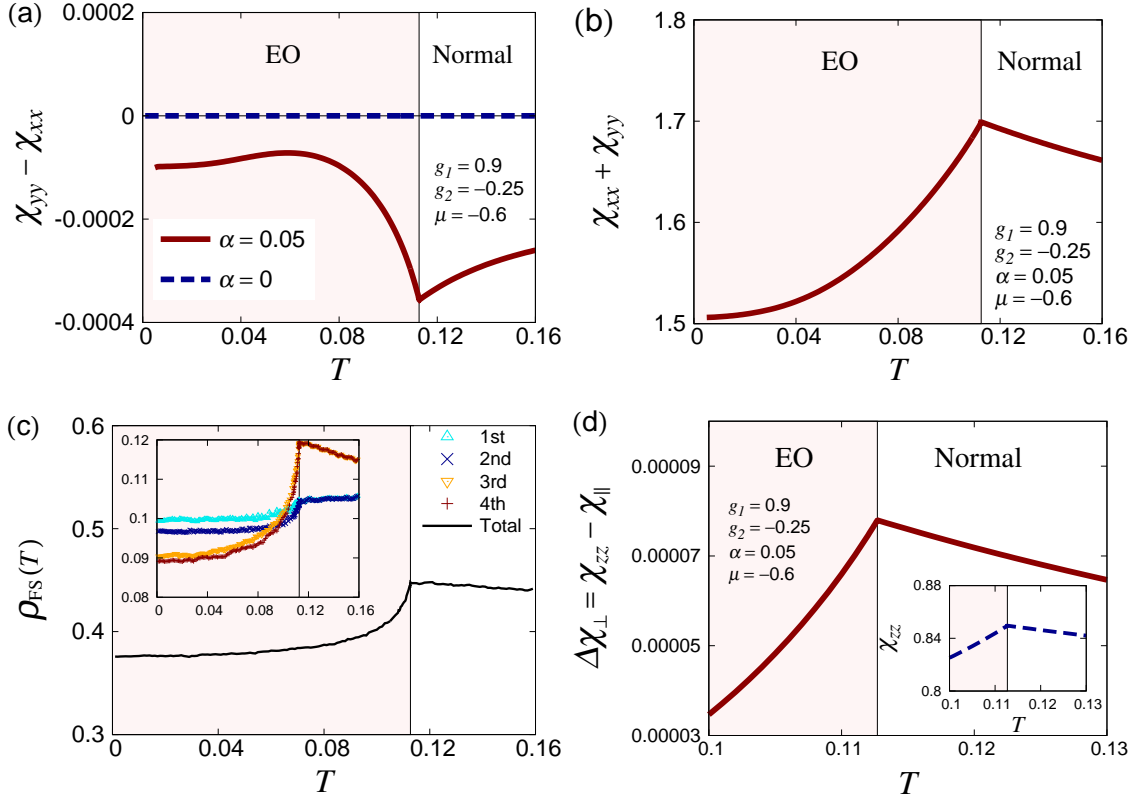


図 52 (a) 磁気トルク $\chi_{xx} - \chi_{yy}$ の温度依存性。赤実線が $\alpha = 0.05$ 、青点線が $\alpha = 0$ の場合を示している。 $\alpha = 0$ の場合、 $T \simeq 0.113$ で相転移している。(b) 磁気感受率 $\chi_{xx} + \chi_{yy}$ の温度依存性。(c) フェルミ準位における状態密度の温度依存性。黒実線が全体の状態密度を示している。左上挿図は各エネルギー固有状態における状態密度を表している。(d) 面直-面内磁気感受率異方性に対する温度依存性。挿図は面直磁気感受率 χ_{zz} (青点線) を示している。

図 52 (a) は磁気トルク $\chi_{xx} - \chi_{yy}$ の温度依存性を示している。まず、層依存の Rashba 型 ASOC が存在する場合を考える ($\alpha = 0.05$)。この場合、全温度領域で磁気トルクが有限値をとる。高温側の通常状態において、温度を低下させると磁気トルクの大きさは増加する。さらに温度を下げ、電気八極子秩序相になると磁気トルクの大きさは減少していく。この磁気トルクの減少は $T \simeq 0.06$ まで見られる。さらに、相転移温度 $T_c \simeq 0.1127$ 近傍において磁気トルクの温度依存性にキックが現れる。磁気トルクは系のネマティシティに比例すると仮定すると $\chi_{yy} - \chi_{xx} \propto \Delta_N$ 、相転移温度近傍での磁気トルクは $\{\chi_{yy}(T) - \chi_{xx}(T)\} - \{\chi_{yy}(T_c) - \chi_{xx}(T_c)\} \propto T_c - T$ となる。この磁気トルクのキック的な振る舞いは実験結果とコンシステントであり [98]、磁気トルクのキン

クは図 51 で示した系のネマティシティのキルクを反映している。

面内磁気感受率 $\chi_{xx} + \chi_{yy}$ の温度依存性を図 52 (b) に示す。通常状態では温度低下に伴い磁気感受率は増加する。対して、電気八極子秩序相では温度低下に伴い磁気感受率は減少する。このように、電気八極子秩序相における磁気感受率の温度依存性に擬ギャップ的な振る舞いが見られる。この磁気感受率の温度依存性は NMR 測定におけるナイトシフト [108]、 ^{63}Cu 核スピン格子緩和率 [107] の結果と一致している。図 52 (c) はフェルミ準位における状態密度 ρ_{FS} の温度依存性を示している。状態密度の結果からも、電気八極子秩序相では ρ_{FS} が減少するような擬ギャップ的な振る舞いが見られる。

図 52 (d) は面直-面内磁気感受率の異方性に対する温度依存性を示している。ここで面内磁気感受率を $\chi_{\parallel} = (\chi_{xx} + \chi_{yy})/2$ として、面直-面内磁気感受率の異方性 $\Delta\chi_{\perp}$ を

$$\Delta\chi_{\perp} = \chi_{zz} - \chi_{\parallel} \quad (152)$$

とする。付録 D に式 (152) を示す。通常状態では $\Delta\chi_{\perp}$ は温度低下に伴い増加する。一方、電気八極子秩序相では $\Delta\chi_{\perp}$ は温度低下に伴い減少する。この面直-面内磁気感受率の異方性に対する温度依存性は実験結果と一致している [98]。

図 52 (a) で示されているように、層依存の Rashba 型 ASOC が存在しない場合、磁気トルクはゼロとなる。この振る舞いを磁気感受率の解析式を用いて調べてみる。 $\alpha = 0$ の場合、通常状態・電気八極子状態ともに $T^{(1)}(\mathbf{k}) = T_{\mathbf{k}-} - T_{\mathbf{k}+} - \sqrt{1 - T_{\mathbf{k}-}^2} \sqrt{1 - T_{\mathbf{k}+}^2} = 0$ となる。式 (146) より、通常状態におけるヴァンヴレック感受率は $\chi_{\mu\mu}^{\text{VV}} = 0$ となる。また、式 (151) で表される電気八極子秩序状態におけるヴァンヴレック感受率の第一項はゼロになる。次に、 $\alpha = 0$ では電気八極子秩序状態におけるエネルギー分散は $E_{\mathbf{k}1} = E_{\mathbf{k}2}$ と $E_{\mathbf{k}3} = E_{\mathbf{k}4}$ となる。したがって、式 (151) の第二項はパウリ感受率となる。その結果、通常状態・電気八極子秩序状態ともにパウリ感受率は

$$\chi_{\mu\mu}^{\text{P}} = \chi_{\mu\mu}^{\text{P(I)}} + \chi_{\mu\mu}^{\text{P(II)}} \quad (153)$$

$$\chi_{\mu\mu}^{\text{P(I)}} = \frac{g^2 \mu_{\text{B}}^2}{4N} \sum_{\mathbf{k}} \sum_{a=1}^4 \frac{\sin^2 k_{\bar{\mu}}}{|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|^2} \{-f'(E_{\mathbf{k}a})\} \quad (154)$$

$$\begin{aligned} \chi_{\mu\mu}^{\text{P(II)}} &= \frac{g^2 \mu_{\text{B}}^2}{4N} \sum_{\mathbf{k}} \sum_{a=1}^4 \frac{\sin^2 k_{\mu}}{|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|^2} \{-f'(E_{\mathbf{k}a})\} \\ &\times \frac{2t_{\perp} \sqrt{t_{\perp}^2 + (\Delta_{\mathbf{k}}^d)^2}}{\sqrt{t_{\perp}^2 + (\Delta_{\mathbf{k}-}^d)^2} \sqrt{t_{\perp}^2 + (\Delta_{\mathbf{k}+}^d)^2}} \end{aligned} \quad (155)$$

と書ける。ここで、 $\Delta_{\mathbf{k}}^d$ と $\Delta_{\mathbf{k}\pm}^d$ を

$$\Delta_{\mathbf{k}}^d = d_{\mathbf{k}} \frac{\Delta_A - \Delta_B}{2} \quad (156)$$

$$\Delta_{\mathbf{k}\pm}^d = \Delta_{\mathbf{k}}^d \pm \sqrt{t_{\perp}^2 + (\Delta_{\mathbf{k}}^d)^2} \quad (157)$$

として導入する。通常状態では $\Delta_A = \Delta_B = \delta$ となるので、式 (156) と (157) は $\Delta_{\mathbf{k}}^d = 0$ と $\Delta_{\mathbf{k}\pm}^d = \pm t_{\perp}$ になる。一方、電気八極子秩序状態では $\Delta_A \neq -\Delta_B$ となるので、式 (156) と (157) は $\Delta_{\mathbf{k}}^d = d_{\mathbf{k}}\Delta$ と $\Delta_{\mathbf{k}\pm}^d = d_{\mathbf{k}}\Delta \pm \sqrt{t_{\perp}^2 + (d_{\mathbf{k}}\Delta)^2}$ になる。ここで、 $\Delta = (\Delta_A - \Delta_B)/2$ である。その結果、式 (155) の係数は通常状態・電気八極子秩序状態ともに

$$\frac{2t_{\perp}\sqrt{t_{\perp}^2 + (\Delta_{\mathbf{k}}^d)^2}}{\sqrt{t_{\perp}^2 + (\Delta_{\mathbf{k}-}^d)^2}\sqrt{t_{\perp}^2 + (\Delta_{\mathbf{k}+}^d)^2}} = 1 \quad (158)$$

となる。したがって、 $\alpha = 0$ のとき通常状態と電気八極子秩序状態ともにパウリ感受率は

$$\chi_{\mu\mu}^P = \frac{g^2\mu_B^2}{4N} \sum_{\mathbf{k}} \sum_{a=1}^4 \{-f'(E_{\mathbf{k}a})\} \quad (159)$$

となり、ヴァンヴレック感受率は $\chi_{\mu\mu}^{VV} = 0$ となる。そのため、層依存 Rashba 型 ASOC が存在しない場合、等方的な磁気感受率が得られる $\chi_{yy} - \chi_{xx} = 0$ 。このことは磁気トルクのキック的な振る舞いに対して、層依存 Rashba 型 ASOC が重要な役割を担っていることを示している。

4.5 超伝導状態における巨大な磁気異方性

図 53 は磁気感受率の異方性 $\chi_{yy} - \chi_{xx}$ とヴァンヴレック感受率の異方性 $\chi_{yy}^{VV} - \chi_{xx}^{VV}$ を示している。図 52 (a) で示されているように、 $\chi_{yy} - \chi_{xx}$ は全ての温度領域で有限ではあるがとても小さい。電気八極子秩序相では、ヴァンヴレック感受率の異方性は $(\chi_{yy}^{VV} - \chi_{xx}^{VV})/(\chi_{yy} - \chi_{xx}) \sim 1000$ となり非常に大きくなる。低温領域 ($T \rightarrow 0$) において超伝導状態ではバンド内の電子がクーパー対を形成するために、バンド内からの寄与であるパウリ感受率は消失する。そのため、超伝導状態における磁気感受率はバンド間からの寄与であるヴァンヴレック感受率により与えられる。したがって、図 53 におけるヴァンヴレック感受率の異方性に関する計算結果は YBCO において巨大な磁気異方性をもつ超伝導状態の実現可能性を示している。この巨大な磁気異方性は NMR 測定ナイトシフトで観測できる可能性がある。逆に、もし YBCO において超伝導状態で巨大な磁気異方性が測定されれば、擬ギャップ相では電気八極子状態が実現している可能性が高いと考えられる。

