

Ce系の多重極相互作用と電子秩序

東北大学 理学部 倉本義夫¹

希土類元素 R を含む立方晶ホウ化物 RB_6 では、R に含まれる f 電子の自由度である軌道とスピンがお互いに影響しあい、磁気秩序を伴わない軌道秩序や、複雑な磁気構造が現れる。 RB_6 のうち、R あたり 1 個の f 電子を持つ CeB_6 が最も詳細に研究されている。 CeB_6 の結晶場基底状態 Γ_8 は 4 重に縮退している。これまでの CeB_6 における相互作用の研究では、大川の $SU(4)$ モデル [1] が先駆的である。大川は、4 重縮退した状態の交換が状態によらず一定であるとする仮定をおいて、 CeB_6 の II 相の磁場中相図の特徴を説明した。ス波ら [2] は、最隣接サイトが 4 回軸対称性を持つことに注目して微視的分析を行い、大川のモデルを一般化している。これらの研究では、Ce モーメント間の相互作用が $4f^0$ の中間状態を介すると仮定している。このため有効スピン間の相互作用には異方性が現れない。一方、 CeB_6 の III 相の磁気パターンを説明するために、楠瀬・倉本は、異方的相互作用特に擬双極子相互作用の重要性を指摘している [3]。そこで、異方的相互作用が出現する微視的機構に興味がある。本講演では、 CeB_6 における III 相の特徴を説明し、サイト間相互作用に関する最近の結果 [4] を報告した。

CeB_6 の II 相は 3.2K 以下で現れ、4f 電子の四重極が $2\pi/a$ (a : 格子定数) を単位として $(1/2, 1/2, 1/2)$ の波数と Γ_5 対称性で秩序化する。温度を 2.4K 以下にすると、さらに 2 次転移で III 相に秩序化する。III 相の磁気的秩序パラメータが小さい領域で、Ginzburg-Landau(GL) 流の分子場理論を展開すると、有効ハミルトニアンのパラメータの大きさと秩序パターンの関係が求まる。楠瀬・倉本は、このようにして III 相の $(1/4, 1/4, 1/2)$ 構造が安定化するためには、次隣接サイト間に擬双極子相互作用があればよいことを論じた [3]。すなわち擬双極子相互作用の形を、

$$K_{ij}^{\Gamma\gamma\gamma'} = -K_{\Gamma}(\delta^{\gamma\gamma'} - 3n_{ij}^{\gamma}n_{ij}^{\gamma'})/12, \quad (1)$$

とする。ここで、 n_{ij} はサイト i, j を結ぶ方向の単位ベクトル、 γ, γ' は x, y, z 成分をあらわす。 Γ は立方晶点群の表現を意味し、 $\Gamma_{4u1}, \Gamma_{4u2}$ は双極子と八極子の混ざったもの、 Γ_{5u} は純粋な八極子に対応する。 K_{Γ} が正であれば、 n_{ij} 方向にはモーメントがそろいやすく、それに垂直に向いたモーメントは反平行になったほうがエネルギーが下がる。これは電気双極子の配置にともなうエネルギーと類似しているので擬双極子と呼ぶ。一方、 K_{Γ} が負であれば、 n_{ij} 方向に反平行のモーメントが好まれる。

III 相の配置は $K_{4u} > 0$, $K_{5u} < 0$ で好まれる。実験的には、異なるパターンの転移が 1.5T 程度の磁場で起こるので、両者のエネルギー差は単位格子あたり 1K 程度と、非常に

¹E-mail: kuramoto@cmpt.phys.tohoku.ac.jp

小さいはずである。これから、 K_{4u} と $|K_{5u}|$ は同程度の大きさであることが推察される。GL 理論から、おおむね実験を説明するパラメータが妥当な範囲で存在することが確認された。また、 $\text{Ce}_{0.75}\text{La}_{0.25}\text{B}_6$ で観測されている IV 相は、 CeB_6 との微妙なパラメータの違いで Γ_{5u} の八極子が安定化されている状態と解釈される [3]。

異方的交換相互作用が出現するためにはスピン軌道相互作用が重要である。Anderson model のように混成を介して局在電子と伝導電子が相互作用する場合には、中間状態に異方性がないとこの効果が現れない。斯波らの理論では [2]、中間状態として $4f^0$ のみが入れられた結果、有効スピン間の相互作用は等方的になっている。一方、光電子分光逆光電子分光などによって、 $4f^0, 4f^2$ の準位を観測すると、フェルミ面をはさんで同程度の励起エネルギー (2 ~ 3eV) を持っている。そこで我々は、 $4f^2$ の中間状態として Hund 則基底状態 $J = 4$ を考慮した計算を行った [4]。これは異方性を最も強調した結果になるはずである。この要素を含んだモデルとして以下のような最も単純なものを採用した。伝導帯は平面波とし、f 電子とは等方的な混成相互作用 V をする。f 電子の基底状態は $4f^1, J = 5/2$ であり、混成により f 電子が出ていけば $4f^0$ 、伝導電子が 4f 殻に入ってくれば $4f^2, J = 4$ の状態になる。中間状態の最低励起エネルギーをそれぞれ E_0, E_2 とすると、サイト間相互作用は $V^4/(E_i E_j)$ ($i, j = 0, 2$) でスケールされる。この因子を取り去った残りの部分は 4f 殻の対称性を反映した行列要素で決められる。詳細な計算の結果、 CeB_6 の最隣接サイト及び次隣接サイト間の相互作用として、 K_{4u} と K_{5u} に対応するサイト間相互作用が、等方的な相互作用とあまり変わらない大きさで現れることがわかった [4]。

最近我々は RB_6 系で実現する $(1/4, 1/4, 1/2)$ 長周期構造を説明するには、バンド構造の特徴特にバンド間遷移による RKKY 型相互作用が重要であることを指摘している [5]。この構造は、軌道自由度のない GdB_6 でも観測されている。さらにサイト間相互作用には、混成の高次効果から来るものとともに、4f-5d のフント則交換相互作用に由来するものがある。特に GdB_6 などでは、後者が支配的と考えられる。 RB_6 系の秩序温度の系統性を de Gennes 則やその一般化で理解することが難しいのは、混成と交換の両方の相互作用が効いているためと考えられる。これらについて、直感的な描像を作ることができれば、軌道自由度の効果についても理解が深まると期待される。

参考文献

- [1] F. J. Ohkawa: J. Phys. Soc. Jpn. **52** (1983) 3897; *ibid.* **54** (1985) 3909.
- [2] H. Shiba, O. Sakai and R. Shiina: J. Phys. Soc. Jpn. **68** (1999) 1988.
- [3] H. Kusunose and Y. Kuramoto: J. Phys. Soc. Jpn. **70** (2001) 1751.
- [4] G. Sakurai and Y. Kuramoto, 8aXC3 at the Annual meeting of the Physical Society of Japan, September, 2002.
- [5] Y. Kuramoto and K. Kubo: J. Phys. Soc. Jpn. **71** (2002) 2633 とその引用文献。