磁気感受率に対するパウリ成分とヴァンヴレック成分の寄与を調べるために、図 54 に χ_{xx} と χ_{yy} とその各成分を示す。まず、通常状態・電気八極子秩序状態ともに磁気感受率 χ_{xx} と χ_{yy} は同じような振る舞いを見せる。さらに、通常状態では χ_{xx} と χ_{yy} のパウリ感受率とヴァンヴレック感受率の大小関係はともに同じである $\chi_{\mu\mu}^P > \chi_{\mu\mu}^{VV}$ 。また、通常状態でクラマース対を形成していたバンドのスピンの縮退が電気八極子秩序状態で解けることにより、ヴァンヴレック (パウリ) 感受率が増加 (減少) する。そのため電気八極子秩序相では $\chi_{xx}^P < \chi_{xx}^{VV}$ 、 $\chi_{yy}^P > \chi_{yy}^{VV}$ となる。その結果、電気八極子秩序相では巨大なヴァンヴレック感受率の異方性が現れる。

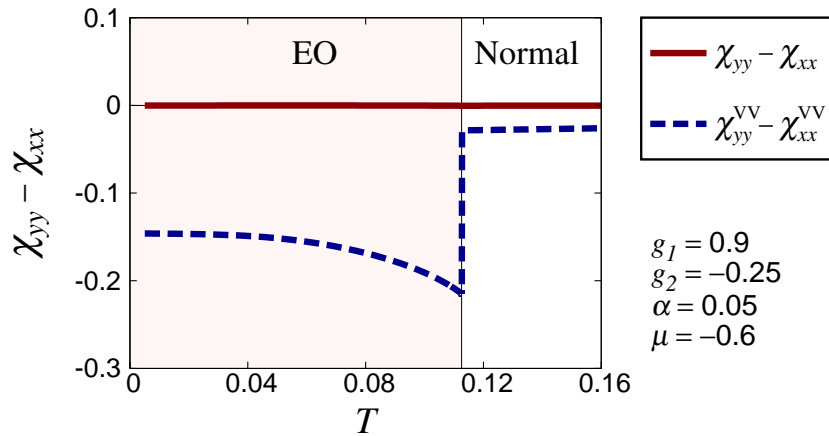


図 53 磁気感受率異方性の温度依存性。赤実線が磁気感受率異方性 $\chi_{yy} - \chi_{xx}$ [図 52 (a) の磁気トルク]、青点線が磁気感受率異方性のヴァンヴレック成分 $\chi_{yy}^{VV} - \chi_{xx}^{VV}$ を表す。

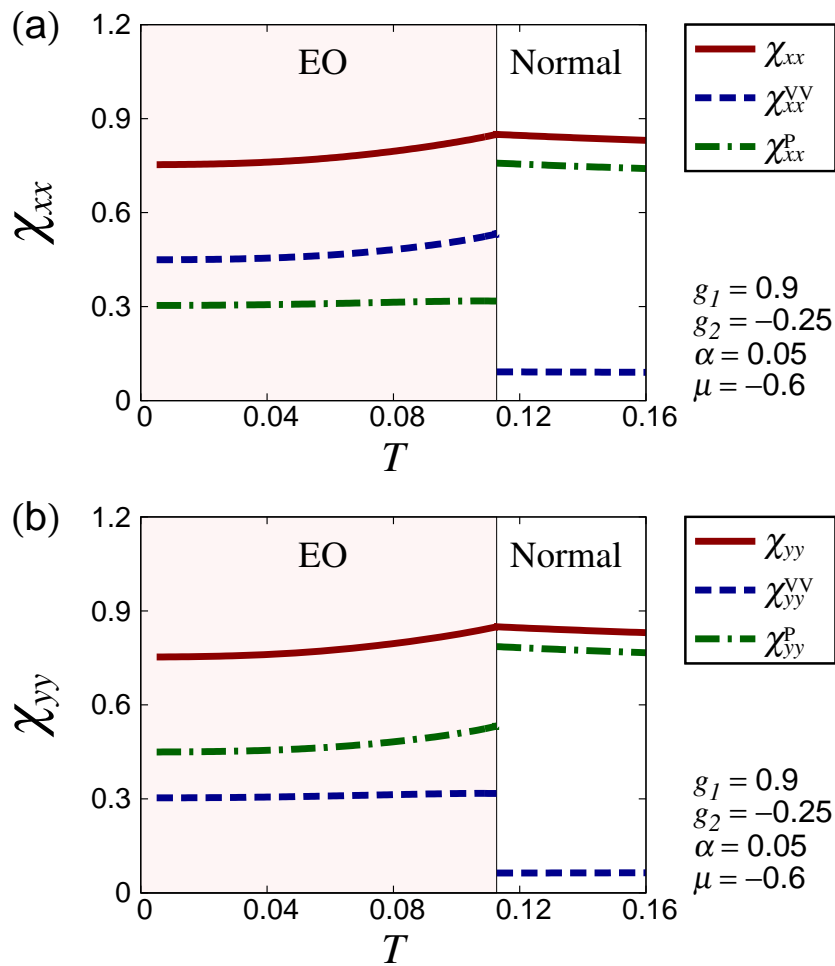


図 54 磁気感受率 (a) χ_{xx} と (b) χ_{yy} の温度依存性。赤実線が $\chi_{\mu\mu}$ 、青点線が $\chi_{\mu\mu}^{VV}$ 、緑ドット線が $\chi_{\mu\mu}^P$ を示している。

4.6 磁気電気応答

このセクションでは、前章で用いた磁気電気応答の手法を YBCO に適応する。YBCO の結晶構造は直方晶であり、その対称性は点群 D_{2h} に属する。電気八極子秩序状態がこの結晶構造で現れた場合、系の対称性は点群 C_{2v} に低下する。そのため、前章で調べた正方晶での電気八極子秩序状態における磁気電気応答とは異なる結果が得られると期待できる。

4.6.1 スピンホール効果

このセクションではスピンホール効果を調べる。図 55 (a) はスピンホール伝導率 σ_{xy}^{SHE} と σ_{yx}^{SHE} の温度依存性を示している。ここでは、これまでの直方晶におけるパラメーターを用いており前方散乱効果の弱結合領域を考慮している。正方晶の場合とは異なり [図 38 参照]、通常状態と電気八極子秩序状態におけるスピンホール伝導率は $\sigma_{xy}^{\text{SHE}} \neq -\sigma_{yx}^{\text{SHE}}$ となる。直方晶における電気八極子秩序状態では C_4 回転対称性が破れている [図 56]。したがって、 x 方向と y 方向の電子構造が非等価であるため、スピンホール伝導率の大きさに異方性が現れる。

次に、図 55 に電場誘起スピン流の方向依存性を示す。 $|\sigma_{xy}^{\text{SHE}}| \neq |\sigma_{yx}^{\text{SHE}}|$ のために、電場を [100] 方向と [010] 方向に印加した場合を除いて、誘起されるスピン流の方向は電場の印加方向に対して垂直ではない。また、誘起されるスピン流の大きさも電場の印加方向に依存する。例えば、電場を x 軸の正の方向に印加した場合にはスピンホール伝導率の大きさは $|\sigma_{yx}^{\text{SHE}}| \simeq 0.1124$ であり、電場を y 軸の正の方向に印加した場合には $|\sigma_{xy}^{\text{SHE}}| \simeq 0.0275$ である。

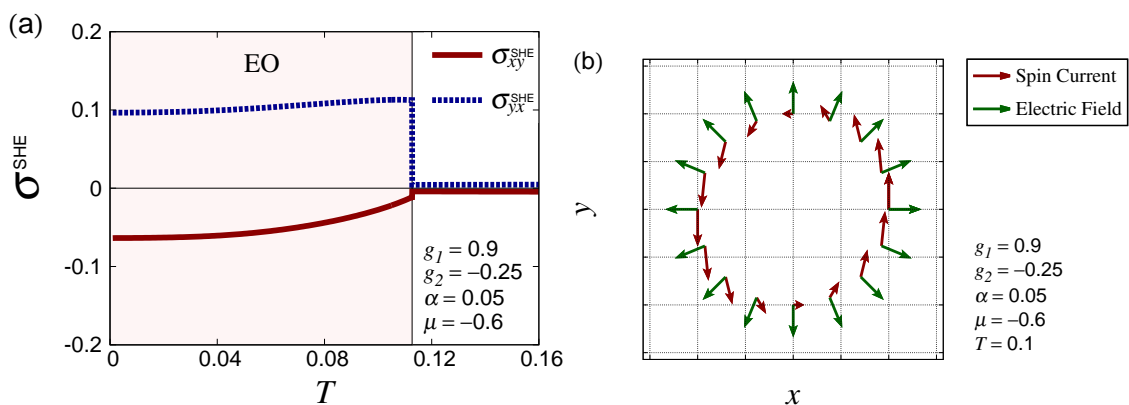


図 55 (a) スピンホール伝導率 σ_{xy}^{SHE} と σ_{yx}^{SHE} の温度依存性。 $g_1 = 0.9$, $g_2 = -0.25$, $\alpha = 0.05$, $\mu = -0.6$ のパラメーターを用いている。赤実線が σ_{xy}^{SHE} 、青点線が σ_{yx}^{SHE} を示している。(b) $T = 0.1$ での電気八極子秩序状態における電場誘起スピン流。赤矢印がスピン流、緑矢印が印加電場を表す。

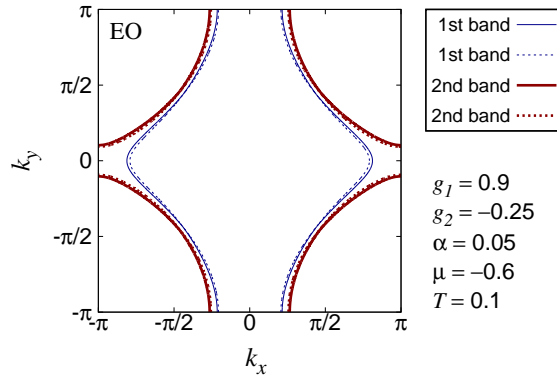


図 56 弱結合領域における電気八極子秩序状態でのフェルミ面。 $g_1 = 0.9$ 、 $g_2 = -0.25$ 、 $\alpha = 0.05$ 、 $\mu = -0.6$ 、 $T = 0.1$ のパラメーターを用いている。1st バンドのフェルミ面に大きな異方性が現れる。

強結合領域におけるスピンホール効果を図 57 に示す。ここで、層内(層間)前方散乱効果の結合定数を $g_1 = 1.0$ ($g_2 = -0.35$) としている。弱結合領域の場合と同じように、通常状態と電気八極子秩序状態 ($T > 0.1$) におけるスピンホール伝導率は $\sigma_{xy}^{\text{SHE}} \neq -\sigma_{yx}^{\text{SHE}}$ となる [図 57 (a)]。 $T \simeq 0.1$ より低温でスピンホール伝導率は $\sigma_{xy}^{\text{SHE}} \simeq \sigma_{yx}^{\text{SHE}}$ となり、 σ_{xy}^{SHE} と σ_{yx}^{SHE} は同じ符号を取る。この温度領域では、電気八極子秩序状態のフェルミ面はほぼ等方的となる [図 58]。この等方的な電子構造が弱結合領域の場合とは異なる電場誘起スピン流の方向依存性を与える。そのスピン流の方向依存性を図 57 (b) に示す。特に [110] 方向に電場を印加した場合、印加方向に対して平行方向にスピン流が誘起される。さらに、スピンホール伝導率が $\sigma_{xy}^{\text{SHE}} \simeq \sigma_{yx}^{\text{SHE}}$ となるため、誘起されるスピン流の大きさは電場の印加方向に依らずほとんど一定である。

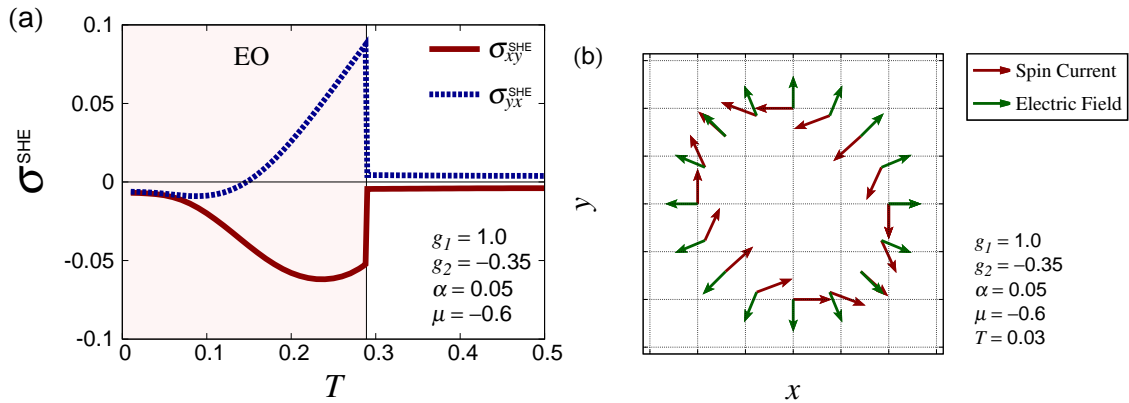


図 57 強結合領域におけるスピンホール効果。 $g_1 = 1.0$ 、 $g_2 = -0.35$ 、 $\alpha = 0.05$ 、 $\mu = -0.6$ のパラメーターを用いている。転移温度は $T \simeq 0.288$ である。(a) スピンホール伝導率 σ_{xy}^{SHE} と σ_{yx}^{SHE} の温度依存性。(b) $T = 0.03$ での電気八極子秩序状態における電場誘起スピン流。

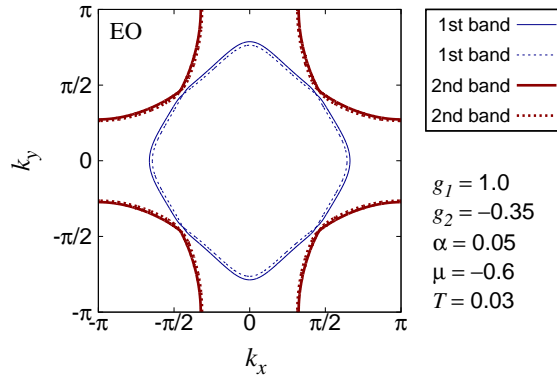


図 58 強結合領域における電気八極子秩序状態でのフェルミ面。 $g_1 = 1.0$ 、 $g_2 = -0.35$ 、 $\alpha = 0.05$ 、 $\mu = -0.6$ 、 $T = 0.03$ のパラメータを用いている。弱結合領域の場合とは異なり、1st バンドのフェルミ面がほとんど等方的となる。

4.6.2 磁気電気効果

このセクションではスピンホール効果の場合と同様に、前方散乱効果の弱結合領域と強結合領域における磁気電気効果を示す。図 59 は弱結合領域における磁気電気効果を表している。図 59 (a) に示しているように、電気八極子秩序相において x 方向と y 方向の電子構造が非等価なので、磁気電気係数は $\Upsilon_{xy} \neq \Upsilon_{yx}$ となる。さらに、 Υ_{xy} と Υ_{yx} は異なる符号を取る。正方晶の場合は磁気電気係数は $\Upsilon_{xy} = \Upsilon_{yx}$ となるため、正方晶の場合とは異なった電場誘起磁気モーメントの方向依存性が現れる。図 59 (b) に電気八極子秩序相における電場誘起磁気モーメントの方向依存性を示す。正方晶の場合とは異なり [図 41 参照]、電場の印加方向に対してほとんど垂直方向に磁気モーメントが誘起される。

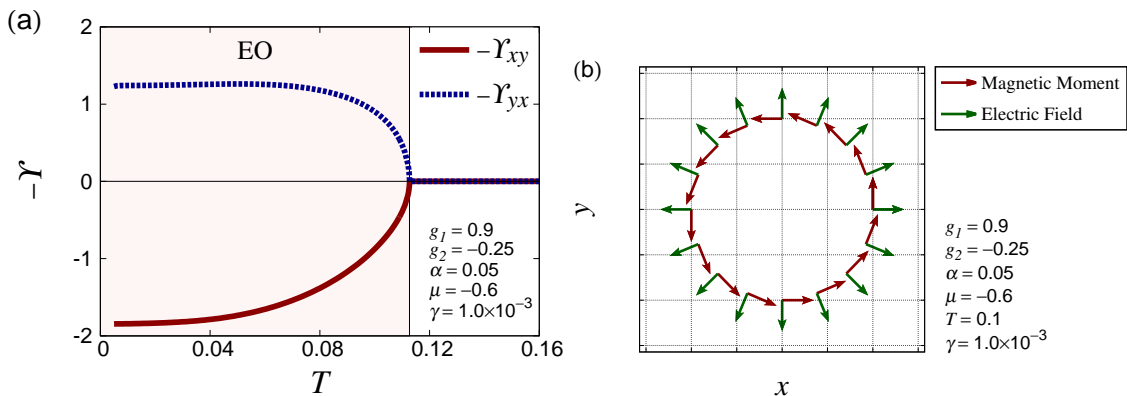


図 59 弱結合領域における磁気電気効果。(a) 磁気電気係数 Υ_{xy} と Υ_{yx} の温度依存性。 $g_1 = 0.9$ 、 $g_2 = -0.25$ 、 $\alpha = 0.05$ 、 $\mu = -0.6$ 、 $\gamma = 1.0 \times 10^{-3}$ のパラメータを用いている。赤実線が $-\Upsilon_{xy}$ 、青点線が $-\Upsilon_{yx}$ を示している。(b) $T = 0.1$ での電気八極子秩序状態における電場誘起磁気モーメント。赤矢印が磁気モーメント、緑矢印が印加電場を表す。

次に、強結合領域における磁気電気効果を示す。弱結合領域の場合とは異なり、磁気電気係数 Υ_{xy} と Υ_{yx} は同じ符号を取る [図 60 (a)]。したがって、電場誘起磁気モーメントの方向依存性は正方晶の場合と同じような振る舞いをする [図 60 (b)]。電気八極子状態は点群 C_{2v} に属しており、点群 C_{4v} と D_{2d} を部分群にもつ。弱結合領域の場合では点群 C_{4v} 型の磁気電気効果が生じており、対して、強結合領域では点群 D_{2d} 型の磁気電気効果が現れている。前方散乱効果の結合定数を変化させることで電気八極子状態に対してクロスオーバーが生じており、各点群に特徴付けられる磁気電気効果が表れている。

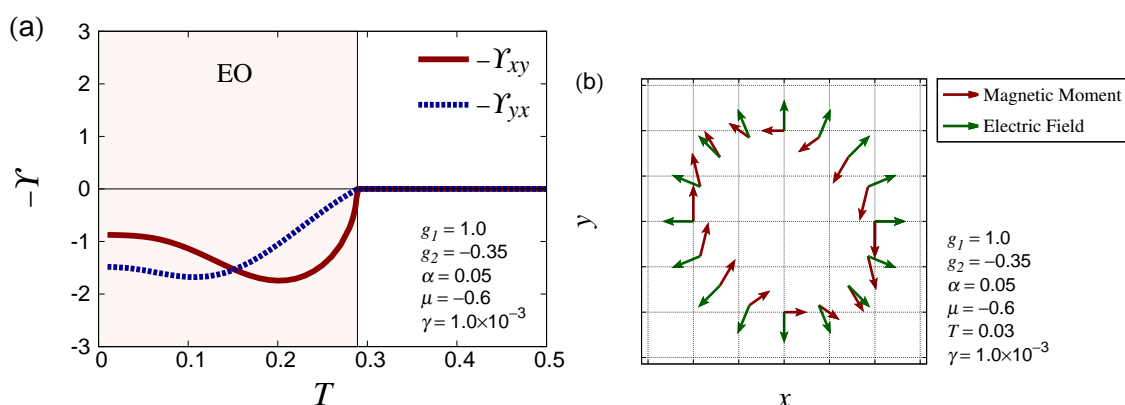


図 60 強結合領域における磁気電気効果。(a) 磁気電気係数 Υ_{xy} と Υ_{yx} の温度依存性。 $g_1 = 1.0$ 、 $g_2 = -0.35$ 、 $\alpha = 0.05$ 、 $\mu = -0.6$ 、 $\gamma = 1.0 \times 10^{-3}$ のパラメーターを用いている。(b) $T = 0.03$ での電気八極子秩序状態における電場誘起磁気モーメント。

4.7 まとめ

この章では、二層系銅酸化物高温超伝導体 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ (YBCO) の擬ギャップ相における電気八極子秩序状態の実現可能性を調べた。YBCO の結晶構造は CuO チェーンにより直方晶なので、結晶構造由来のネマティシティが存在する。温度を下げることにより、自発的な空間反転対称性の破れを伴う電気八極子秩序状態へ二次相転移することを示した。さらに、この相転移に伴い系のネマティシティが変化してキックが現れることが分かった。

相転移温度近傍でのネマティシティのキックを反映して、磁気トルクにキックが現れる。さらに、 CuO_2 面に対する面直-面内磁気感受率の異方性が電気八極子秩序相で減少する。これらの計算結果は、YBCO に対する磁気トルクの測定結果と一致している [98]。また、 CuO_2 面内の磁気感受率とフェルミ準位における状態密度が電気八極子秩序相で減少する結果が得られた。これらの振る舞いは、擬ギャップ相での NMR 測定により得られている実験結果と一致している。

電気八極子秩序相では磁気感受率のヴァンヴレック成分に大きな異方性が現れることを示した。この結果より、超伝導状態では大きな磁気感受率の異方性が現れるため、NMR 測定のナイトシフト等でこの磁気感受率の異方性を観測できる可能性がある。もし、YBCO の超伝導状態において磁気感受率の大きな異方性が測定されれば、擬ギャップ相では電気八極子秩序状態が現れている可

能性がある。

さらに、電気八極子秩序状態における磁気電気応答を調べた。スピンホール効果において、相転移温度ではスピンホール伝導率に不連続な飛びが現れ、電気八極子秩序状態ではスピンホール伝導率の大きさが増大することを示した。さらに、結晶構造が直方晶の場合でも通常状態では磁気電気効果が現れないが、電気八極子秩序状態では磁気電気効果が現れる。また前方散乱効果の強さにより、 C_{4v} 型と D_{2d} 型の磁気電気効果が現れることが示された。これらの磁気電気効果は前方散乱効果によりクロスオーバーする。YBCO の擬ギャップ相において電気八極子秩序状態が実現していれば、これらの磁気電気応答が期待できる。

擬ギャップ相よりも低温領域では、空間反転対称性の破れた電荷密度波 (CDW) 状態が実現していると考えられる。この CDW 状態として二層間で電荷密度波が逆向きとなるような”crisscrossed stripe order”が提案されている [117] (図 61)。擬ギャップ相で電気八極子秩序状態が実現しているとすれば、CDW 相では”crisscrossed stripe order”が自然に現れる。

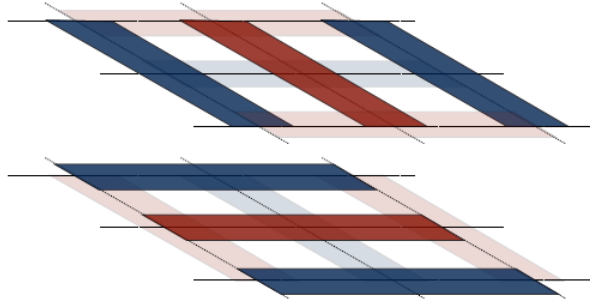


図 61 ”crisscrossed stripe order”(文献 [117] より引用)。各層の電荷密度波が逆位相となる。

5 総括

本論文では二層 Rashba 系における奇パリティ電気八極子状態での熱力学的安定性と磁気電気応答について議論した。さらに銅酸化物高温超伝導体 YBCO における電気八極子秩序状態の実現可能性を調べた。

二層 Rashba 系における電気多極子状態の安定性機構は以下の通りである。層依存の Rashba 型 ASOC の効果は層間ホッピングとの比で決定する。この ASOC の効果が大きい場合には各層に準粒子が局在するため、安定化する電気多極子状態は層間電子に働く層間前方散乱効果により決まる。この準粒子の局在化により、ASOC の効果が大きくなると層間既約感受率の大きさが減少する。そのため、層間前方散乱効果が斥力の場合に電気八極子状態が安定となりやすくなる (引力の場合でも電気八極子状態が安定となる)。対して、ASOC の効果が小さい場合には電子状態は結合軌道と反結合軌道により記述される。この場合、十分低温では層間既約感受率の大きさはフェルミ準位の状態密度に比例する。そのため、フェルミ準位の状態密度が非常に大きく、対応する層間既約感受率の大きさが正の場合には電気四極子状態が安定となりやすい (フェルミ準位がヴァン・ホープ特異点近傍に存在する場合など)。以上より、層依存の Rashba 型 ASOC は電気八極子秩序状態の安定性に優位に働くことが分かった。

また、電気八極子秩序状態における磁気電気応答を明らかにした。電気八極子秩序相ではスピンホール伝導率に飛びが現れることを示した。電気八極子状態ではその電子状態特有のスピン分裂を生じる。このスピン分裂によるフェルミ面間の運動量をもつ準粒子のバンド間からの寄与がこのスピンホール伝導率の飛びの原因であることを示した。また、この電気八極子秩序状態特有のバンド間からの寄与により、通常状態よりも大きなスピンホール伝導率が現れることを示した。また、電気八極子状態のスピン構造を反映して、印加電場に対する誘起スピン流の方向依存性は Rashba 系と同じであることが分かった。電気八極子秩序相では磁気電気効果が現れることを示した。この磁気電気効果はバンド間からの寄与も存在するが、バンド内からの寄与が支配的であることが分かった。また、印加電場に対する誘起磁気モーメントの方向依存性は Rashba 系とは異なり、点群 D_{2d} に属するスピン構造特有の依存性となることが示された。

銅酸化物高温超伝導体 YBCO の擬ギャップ相を対象とする計算を行った。空間反転対称性を自発的に破る電気八極子秩序状態へ相転移することを示した。この相転移温度近傍において、系全体のネマティシティにキックが現れることが分かった。近年、YBCO の擬ギャップ相では空間反転対称性の破る電子状態が実現している可能性が示唆されており、また相転移近傍でネマティシティにキックが表れていることが測定されている。磁気感受率の計算を行うことにより、ネマティシティのキック的な振る舞いを反映して磁気トルクでも相転移温度近傍でキックが現れることを示した。さらに、面内磁気感受率・面直-面内磁気感受率の異方性・フェルミ準位の状態密度が電気八極子秩序相で減少することを示した。これらは擬ギャップ相における測定結果とコンシステントである。また理論的提案として以下の事柄を示した。電気八極子秩序相では磁気感受率異方性のヴァン・ドレック成分が非常に大きくなることが分かった。そのため、YBCO では巨大な磁気異方性を伴

う超伝導状態が現れる可能性を示した。この巨大な磁気異方性は NMR 測定により観測できる可能性がある。さらに、磁気電気応答を調べることで、電気八極子秩序相ではスピホール伝導率に飛び・増大すること、磁気電気効果が生じることを示した。直方晶の場合でも、系が空間反転対称性を破る場合に磁気電気効果が現れるので、磁気電気効果の測定は電気八極子秩序状態の実現可能性に関して有効なプローブになるかもしれない。今後の実験研究に期待する。

付録 A 電気八極子秩序状態における ASOC の出現

この付録では、式 (60) で定義される有効 g ベクトルの解析式を導出する。平均場ハミルトニアン $\hat{H}_4^{\text{MF}}(\mathbf{k})$ [式 (42)] を対角化するユニタリ行列 $\hat{U}(\mathbf{k})$ [式 (47)] を用いてスピン演算子の期待値 $\mathbf{S}_{\mathbf{k}\alpha}^{\text{av}}$ を求める。基底を $\hat{C}_{\mathbf{k}}^\dagger = (c_{\mathbf{k}\uparrow A}^\dagger, c_{\mathbf{k}\downarrow A}^\dagger, c_{\mathbf{k}\uparrow B}^\dagger, c_{\mathbf{k}\downarrow B}^\dagger)$ と採用しているため、スピン演算子は

$$\hat{S}_4^x = \begin{pmatrix} 0 & 1 & 0 & 0 \\ 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \end{pmatrix} \quad (160)$$

$$\hat{S}_4^y = \begin{pmatrix} 0 & -i & 0 & 0 \\ i & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -i \\ 0 & 0 & i & 0 \end{pmatrix} \quad (161)$$

$$\hat{S}_4^z = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -1 \end{pmatrix} \quad (162)$$

と書ける。

ユニタリ変換することで、スピン演算子のバンド表示

$$\begin{aligned} \hat{S}_{\mathbf{k}} &= \hat{C}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{S}_4 \hat{C}_{\mathbf{k}} \\ &= \underbrace{\hat{C}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{U}(\mathbf{k})}_{\hat{\Gamma}_{\mathbf{k}}^\dagger} \underbrace{\hat{U}^\dagger(\mathbf{k}) \hat{S}_4 \hat{U}(\mathbf{k})}_{\tilde{S}_4(\mathbf{k})} \underbrace{\hat{U}^\dagger(\mathbf{k}) \hat{C}_{\mathbf{k}}}_{\hat{\Gamma}_{\mathbf{k}}} \\ &= \hat{\Gamma}_{\mathbf{k}}^\dagger \tilde{S}_4(\mathbf{k}) \hat{\Gamma}_{\mathbf{k}} \end{aligned} \quad (163)$$

が得られる。ここで、 $\hat{\Gamma}_{\mathbf{k}}^\dagger = (\gamma_{\mathbf{k}1}^\dagger, \gamma_{\mathbf{k}2}^\dagger, \gamma_{\mathbf{k}3}^\dagger, \gamma_{\mathbf{k}4}^\dagger)$ はバンド基底である。 $\tilde{S}_4(\mathbf{k})$ の対角成分が各固有状態に対するスピンの期待値である。 $\tilde{S}_4^x(\mathbf{k})$ の対角成分は

$$[\tilde{S}_4^x(\mathbf{k})]_{11} = [\tilde{S}_4^x(\mathbf{k})]_{33} = \frac{\sin k_y}{|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|} \quad (164)$$

$$[\tilde{S}_4^x(\mathbf{k})]_{22} = [\tilde{S}_4^x(\mathbf{k})]_{44} = -\frac{\sin k_y}{|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|} \quad (165)$$

となり、 $\tilde{S}_4^y(\mathbf{k})$ の対角成分は

$$[\tilde{S}_4^y(\mathbf{k})]_{11} = [\tilde{S}_4^y(\mathbf{k})]_{33} = -\frac{\sin k_x}{|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|} \quad (166)$$

$$[\tilde{S}_4^y(\mathbf{k})]_{22} = [\tilde{S}_4^y(\mathbf{k})]_{44} = \frac{\sin k_x}{|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|} \quad (167)$$

となり、 $\tilde{S}_4^z(\mathbf{k})$ の対角成分は

$$[\tilde{S}_4^z(\mathbf{k})]_{11} = [\tilde{S}_4^z(\mathbf{k})]_{22} = [\tilde{S}_4^z(\mathbf{k})]_{33} = [\tilde{S}_4^z(\mathbf{k})]_{44} = 0 \quad (168)$$

となる。式 (164)-(168) を用いることにより、スピン演算子の期待値は

$$\mathbf{S}_{\mathbf{k},1}^{\text{av}} = \mathbf{S}_{\mathbf{k},3}^{\text{av}} = \frac{1}{\sqrt{\sin^2 k_x + \sin^2 k_y}} (\sin k_y - \sin k_x, 0), \quad (169)$$

$$\mathbf{S}_{\mathbf{k},2}^{\text{av}} = \mathbf{S}_{\mathbf{k},4}^{\text{av}} = \frac{1}{\sqrt{\sin^2 k_x + \sin^2 k_y}} (-\sin k_y \sin k_x, 0), \quad (170)$$

となる。したがって、式 (50)-(53)、(169)、(170) により、有効 g ベクトルの式 (61) と (62) が得られる。

付録 B 既約感受率

この付録では式 (77) と (78) を導出する。この既約感受率の導出のために式 (68) を用いる。 $\mathbf{q} = \mathbf{0}$ での式 (68) における係数

$$A_{\mathbf{k},sl,s'l'}^{aa'}(\mathbf{0}) = u_{\mathbf{k}sl}^a u_{\mathbf{k}s'l'}^{a*} u_{\mathbf{k}s'l'}^{a'} u_{\mathbf{k}sl}^{a'*} \quad (171)$$

を計算する。ここで $u_{\mathbf{k}sl}^a$ は相互作用のないハミルトニアン $H_0 = H_{\text{kin}} + H_{\text{ASOC}} + H_{\perp}$ から得られる。式 (40) のように、 H_0 は 4×4 行列 $\hat{H}_0(\mathbf{k})$ を用いて $H_0 = \sum_{\mathbf{k}} \hat{C}_{\mathbf{k}}^{\dagger} \hat{H}_0(\mathbf{k}) \hat{C}_{\mathbf{k}}$ として表される。ここで $\hat{H}_0(\mathbf{k})$ は

$$\hat{H}_0(\mathbf{k}) = \begin{pmatrix} \varepsilon_{\mathbf{k}} & -\alpha\lambda_{\mathbf{k}}^+ & t_{\perp} & 0 \\ -\alpha\lambda_{\mathbf{k}}^- & \varepsilon_{\mathbf{k}} & 0 & t_{\perp} \\ t_{\perp} & 0 & \varepsilon_{\mathbf{k}} & \alpha\lambda_{\mathbf{k}}^+ \\ 0 & t_{\perp} & \alpha\lambda_{\mathbf{k}}^- & \varepsilon_{\mathbf{k}} \end{pmatrix} \quad (172)$$

と書ける。ユニタリー行列 $\hat{U}(\mathbf{k})$ を用いることで、 $\hat{H}_0(\mathbf{k})$ は

$$\hat{U}^{\dagger}(\mathbf{k}) \hat{H}_0(\mathbf{k}) \hat{U}(\mathbf{k}) = \begin{pmatrix} E_{\mathbf{k}1} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & E_{\mathbf{k}2} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & E_{\mathbf{k}3} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & E_{\mathbf{k}4} \end{pmatrix} \quad (173)$$

と対角化される。ここで、固有状態 a におけるエネルギー分散 $E_{\mathbf{k}a}$ が得られる [式 (79)、(80) 参照]。このユニタリー行列は

$$\hat{U}(\mathbf{k}) = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} T_{\mathbf{k}} & -\frac{\lambda_{\mathbf{k}}^+}{|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|} \sqrt{1-T_{\mathbf{k}}^2} & \sqrt{1-T_{\mathbf{k}}^2} & -\frac{\lambda_{\mathbf{k}}^+}{|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|} T_{\mathbf{k}} \\ \frac{\lambda_{\mathbf{k}}^-}{|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|} T_{\mathbf{k}} & \sqrt{1-T_{\mathbf{k}}^2} & \frac{\lambda_{\mathbf{k}}^-}{|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|} \sqrt{1-T_{\mathbf{k}}^2} & T_{\mathbf{k}} \\ \sqrt{1-T_{\mathbf{k}}^2} & -\frac{\lambda_{\mathbf{k}}^+}{|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|} T_{\mathbf{k}} & -T_{\mathbf{k}} & \frac{\lambda_{\mathbf{k}}^+}{|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|} \sqrt{1-T_{\mathbf{k}}^2} \\ \frac{\lambda_{\mathbf{k}}^-}{|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|} \sqrt{1-T_{\mathbf{k}}^2} & T_{\mathbf{k}} & -\frac{\lambda_{\mathbf{k}}^-}{|\mathbf{g}_{\mathbf{k}}|} T_{\mathbf{k}} & -\sqrt{1-T_{\mathbf{k}}^2} \end{pmatrix} \quad (174)$$

となる。 $T_{\mathbf{k}}$ は式 (81) で定義される。

$A_{\mathbf{k},sl,s'l'}^{aa'}(\mathbf{0})$ を簡潔に表現するために、固有状態指標 a に関して指標 ω_1 と ω_2 を

$$\omega_1 = \begin{cases} 1 & (a = 1, 2) \\ 2 & (a = 3, 4) \end{cases} \quad (175)$$

$$\omega_2 = \begin{cases} 1 & (a = 1, 4) \\ 2 & (a = 2, 3) \end{cases} \quad (176)$$

として導入する。式 (174) により、 $s = s'$ の場合における係数 $A_{\mathbf{k},sA,s'A}^{aa'}(\mathbf{0})$ は

$$A_{\mathbf{k},sA,s'A}^{aa'}(\mathbf{0}) = \begin{cases} \frac{1}{4}T_{\mathbf{k}}^4 & (\omega_2 = \omega'_2 = 1) \\ \frac{1}{4}(1 - T_{\mathbf{k}}^2)^2 & (\omega_2 = \omega'_2 = 2) \\ \frac{1}{4}T_{\mathbf{k}}^2(1 - T_{\mathbf{k}}^2) & (\omega_2 \neq \omega'_2) \end{cases} \quad (177)$$

となり、 $s \neq s'$ の場合は

$$A_{\mathbf{k},sA,s'A}^{aa'}(\mathbf{0}) = \begin{cases} (-1)^{a+a'}\frac{1}{4}T_{\mathbf{k}}^4 & (\omega_2 = \omega'_2 = 1) \\ (-1)^{a+a'}\frac{1}{4}(1 - T_{\mathbf{k}}^2)^2 & (\omega_2 = \omega'_2 = 2) \\ (-1)^{a+a'}\frac{1}{4}T_{\mathbf{k}}^2(1 - T_{\mathbf{k}}^2) & (\omega_2 \neq \omega'_2) \end{cases} \quad (178)$$

となる。同様に $s = s'$ の場合における係数 $A_{\mathbf{k},sA,s'B}^{aa'}(\mathbf{0})$ は

$$A_{\mathbf{k},sA,s'B}^{aa'}(\mathbf{0}) = \begin{cases} \frac{1}{4}T_{\mathbf{k}}^2(1 - T_{\mathbf{k}}^2)^2 & (\omega_1 = \omega'_1) \\ -\frac{1}{4}T_{\mathbf{k}}^2(1 - T_{\mathbf{k}}^2) & (\omega_1 \neq \omega'_1) \end{cases} \quad (179)$$

となり、 $s \neq s'$ の場合は

$$A_{\mathbf{k},sA,s'B}^{aa'}(\mathbf{0}) = \begin{cases} \frac{1}{4}T_{\mathbf{k}}^2(1 - T_{\mathbf{k}}^2)^2 & (\omega_2 = \omega'_2) \\ -\frac{1}{4}T_{\mathbf{k}}^2(1 - T_{\mathbf{k}}^2) & (\omega_2 \neq \omega'_2) \end{cases} \quad (180)$$

となる。

ここで、 $A_{\mathbf{k},sl,s'l'}^{aa'}(\mathbf{0})$ を

$$A_{\mathbf{k},sl,s'l'}^{aa'}(\mathbf{0}) = \eta_{sl,s'l'}^{aa'} S_{\mathbf{k},ll'}^{aa'} \quad (181)$$

と書き換える。 $\eta_{sl,s'l'}^{aa'}$ は $+1$ または -1 を取る。 $S_{\mathbf{k},AA}^{aa'}$ は $S_{\mathbf{k}i}$ ($i = 1, 2, 3$) の一つとなる。ここで、

S_{ki} は

$$\begin{aligned}
S_{k1} &= \frac{1}{4}T_{\mathbf{k}}^4 \\
S_{k2} &= \frac{1}{4}(1 - T_{\mathbf{k}}^2)^2 \\
S_{k3} &= \frac{1}{4}T_{\mathbf{k}}^2(1 - T_{\mathbf{k}}^2)
\end{aligned} \tag{182}$$

として導入される。対して、 $S_{\mathbf{k},AB}^{aa'} = S_{k3}$ となる。表 3 と表 4 に $\eta_{sl,s'l'}^{aa'}$ と $S_{\mathbf{k},ll'}^{aa'}$ をまとめる。また既約感受率を計算するために [式 (73)] s と s' のスピン和を取る必要があるため $\sum_{s,s'} \eta_{sl,s'l'}^{aa'}$ も表記している。これらの結果と $E_{k1} = E_{k2} \neq E_{k3} = E_{k4}$ を用いることにより、式 (77) と (78) の既約感受率の表式を得る。

aa'	$\eta_{\uparrow A, \uparrow A}^{aa'}$	$\eta_{\uparrow A, \downarrow A}^{aa'}$	$\eta_{\downarrow A, \uparrow A}^{aa'}$	$\eta_{\downarrow A, \downarrow A}^{aa'}$	$\sum_{s,s'} \eta_{sA,s'A}^{aa'}$	$S_{\mathbf{k},AA}^{aa'}$
11	+1	+1	+1	+1	+4	S_{k1}
12	+1	-1	-1	+1	0	S_{k3}
13	+1	+1	+1	+1	+4	S_{k3}
14	+1	-1	-1	+1	0	S_{k1}
21	+1	-1	-1	+1	0	S_{k3}
22	+1	+1	+1	+1	+4	S_{k2}
23	+1	-1	-1	+1	0	S_{k2}
24	+1	+1	+1	+1	+4	S_{k3}
31	+1	+1	+1	+1	+4	S_{k3}
32	+1	-1	-1	+1	0	S_{k2}
33	+1	+1	+1	+1	+4	S_{k2}
34	+1	-1	-1	+1	0	S_{k3}
41	+1	-1	-1	+1	0	S_{k1}
42	+1	+1	+1	+1	+4	S_{k3}
43	+1	-1	-1	+1	0	S_{k3}
44	+1	+1	+1	+1	+4	S_{k1}

表 3 $\eta_{sA,s'A}^{aa'}$, $\sum_{s,s'} \eta_{sA,s'A}^{aa'}$, $S_{\mathbf{k},AA}^{aa'}$ の表。

aa'	$\eta_{\uparrow A, \uparrow B}^{aa'}$	$\eta_{\uparrow A, \downarrow B}^{aa'}$	$\eta_{\downarrow A, \uparrow B}^{aa'}$	$\eta_{\downarrow A, \downarrow B}^{aa'}$	$\sum_{s, s'} \eta_{sA, s'B}^{aa'}$	$S_{\mathbf{k}, AB}^{aa'}$
11	+1	+1	+1	+1	+4	$S_{\mathbf{k}3}$
12	+1	-1	-1	+1	0	$S_{\mathbf{k}3}$
13	-1	-1	-1	-1	-4	$S_{\mathbf{k}3}$
14	-1	+1	+1	-1	0	$S_{\mathbf{k}3}$
21	+1	-1	-1	+1	0	$S_{\mathbf{k}3}$
22	+1	+1	+1	+1	+4	$S_{\mathbf{k}3}$
23	-1	+1	+1	-1	0	$S_{\mathbf{k}3}$
24	-1	-1	-1	-1	-4	$S_{\mathbf{k}3}$
31	-1	-1	-1	-1	-4	$S_{\mathbf{k}3}$
32	-1	+1	+1	-1	0	$S_{\mathbf{k}3}$
33	+1	+1	+1	+1	+4	$S_{\mathbf{k}3}$
34	+1	-1	-1	+1	0	$S_{\mathbf{k}3}$
41	-1	+1	+1	-1	0	$S_{\mathbf{k}3}$
42	-1	-1	-1	-1	-4	$S_{\mathbf{k}3}$
43	+1	-1	-1	+1	0	$S_{\mathbf{k}3}$
44	+1	+1	+1	+1	+4	$S_{\mathbf{k}3}$

表4 $\eta_{sA, s'B}^{aa'}$, $\sum_{s, s'} \eta_{sA, s'B}^{aa'}$, $S_{\mathbf{k}, AB}^{aa'}$ の表。

付録 C スピンホール伝導率・磁気電気係数の対角成分

電気八極子秩序状態において電場により誘起されるスピン流はスピンホール伝導率の非対角成分 σ_{xy}^{SHE} と σ_{yx}^{SHE} により与えられる。同様に、電場により誘起される磁気モーメントのは磁気電気係数の非対角成分 Υ_{xy} と Υ_{yx} により与えられる。この付録では、スピンホール伝導率と磁気電気係数の対角成分の解析式を示す。そして波数和を取ることによりこれらの対角成分が消失することを示す。

バンド表示におけるスピン演算子の各成分を求めることにより、スピンホール伝導率の対角成分 $\sigma_{\mu\mu}^{\text{SHE}} (\{\mu, \bar{\mu}\} = \{x, y\})$ は

$$\sigma_{\mu\mu}^{\text{SHE}} = \sigma_{\mu\mu}^{\text{SHE(C)}} + \sigma_{\mu\mu}^{\text{SHE(NC)}} \quad (183)$$

と記述される。ここで、バンド間からの寄与 $\sigma_{\mu\mu}^{\text{SHE(C)}}$ と $\sigma_{\mu\mu}^{\text{SHE(NC)}}$ は

$$\sigma_{\mu\mu}^{\text{SHE(C)}} = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \sigma_{\mu\mu}^{\text{SHE(C)}}(\mathbf{k}) \quad (184)$$

$$\begin{aligned}
\sigma_{\mu\mu}^{\text{SHE(C)}}(\mathbf{k}) &= \alpha g \mu_B e \frac{\cos k_\mu \sin k_{\bar{\mu}}}{|\mathbf{g}\mathbf{k}|} \left[T_{\mathbf{k}-} T_{\mathbf{k}+} + \sqrt{1 - T_{\mathbf{k}-}^2} \sqrt{1 - T_{\mathbf{k}+}^2} \right] \\
&\times \left[\left\{ \left(\frac{\partial \xi_{\mathbf{k}A}}{\partial k_\mu} \right) T_{\mathbf{k}-} T_{\mathbf{k}+} - \left(\frac{\partial \xi_{\mathbf{k}B}}{\partial k_\mu} \right) \sqrt{1 - T_{\mathbf{k}-}^2} \sqrt{1 - T_{\mathbf{k}+}^2} \right\} D_{14}(\mathbf{k}) \right. \\
&\left. - \left\{ \left(\frac{\partial \xi_{\mathbf{k}A}}{\partial k_\mu} \right) \sqrt{1 - T_{\mathbf{k}-}^2} \sqrt{1 - T_{\mathbf{k}+}^2} - \left(\frac{\partial \xi_{\mathbf{k}B}}{\partial k_\mu} \right) T_{\mathbf{k}-} T_{\mathbf{k}+} \right\} D_{23}(\mathbf{k}) \right] \quad (185)
\end{aligned}$$

と

$$\sigma_{\mu\mu}^{\text{SHE(NC)}} = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \sigma_{\mu\mu}^{\text{SHE(NC)}}(\mathbf{k}) \quad (186)$$

$$\begin{aligned}
\sigma_{\mu\mu}^{\text{SHE(NC)}}(\mathbf{k}) &= \alpha g \mu_B e \frac{\cos k_\mu \sin k_{\bar{\mu}}}{|\mathbf{g}\mathbf{k}|} \left[T_{\mathbf{k}-} \sqrt{1 - T_{\mathbf{k}+}^2} - T_{\mathbf{k}+} \sqrt{1 - T_{\mathbf{k}-}^2} \right] \\
&\times \left[\left\{ \left(\frac{\partial \xi_{\mathbf{k}A}}{\partial k_\mu} \right) T_{\mathbf{k}-} \sqrt{1 - T_{\mathbf{k}+}^2} + \left(\frac{\partial \xi_{\mathbf{k}B}}{\partial k_\mu} \right) T_{\mathbf{k}+} \sqrt{1 - T_{\mathbf{k}-}^2} \right\} D_{12}(\mathbf{k}) \right. \\
&\left. - \left\{ \left(\frac{\partial \xi_{\mathbf{k}A}}{\partial k_\mu} \right) T_{\mathbf{k}+} \sqrt{1 - T_{\mathbf{k}-}^2} + \left(\frac{\partial \xi_{\mathbf{k}B}}{\partial k_\mu} \right) T_{\mathbf{k}-} \sqrt{1 - T_{\mathbf{k}+}^2} \right\} D_{34}(\mathbf{k}) \right] \quad (187)
\end{aligned}$$

で与えられる。ここで、 $T_{\mathbf{k}\pm}$ は式 (48)、 $D_{ab}(\mathbf{k})$ は式 (113)-(117) で導入される。 $T_{\mathbf{k}\pm}$ と $D_{ab}(\mathbf{k})$ は波数ベクトル \mathbf{k} に対して偶であり、 $\partial \xi_{\mathbf{k}i} / \partial k_\mu \propto \sin k_\mu$ となる。したがって、 $\sigma_{\mu\mu}^{\text{SHE(C)}}(\mathbf{k})$ [式 (185)] と $\sigma_{\mu\mu}^{\text{SHE(NC)}}(\mathbf{k})$ [式 (187)] は

$$\sigma_{\mu\mu}^{\text{SHE(C)}}(k_x, k_y) = \sigma_{\mu\mu}^{\text{SHE(C)}}(-k_x, -k_y) = -\sigma_{\mu\mu}^{\text{SHE(C)}}(-k_x, k_y) = -\sigma_{\mu\mu}^{\text{SHE(C)}}(k_x, -k_y) \quad (188)$$

$$\sigma_{\mu\mu}^{\text{SHE(NC)}}(k_x, k_y) = \sigma_{\mu\mu}^{\text{SHE(NC)}}(-k_x, -k_y) = -\sigma_{\mu\mu}^{\text{SHE(NC)}}(-k_x, k_y) = -\sigma_{\mu\mu}^{\text{SHE(NC)}}(k_x, -k_y) \quad (189)$$

の関係を満たす。式 (184)、(186)、(188)、(189) を用いることにより、スピンホール伝導率の対角成分 $\sigma_{\mu\mu}^{\text{SHE}}$ は波数和を取ることでゼロになる。

次に、磁気電気係数の対角成分の結果を示す。バンド表示におけるスピン流の各成分を求めることにより、磁気電気係数の対角成分 $\Upsilon_{\mu\mu}$ ($\{\mu, \bar{\mu}\} = \{x, y\}$) は

$$\Upsilon_{\mu\mu} = \Upsilon_{\mu\mu}^{\text{intra}} + \Upsilon_{\mu\mu}^{\text{inter(C)}} + \Upsilon_{\mu\mu}^{\text{inter(NC)}} \quad (190)$$

と書ける。ここで、バンド内からの寄与 $\Upsilon_{\mu\mu}^{\text{intra}}$ は

$$\Upsilon_{\mu\mu}^{\text{intra}} = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \Upsilon_{\mu\mu}^{\text{intra}}(\mathbf{k}) \quad (191)$$

$$\begin{aligned}
\Upsilon_{\mu\mu}^{\text{intra}}(\mathbf{k}) &= \frac{g \mu_B e \sin k_{\bar{\mu}}}{4\gamma |\mathbf{g}\mathbf{k}|} \left[\left(\frac{\partial E_{\mathbf{k}1}}{\partial k_\mu} \right) \{-f'(E_{\mathbf{k}1})\} - \left(\frac{\partial E_{\mathbf{k}2}}{\partial k_\mu} \right) \{-f'(E_{\mathbf{k}2})\} \right. \\
&\left. + \left(\frac{\partial E_{\mathbf{k}3}}{\partial k_\mu} \right) \{-f'(E_{\mathbf{k}3})\} - \left(\frac{\partial E_{\mathbf{k}4}}{\partial k_\mu} \right) \{-f'(E_{\mathbf{k}4})\} \right] \quad (192)
\end{aligned}$$

と与えられる。また、バンド間からの寄与 $\Upsilon_{\mu\mu}^{\text{inter(C)}}$ と $\Upsilon_{\mu\mu}^{\text{inter(NC)}}$ は

$$\Upsilon_{\mu\mu}^{\text{inter(C)}} = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \Upsilon_{\mu\mu}^{\text{inter(C)}}(\mathbf{k}) \quad (193)$$

$$\Upsilon_{\mu\mu}^{\text{inter(C)}}(\mathbf{k}) = -\alpha g \mu_B e \frac{\cos k_\mu \sin k_\mu \sin k_{\bar{\mu}}}{|\mathbf{g}_\mathbf{k}|^2} \left[T_{\mathbf{k}-}^2 + T_{\mathbf{k}+}^2 - 1 \right] \left[-I_{41}(\mathbf{k}) + I_{32}(\mathbf{k}) \right] \quad (194)$$

と

$$\Upsilon_{\mu\mu}^{\text{inter(NC)}} = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \Upsilon_{\mu\mu}^{\text{inter(NC)}}(\mathbf{k}) \quad (195)$$

$$\Upsilon_{\mu\mu}^{\text{inter(NC)}}(\mathbf{k}) = -\alpha g \mu_B e \frac{\cos k_\mu \sin k_\mu \sin k_{\bar{\mu}}}{|\mathbf{g}_\mathbf{k}|^2} \left[T_{\mathbf{k}-}^2 - T_{\mathbf{k}+}^2 \right] \left[-I_{21}(\mathbf{k}) + I_{43}(\mathbf{k}) \right] \quad (196)$$

として記述される。 $I_{ab}(\mathbf{k})$ [式 (137)] は波数ベクトル \mathbf{k} に対して偶であり、 $\partial E_{\mathbf{k}a} / \partial k_\mu \propto \sin k_\mu$ となる。したがって、式 (192)、(194)、(196) は

$$\Upsilon_{\mu\mu}^{\text{intra}}(k_x, k_y) = \Upsilon_{\mu\mu}^{\text{intra}}(-k_x, -k_y) = -\Upsilon_{\mu\mu}^{\text{intra}}(-k_x, k_y) = -\Upsilon_{\mu\mu}^{\text{intra}}(k_x, -k_y) \quad (197)$$

$$\Upsilon_{\mu\mu}^{\text{inter(C)}}(k_x, k_y) = \Upsilon_{\mu\mu}^{\text{inter(C)}}(-k_x, -k_y) = -\Upsilon_{\mu\mu}^{\text{inter(C)}}(-k_x, k_y) = -\Upsilon_{\mu\mu}^{\text{inter(C)}}(k_x, -k_y) \quad (198)$$

$$\Upsilon_{\mu\mu}^{\text{inter(NC)}}(k_x, k_y) = \Upsilon_{\mu\mu}^{\text{inter(NC)}}(-k_x, -k_y) = -\Upsilon_{\mu\mu}^{\text{inter(NC)}}(-k_x, k_y) = -\Upsilon_{\mu\mu}^{\text{inter(NC)}}(k_x, -k_y) \quad (199)$$

の関係を満たす。波数和を取ることで、電気八極子秩序状態における磁気電気係数の対角成分 $\Upsilon_{\mu\mu}$ はゼロとなる。

付録 D 面直-面内磁気感受率異方性の解析表式

この付録では、面直磁気感受率 χ_{zz} と面直-面内磁気感受率異方性 $\Delta\chi_{\perp}$ の解析式を示す。始めに、式 (142)-(144) を用いて χ_{zz} を計算する。ユニタリ行列 $\hat{U}(\mathbf{k})$ [式 (47)] を用いたユニタリ変換により、バンド基底におけるスピン演算子の各成分 $[\tilde{S}_z(\mathbf{k})]_{ab}$ が得られる。これらの各成分から、 χ_{zz} の解析式が得られる。

式 (142) で示しているように、面直磁気感受率 χ_{zz} は

$$\chi_{zz} = \chi_{zz}^{\text{P}} + \chi_{zz}^{\text{VV}} \quad (200)$$

としてバンド内からの寄与であるパウリ感受率 χ_{zz}^{P} とバンド間からの寄与であるヴァンヴェック感受率 χ_{zz}^{VV} に分割できる。通常状態では、これらの感受率は

$$\chi_{zz}^{\text{P}} = \frac{g^2 \mu_B^2}{4N} \sum_{\mathbf{k}, a} \{T^{(2)}(\mathbf{k})\}^2 \{-f'(E_{\mathbf{k}a})\} \quad (201)$$

$$\chi_{zz}^{\text{VV}} = -\frac{g^2 \mu_B^2}{2N} \sum_{\mathbf{k}} \{T^{(1)}(\mathbf{k})\}^2 \{F_{14}(\mathbf{k}) + F_{23}(\mathbf{k})\} \quad (202)$$

と記述される。対して、電気八極子秩序状態では

$$\chi_{zz}^{\text{P}} = 0 \quad (203)$$

$$\chi_{zz}^{\text{VV}} = -\frac{g^2 \mu_{\text{B}}^2}{2N} \sum_{\mathbf{k}} \left[\{T^{(1)}(\mathbf{k})\}^2 \{F_{14}(\mathbf{k}) + F_{23}(\mathbf{k})\} + \{T^{(2)}(\mathbf{k})\}^2 \{F_{12}(\mathbf{k}) + F_{34}(\mathbf{k})\} \right] \quad (204)$$

となる。ここで、 $T^{(1)}(\mathbf{k})$ は式 (147)、 $T^{(2)}(\mathbf{k})$ は式 (148)、 $F_{ab}(\mathbf{k})$ は式 (149) で定義されている。

式 (145)-(151) と (200)-(204) から、面直-面内磁気感受率異方性 $\Delta\chi_{\perp} = \Delta\chi_{\perp}^{\text{P}} + \Delta\chi_{\perp}^{\text{VV}}$ の解析式が得られる。通常状態では

$$\Delta\chi_{\perp}^{\text{P}} = -\frac{g^2 \mu_{\text{B}}^2}{8N} \sum_{\mathbf{k}, a} \left[1 - \{T^{(2)}(\mathbf{k})\}^2 \right] \{-f'(E_{\mathbf{k}a})\} \quad (205)$$

$$\Delta\chi_{\perp}^{\text{VV}} = -\frac{g^2 \mu_{\text{B}}^2}{4N} \sum_{\mathbf{k}} \{T^{(1)}(\mathbf{k})\}^2 \{F_{14}(\mathbf{k}) + F_{23}(\mathbf{k})\} \quad (206)$$

となる。一方、電気八極子秩序状態では

$$\Delta\chi_{\perp}^{\text{P}} = -\frac{g^2 \mu_{\text{B}}^2}{8N} \sum_{\mathbf{k}, a} \{-f'(E_{\mathbf{k}a})\} \quad (207)$$

$$\Delta\chi_{\perp}^{\text{VV}} = -\frac{g^2 \mu_{\text{B}}^2}{4N} \sum_{\mathbf{k}} \left[\{T^{(1)}(\mathbf{k})\}^2 \{F_{14}(\mathbf{k}) + F_{23}(\mathbf{k})\} + \{T^{(2)}(\mathbf{k})\}^2 \{F_{12}(\mathbf{k}) + F_{34}(\mathbf{k})\} \right] \quad (208)$$

となる。

謝辞

指導教官である柳瀬陽一准教授には本研究を進める際、非常に多くのご助言を頂きました。大変深く感謝いたします。

参考文献

- [1] E. Bauer, G. Hilscher, H. Michor, Ch. Paul, E. W. Scheidt, A. Griбанov, Yu. Seropegin, H. Noel, M. Sigrist, and P. Rogl, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 027003 (2004).
- [2] 柳瀬陽一, 播磨尚朝, *固体物理* **46**, 283 (2011).
- [3] 柳瀬陽一, 播磨尚朝, *固体物理* **47**, 101 (2012).
- [4] Y. Yanase, Electronic Structure and Noncentrosymmetric Superconductivity in Three-Orbital t_{2g} Model with Spin-Orbit Coupling: Sr_2RuO_4 near [001] Surface/Interface, *J. Phys. Soc. Jpn.* **82**, 044711 (2013).
- [5] Y. Nakamura, and Y. Yanase, Multi-Orbital Superconductivity in $\text{SrTiO}_3/\text{LaAlO}_3$ Interface and SrTiO_3 Surface, *J. Phys. Soc. Jpn.* **82**, 083705 (2013).
- [6] V. M. Edel'shtein, Characteristics of the Cooper pairing in two-dimensional noncentrosymmetric electron systems, *Sov. Phys. JETP* **68**, 1244 (1989).
- [7] V. M. Edel'shtein, Magnetolectric Effect in Polar Superconductors, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 2004 (1995).
- [8] L. P. Gor'kov and E. I. Rashba, Superconducting 2D System with Lifted Spin Degeneracy: Mixed Singlet-Triplet State, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 037004 (2001).
- [9] S. K. Yip, Two-dimensional superconductivity with strong spin-orbit interaction, *Phys. Rev. B* **65**, 144508 (2002).
- [10] P. Frigeri, D. F. Agterberg, A. Koga, and M. Sigrist, Superconductivity without inversion symmetry: MnSi versus CePt_3Si , *Phys. Rev. Lett.* **94**, 137002 (2005).
- [11] R. P. Kaur, D. F. Agterberg, and M. Sigrist, Helical vortex phase in the noncentrosymmetric CePt_3Si , *Phys. Rev. Lett.* **92**, 097001 (2004).
- [12] S. Fujimoto, Magnetolectric effects in heavy-fermion superconductors without inversion symmetry, *Phys. Rev. B* **72**, 024515 (2005).
- [13] S. Fujimoto, Fermi Liquid Theory for Heavy Fermion Superconductors without Inversion Symmetry: Magnetism and Transport Coefficients, *J. Phys. Soc. Jpn.* **76**, 034712 (2007).
- [14] S. Fujimoto, Electron Correlation and Pairing States in Superconductors without Inversion Symmetry, *J. Phys. Soc. Jpn.* **76**, 051008 (2007).
- [15] K. Takasan, A. Daido, N. Kawakami, and Y. Yanase, Laser-induced topological superconductivity in cuprate thin films, *Phys. Rev. B* **95**, 134508 (2017).

- [16] L. S. Levitov, Yu. V. Nazarov, G. M. Eliashberg, Magnetolectric effects in conductors with mirror isomer symmetry, *Sov. Phys. JETP* **61**, 133 (1985).
- [17] S. Murakami, N. Nagaosa, and S. C. Zhang, Dissipationless Quantum Spin Current at Room Temperature, *Science* **301**, 1348 (2003).
- [18] J. Sinova, D. Culcer, Q. Niu, N. A. Sinitsyn, T. Jungwirth, and A. H. MacDonald, Universal Intrinsic Spin-Hall Effect, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 126603 (2004).
- [19] J. Inoue, G. E. W. Bauer, and L. W. Molenkamp, Suppression of the Persistent Spin Hall Current by Defect Scattering, *Phys. Rev. B* **70**, 041303(R) (2004).
- [20] H. Kontani, J. Goryo, and D. S. Hirashima, Intrinsic Spin Hall Effect in the s-Wave Superconducting State: Analysis of the Rashba Model, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 086602 (2009).
- [21] T. Mizoguchi and N. Arakawa, Controlling spin Hall effect by using a band anticrossing and nonmagnetic impurity scattering, *Phys. Rev. B* **93**, 041304(R) (2016).
- [22] C. L. Kane and E. J. Mele, Z_2 Topological Order and the Quantum Spin Hall Effect, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 146802 (2005).
- [23] C. L. Kane and E. J. Mele, Quantum Spin Hall Effect in Graphene, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 226801 (2005).
- [24] B. A. Bernevig and S.-C Zhang, Quantum Spin Hall Effect, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 106802 (2006).
- [25] D. N. Astrov, The Magnetolectric Effect in Antiferromagnetics, *Sov. Phys. JETP* **11**, 708 (1960).
- [26] V. J. Folen, G. T. Rado, and E. W. Stalder, Anisotropy of the Magnetolectric Effect in Cr_2O_3 , *Phys. Rev. Lett.* **6**, 607 (1961).
- [27] T. Arima, D. Higashiyama, Y. Kaneko, J. P. He, T. Goto, S. Miyasaka, T. Kimura, K. Oikawa, T. Kamiyama, R. Kumai, and Y. Tokura, Structural and magnetolectric properties of $\text{Ga}_{2-x}\text{Fe}_x\text{O}_3$ single crystals grown by a floating-zone method, *Phys. Rev. B* **70**, 064426 (2004).
- [28] R. Karplus and J. M. Luttinger, Hall Effect in Ferromagnetics, *Phys. Rev.* **95** 1154 (1954).
- [29] 吉田智広, 丸山大輔, 柳瀬陽一 *固体物理* **49**, 109 (2014).
- [30] Superconductivity and local noncentrosymmetry in crystal lattices, M. H. Fischer, F. Loder, and M. Sigrist, *Phys. Rev. B* **84**, 184533 (2011).
- [31] S. Nakosai, Y. Tanaka, and N. Nagaosa, Topological Superconductivity in Bilayer Rashba System, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 147003 (2012).
- [32] D. Maruyama, M. Sigrist, and Y. Yanase, Locally Non-centrosymmetric Superconductivity in Multilayer Systems, *J. Phys. Soc. Jpn.* **81**, 034702 (2012).
- [33] T. Yoshida, M. Sigrist, and Y. Yanase, Pair-density wave states through spin-orbit coupling in multilayer superconductors, *Phys. Rev. B* **86**, 134514 (2012).

- [34] T. Yoshida, M. Sigrist, and Y. Yanase, Complex-Stripe Phases Induced by Staggered Rashba Spin-Orbit Coupling, *J. Phys. Soc. Jpn.* **82**, 074714 (2013).
- [35] T. Yoshida, M. Sigrist, and Y. Yanase, Parity-Mixed Superconductivity in Locally Non-centrosymmetric System, *J. Phys. Soc. Jpn.* **83**, 013703 (2014).
- [36] M. Sigrist, D. F. Agterberg, M. H. Fischer, J. Goryo, F. Loder, S.-H. Rhim, D. Maruyama, Y. Yanase, T. Yoshida, and S. J. Youn, Superconductors with Staggered Non-centrosymmetry, *J. Phys. Soc. Jpn.* **83**, 061014 (2014).
- [37] T. Watanabe, T. Yoshida, and Y. Yanase, Odd-parity superconductivity by competing spin-orbit coupling and orbital effect in artificial heterostructures, *Phys. Rev. B* **92**, 174502 (2015).
- [38] T. Yoshida, M. Sigrist, and Y. Yanase, Topological Crystalline Superconductivity in Locally Noncentrosymmetric Multilayer Superconductors, *Phys. Rev. Lett.* **115**, 027001 (2015).
- [39] Y. Higashi, Y. Nagai, T. Yoshida, Y. Masaki, and Y. Yanase, Robust zero-energy bound states around a pair-density-wave vortex core in locally noncentrosymmetric superconductors, *Phys. Rev. B* **93**, 104529 (2016).
- [40] T. Yoshida, A. Daido, Y. Yanase, and N. Kawakami, Fate of Majorana Modes in CeCoIn₅/YbCoIn₅ Superlattices: A Test Bed for the Reduction of Topological Classification, *Phys. Rev. Lett.* **118**, 147001 (2017).
- [41] S. K. Goh, Y. Mizukami, H. Shishido, D. Watanabe, S. Yasumoto, M. Shimozawa, M. Yamashita, T. Terashima, Y. Yanase, T. Shibauchi, A. I. Buzdin, and Y. Matsuda, Anomalous Upper Critical Field in CeCoIn₅/YbCoIn₅ Superlattices with a Rashba-Type Heavy Fermion Interface, *Phys. Rev. Lett.* **109**, 157006 (2012).
- [42] M. Shimozawa, S. K. Goh, R. Endo, R. Kobayashi, T. Watashige, Y. Mizukami, H. Ikeda, H. Shishido, Y. Yanase, T. Terashima, T. Shibauchi, and Y. Matsuda, Controllable Rashba Spin-Orbit Interaction in Artificially Engineered Superlattices Involving the Heavy-Fermion Superconductor CeCoIn₅, *Phys. Rev. Lett.* **112**, 156404 (2014).
- [43] M. Shimozawa, S. K. Goh, T. Shibauchi, and Y. Matsuda, From Kondo lattices to Kondo superlattices, *Reports on Progress in Physics* **79**, 074503 (2016).
- [44] Y. Yanase, Magneto-Electric Effect in Three-Dimensional Coupled Zigzag Chains, *J. Phys. Soc. Jpn.* **83**, 014703 (2014).
- [45] S. Hayami, H. Kusunose, and Y. Motome, Toroidal order in metals without local inversion symmetry, *Phys. Rev. B* **90**, 024432 (2014).
- [46] S. Hayami, H. Kusunose, and Y. Motome, Spontaneous parity breaking in spin-orbital coupled systems, *Phys. Rev. B* **90**, 081115(R) (2014).
- [47] S. Hayami, H. Kusunose, and Y. Motome, Spontaneous Multipole Ordering by Local Parity Mixing, *J. Phys. Soc. Jpn.* **84**, 064717 (2015).

- [48] S. Hayami, H. Kusunose, and Y. Motome, Emergent spin-valley-orbital physics by spontaneous parity breaking, *J. Phys.: Condens. Matter* **28**, 395601 (2016).
- [49] S. Sumita, and Y. Yanase, Superconductivity in magnetic multipole states, *Phys. Rev. B* **93**, 224507 (2016).
- [50] S. Sumita, T. Nomoto, and Y. Yanase, Multipole Superconductivity in Nonsymmorphic Sr_2IrO_4 , *Phys. Rev. Lett.* **119**, 027001 (2017).
- [51] H. Watanabe, and Y. Yanase Magnetic hexadecapole order and magnetopiezoelectric metal state in $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Mn}_2\text{As}_2$, *Phys. Rev. B* **96**, 064432 (2017).
- [52] S. Hayami, H. Kusunose, and Y. Motome, Emergent odd-parity multipoles and magnetoelectric effects on a diamond structure: implication to 5d transition metal oxides AOsO_4 ($A = \text{K}, \text{Rb}, \text{and Cs}$), arXiv:1711.09507.
- [53] S. Hayami, and H. Kusunose, Microscopic Description of Electric and Magnetic Toroidal Multipoles in Hybrid Orbitals, arXiv:1712.02927.
- [54] Y. Yanagi, S. Hayami, and H. Kusunose, Manipulating magnetoelectric effect – Essence learned from $\text{Co}_4\text{Nb}_2\text{O}_9$, arXiv:1712.03918.
- [55] T. Hitomi and Y. Yanase, Electric Octupole Order in Bilayer Ruthenate $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$, *J. Phys. Soc. Jpn.* **83**, 114704 (2014).
- [56] T. Hitomi and Y. Yanase, Electric Octupole Order in Bilayer Rashba System, *J. Phys. Soc. Jpn.* **85**, 124702 (2016).
- [57] Y. Sugita and Y. Motome, Topological Insulators from Electronic Superstructures, *J. Phys. Soc. Jpn.* **85**, 073709 (2016).
- [58] B. B. Van Aken, J. P. Rivera, H. Schmid, and M. Fiebig, Observation of ferrotoroidic domains, *Nature* **449**, 702 (2007).
- [59] N. A. Spaldin, M. Fiebig, and M. Mostovoy, The toroidal moment in condensed-matter physics and its relation to the magnetoelectric effect, *J. Phys.: Condens. Matter* **20**, 434203 (2008).
- [60] L. Zhao, D. H. Torchinsky, H. Chu, V. Ivanov, R. Lifshitz, R. Flint, T. Qi, G. Cao, and D. Hsieh, Evidence of an odd-parity hidden order in a spin-orbit coupled correlated iridate, *Nature Phys.* **12**, 32 (2016).
- [61] S. Di Matteo and M. R. Norman, Magnetic ground state of Sr_2IrO_4 and implications for second-harmonic generation, *Phys. Rev. B* **94**, 075148 (2016).
- [62] K. Kimura, P. Babkevich, M. Sera, M. Toyoda, K. Yamauchi, G. S. Tucker, J. Martius, T. Fennell, P. Manuel, D. D. Khalyavin, R. D. Johnson, T. Nakano, Y. Nozue, H. M. Rønnow, and T. Kimura, Magnetodielectric detection of magnetic quadrupole order in $\text{Ba}(\text{TiO})\text{Cu}_4(\text{PO}_4)_4$ with Cu_4O_{12} square cupolas, *Nature Commun.* **7**, 13039 (2016).
- [63] R. A. Borzi, S. A. Grigera, J. Farrell, R. S. Perry, S. J. S. Lister, S. L. Lee, D. A. Tennant, Y. Maeno, and A. P. Mackenzie, *Science* **315**, 214 (2007).

- [64] C. Lester, S. Ramos, R. S. Perry, T. P. Croft, R. I. Bewley, T. Guidi, P. Manuel, D. D. Khalyavin, E. M. Forgan, and S. M. Hayden, Field tunable spin density wave phases in $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$, *Nature Materials* **14**, 373 (2015).
- [65] G. Cao, S. McCall, and J. E. Crow, Observation of itinerant ferromagnetism in layered $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ single crystals, *Phys. Rev. B* **55**, R672 (1997).
- [66] S. Ikeda, Y. Maeno, Magnetic properties of bilayered $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$, *Physica B* **261**, 947 (1999).
- [67] S. Ikeda, Y. Maeno, S. Nakatsuji, M. Kosaka, and Y. Uwatoko, Ground state in $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$: Fermi liquid close to a ferromagnetic instability, *Phys. Rev. B* **62**, R6089 (2000).
- [68] Q. Huang, J. W. Lynn, R. W. Erwin, J. Jarupatrakorn, and R. J. Cava, Oxygen displacements and search for magnetic order in $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$, *Phys. Rev. B* **58**, 8515 (1998).
- [69] H. Shaked, J. D. Jorgensen, S. Short, O. Chmaissem, S.-I. Ikeda, and Y. Maeno, Temperature and pressure effects on the crystal structure of $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$: Evidence for electronically driven structural responses, *Phys. Rev. B* **62**, 8725 (2000).
- [70] H. Shaked, J.D. Jorgensen, O. Chmaissem, S. Ikeda, Y. Maeno, Neutron Diffraction Study of the Structural Distortions in $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$, *J. Solid State Chem.* **154**, 361 (2000).
- [71] R. Kiyonagi, K. Tsuda, N. Aso, H. Kimura, Y. Noda, Y. Yoshida, S. Ikeda, and Y. Uwatoko, Investigation of the Structure of Single Crystal $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ by Neutron and Convergent Beam Electron Diffractions, *J. Phys. Soc. Jpn.* **73**, 639 (2004).
- [72] A. Tamai, M. P. Allan, J. F. Mercure, W. Meevasana, R. Dunkel, D. H. Lu, R. S. Perry, A. P. Mackenzie, D. J. Singh, Z.-X. Shen, and F. Baumberger, Fermi Surface and van Hove Singularities in the Itinerant Metamagnet $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 026407 (2008).
- [73] K. Iwaya, S. Satow, T. Hanaguri, N. Shannon, Y. Yoshida, S. I. Ikeda, J. P. He, Y. Kaneko, Y. Tokura, T. Yamada, and H. Takagi, Local Tunneling Spectroscopy across a Metamagnetic Critical Point in the Bilayer Ruthenate $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 057208 (2007).
- [74] R. S. Perry, K. Kitagawa, S. A. Grigera, R. A. Borzi, A. P. Mackenzie, K. Ishida, and Y. Maeno, Multiple First-Order Metamagnetic Transitions and Quantum Oscillations in Ultrapure $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 166602 (2004).
- [75] R. A. Borzi, A. McCollam, J. A. N. Bruin, R. S. Perry, A. P. Mackenzie, and S. A. Grigera, Hall coefficient anomaly in the low-temperature high-field phase of $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$, *Phys. Rev. B* **84**, 205112 (2011).
- [76] M. P. Lilly, K. B. Cooper, J. P. Eisenstein, L. N. Pfeiffer, and K. W. West, Evidence for an Anisotropic State of Two-Dimensional Electrons in High Landau Levels, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 394 (1999).
- [77] M. P. Lilly, K. B. Cooper, J. P. Eisenstein, L. N. Pfeiffer, and K. W. West, Anisotropic

- States of Two-Dimensional Electron Systems in High Landau Levels: Effect of an In-Plane Magnetic Field, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 824 (1999).
- [78] W. Pan, R. R. Du, H. L. Stormer, D. C. Tsui, L. N. Pfeiffer, K. W. Baldwin, and K. W. West, Strongly Anisotropic Electronic Transport at Landau Level Filling Factor $\nu = 9/2$ and $\nu = 5/2$ under a Tilted Magnetic Field, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 820 (1999).
- [79] S. A. Grigera, P. Gegenwart, R. A. Borzi, F. Weickert, A. J. Schofield, R. S. Perry, T. Tayama, T. Sakakibara, Y. Maeno, A. G. Green, and A. P. Mackenzie, Disorder-Sensitive Phase Formation Linked to Metamagnetic Quantum Criticality, *Science* **306**, 1154 (2004).
- [80] S. A. Grigera, R. A. Borzi, A. P. Mackenzie, S. R. Julian, R. S. Perry, and Y. Maeno, Angular dependence of the magnetic susceptibility in the itinerant metamagnet $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$, *Phys. Rev. B* **67**, 214427 (2003).
- [81] P. Gegenwart, F. Weickert, M. Garst, R. S. Perry, and Y. Maeno, Metamagnetic Quantum Criticality in $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ Studied by Thermal Expansion, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 136402 (2006).
- [82] A. W. Rost, R. S. Perry, J.-F. Mercure, A. P. Mackenzie, and S. A. Grigera, Entropy Landscape of Phase Formation Associated with Quantum Criticality in $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$, *Science* **325**, 1360 (2009).
- [83] C. J. Halboth and W. Metzner, d-Wave Superconductivity and Pomeranchuk Instability in the Two-Dimensional Hubbard Model, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 5162 (2000).
- [84] C. J. Halboth and W. Metzner, Renormalization-group analysis of the two-dimensional Hubbard model, *Phys. Rev. B* **61**, 7364 (2000).
- [85] C. Honerkamp, M. Salmhofer, N. Furukawa, and T. M. Rice, Breakdown of the Landau-Fermi liquid in two dimensions due to umklapp scattering, *Phys. Rev. B* **63**, 035109 (2001).
- [86] W. Metzner, M. Salmhofer, C. Honerkamp, V. Meden, and K. Schönhammer, Functional renormalization group approach to correlated fermion systems, *Rev. Mod. Phys.* **84**, 299 (2012).
- [87] H. Yamase and H. Kohno, Instability toward Formation of Quasi-One-Dimensional Fermi Surface in Two-Dimensional t-J Model, *J. Phys. Soc. Jpn.* **69**, 2151 (2000).
- [88] I. Khavkine, C.-H. Chung, V. Oganesyan, and H.-Y. Kee, Formation of an electronic nematic phase in interacting fermion systems, *Phys. Rev. B* **70**, 155110 (2004).
- [89] H.-Y. Kee and Y. B. Kim, Itinerant metamagnetism induced by electronic nematic order, *Phys. Rev. B* **71**, 184402 (2005).
- [90] H. Yamase, V. Oganesyan, and W. Metzner, Mean-field theory for symmetry-breaking Fermi surface deformations on a square lattice, *Phys. Rev. B* **72**, 035114 (2005).
- [91] K. Kawaguchi, Y. Yamakawa, M. Tsuchiizu, and H. Kontani, Competing Unconventional Charge-Density-Wave States in Cuprate Superconductors: Spin-Fluctuation-

- Driven Mechanism, *J. Phys. Soc. Jpn.* **86**, 063707 (2017).
- [92] H. Yamase, Spontaneous Fermi surface symmetry breaking in bilayer systems, *Phys. Rev. B* **80**, 115102 (2009).
- [93] H. Yamase, Self-Masking of Spontaneous Symmetry Breaking in Layer Materials, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 116404 (2009).
- [94] Y. K. Kato, R. C. Myers, A. C. Gossard, D. D. Awschalom, Observation of the Spin Hall Effect in Semiconductors, *Science* **306**, 1910 (2004).
- [95] J. Wunderlich, B. Kaestner, J. Sinova, and T. Jungwirth, Experimental Observation of the Spin-Hall Effect in a Two-Dimensional Spin-Orbit Coupled Semiconductor System, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 047204 (2005).
- [96] Z. Hiroi, J. Yamaura, T. C. Kobayashi, Y. Matsubayashi, and D. Hirai, Pyrochlore Oxide Superconductor $\text{Cd}_2\text{Re}_2\text{O}_7$ Revisited, *J. Phys. Soc. Jpn.* **87**, 024702 (2018).
- [97] J. W. Harter, Z. Y. Zhao, J.-Q. Yan, D. G. Mandrus, D. Hsieh, A parity-breaking electronic nematic phase transition in the spin-orbit coupled metal $\text{Cd}_2\text{Re}_2\text{O}_7$, *Science* **356**, 295-299 (2017).
- [98] Y. Sato, S. Kasahara, H. Murayama, Y. Kasahara, E.-G. Moon, T. Nishizaki, T. Loew, J. Porras, B. Keimer, T. Shibauchi and Y. Matsuda, Thermodynamic evidence for a nematic phase transition at the onset of the pseudogap in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$, *Nat. Phys.* **13**, 1074 (2017).
- [99] T. Wu, H. Mayaffre, S. Krämer, M. Horvatić, C. Berthier, W. N. Hardy, R. Liang, D. A. Bonn, and M.-H. Julien, Incipient charge order observed by NMR in the normal state of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$, *Nature Commun.* **6**, 6438 (2015).
- [100] Y. Lubashevsky, L. Pan, T. Kirzhner, G. Koren, and N. P. Armitage, Optical Birefringence and Dichroism of Cuprate Superconductors in the THz Regime, *Phys. Rev. Lett.* **112**, 147001 (2014).
- [101] L. Zhao, C. A. Belvin, R. Liang, D. A. Bonn, W. N. Hardy, N. P. Armitage, and D. Hsieh, A global inversion-symmetry-broken phase inside the pseudogap region of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$, *Nat. Phys.* **13**, 250-254 (2017).
- [102] J. G. Bednorz, and K. A. Müller, Possible high T_c superconductivity in the Ba – La – Cu – O system, *Z. Phys. B* **64**, 189 (1986).
- [103] S. H. Pan, E. W. Hudson, K. M. Lang, H. Eisaki, S. Uchida, and J. C. Davis, Imaging the effects of individual zinc impurity atoms on superconductivity in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$, *Nature* **403**, 746 (2000).
- [104] D. A. Wollman, D. J. Van Harlingen, W. C. Lee, D. M. Ginsberg, and A. J. Leggett, Experimental determination of the superconducting pairing state in YBCO from the phase coherence of YBCO-Pb dc SQUIDS, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 2134 (1993).
- [105] K. M. Shen, F. Ronning, D. H. Lu, F. Baumberger, N. J. C. Ingle, W. S. Lee, W.

- Meevasana, Y. Kohsaka, M. Azuma, M. Takano, H. Takagi, Z.-X. Shen, Nodal Quasiparticles and Antinodal Charge Ordering in $\text{Ca}_{2-x}\text{Na}_x\text{CuO}_2\text{Cl}_2$, *Science* **307**, 901-904 (2005).
- [106] D. R. Harshman, A. P. Mills, Jr., Concerning the nature of high- T_c superconductivity: Survey of experimental properties and implications for interlayer coupling, *Phys. Rev. B* **45**, 10684 (1992).
- [107] W. W. Warren, Jr., R. E. Walstedt, G. F. Brennert, R. J. Cava, R. Tycko, R. F. Bell, and G. Dabbagh, Cu spin dynamics and superconducting precursor effects in planes above T_c in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.7}$, *Phys. Rev. Lett.* **62**, 1193 (1989).
- [108] R. E. Walstedt, W. W. Warren, Jr., R. F. Bell, R. J. Cava, G. P. Espinosa, L. F. Schneemeyer, and J. V. Waszczak, ^{63}Cu NMR shift and linewidth anomalies in the $T_c=60$ K phase of Y-Ba-Cu-O, *Phys. Rev. B* **41**, 9574(R) (1990).
- [109] B. Fauqué, Y. Sidis, V. Hinkov, S. Pailhès, C. T. Lin, X. Chaud, and P. Bourges, Magnetic Order in the Pseudogap Phase of High- T_c Superconductors, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 197001 (2006).
- [110] H. A. Mook, Y. Sidis, B. Fauqué, V. Balédent, and P. Bourges, Observation of magnetic order in a superconducting $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.6}$ single crystal using polarized neutron scattering, *Phys. Rev. B* **78**, 020506(R) (2008).
- [111] L. Mangin-Thro, Y. Sidis, A. Wildes, and P. Bourges, Intra-unit-cell magnetic correlations near optimal doping in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.85}$, *Nature Commun.* **6**, 7705 (2015).
- [112] R. Daou, J. Chang, David LeBoeuf, Olivier Cyr-Choinière, Francis Laliberté, Nicolas Doiron-Leyraud, B. J. Ramshaw, Ruixing Liang, D. A. Bonn, W. N. Hardy, and Louis Taillefer, Broken rotational symmetry in the pseudogap phase of a high- T_c superconductor, *Nature* **463**, 519-522 (2010).
- [113] Arkady Shekhter, B. J. Ramshaw, Ruixing Liang, W. N. Hardy, D. A. Bonn, Fedor F. Balakirev, Ross D. McDonald, Jon B. Betts, Scott C. Riggs, and Albert Migliori, Bounding the pseudogap with a line of phase transitions in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\sigma}$, *Nature* **498**, 75-77 (2013).
- [114] Jing Xia, Elizabeth Schemm, G. Deutscher, S. A. Kivelson, D. A. Bonn, W. N. Hardy, R. Liang, W. Siemons, G. Koster, M. M. Fejer, and A. Kapitulnik Polar Kerr-Effect Measurements of the High-Temperature $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\sigma}$ Superconductor: Evidence for Broken Symmetry near the Pseudogap Temperature, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 127002 (2008).
- [115] S. Blanco-Canosa, A. Frano, E. Schierle, J. Porras, T. Loew, M. Minola, M. Bluschke, E. Weschke, B. Keimer, and M. Le Tacon, Resonant x-ray scattering study of charge-density wave correlations in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$, *Phys. Rev. B* **90**, 054513 (2014).
- [116] M. Hücker, N. B. Christensen, A. T. Holmes, E. Blackburn, E. M. Forgan, Ruixing Liang, D. A. Bonn, W. N. Hardy, O. Gutowski, M. v. Zimmermann, S. M. Hayden, and J. Chang,

Competing charge, spin, and superconducting orders in underdoped $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$, Phys. Rev. B **90**, 054514 (2014).

- [117] A. V. Maharaj, P. Hosur, and S. Raghu, Crisscrossed stripe order from interlayer tunneling in hole-doped cuprates, Phys. Rev. B **90**, 125108 (2014).