多極子の変遷とこれから

明治大学理工学部　楠瀬博明

1.　はじめに

本新学術領域はキーワードとして「J-Physics」と「多極子伝導系」を掲げている。前者は多分に士気高揚の意味をもつとして、本題の後者について領域全体で概念の共有を促すようなものを書きなさい、というのがニュースレター編集委員からのお達しである。

「多極子伝導系」と聞いて思い浮かべるものは人それぞれであろうし、そもそも多極子がなぜそれほど重要なのか、と思われる方もおられるかも知れない。これまで「高次」という側面を強調しすぎたために、多極子というとなにやらオタク的な雰囲気が漂い、一部のマニアの研究対象のように考えられてきたきらいもある。本小稿では、多極子という見方が電気や磁気がからむ物性現象を一般的かつ包括的に取り扱うことのできる極めて有用な概念であることをお伝えすることで、そのような見方を足がかりにして、従来の謎に迫る新たな視点と新しい物性現象の開拓に繋がるきっかけを提供できればと考えている。

2.　電気磁気特性と多極子展開

固体物性とくに凝縮電子系研究の一つの醍醐味は、物質中の電子が持ち得る多様な自由度が析出する物質や現象を見出し、理解し、操ることであろう。このような動機づけのもとで、電荷偏極による誘電体、電荷の流れによる電気伝導、環状電流による磁性などの巨視的な古典電磁気学に留まることなく、電子軌道やスピンという物質中電子の基本属性を背景とした電気磁気特性の微視的な理解が進んできた。

物質中のあらゆる静的な電気磁気特性は、原理的には、スカラーポテンシャル $\phi(\boldsymbol{r})$ とベクトルポテンシャル $\boldsymbol{A}(\boldsymbol{r})$ の空間分布によって表現できるはずであり、それらの空間分布を特徴づける記述法が以下の多極子展開である。

$$\phi(\boldsymbol{r}) = \sum_{lm} a_l Q_{lm} \frac{Y_{lm}(\hat{\boldsymbol{r}})}{r^{l+1}},$$

$$\boldsymbol{A}(\boldsymbol{r}) = \sum_{lm} \left(b_l M_{lm} \frac{\boldsymbol{Y}^{l}_{lm}(\hat{\boldsymbol{r}})}{r^{l+1}} + c_l T_{lm} \frac{\boldsymbol{Y}^{l+1}_{lm}(\hat{\boldsymbol{r}})}{r^{l+2}} \right).$$

ここで、$Y_{lm}(\hat{\boldsymbol{r}})$ および $\boldsymbol{Y}^{l'}_{lm}(\hat{\boldsymbol{r}})$ $(l' = l, l \pm 1)$ は球面調和関数とベクトル球面調和関数であり、展開係数

表 1　空間および時間反転に対する変換性。ランク l の多極子 (テンソル) は「電荷」ρ_α ($\alpha = \mathrm{e, m, t}$) と l 個の座標成分 $r_i r_j r_k \cdots$ との積から構成される。

物理量	記号	空間反転	時間反転	備考
電荷	ρ_e	$+$	$+$	1
磁荷	ρ_m	$-$	$-$	$i\,\boldsymbol{e}_x \cdot (\boldsymbol{e}_y \times \boldsymbol{e}_z)$
トロイダル磁荷	ρ_t	$+$	$-$	i
座標成分	r_i	$-$	$+$	$= x, y, z$
電気多極子	Q_{lm}	$(-)^l$	$+$	極性 (真性)
磁気多極子	M_{lm}	$(-)^{l+1}$	$-$	軸性 (擬)
トロイダル多極子	T_{lm}	$(-)^l$	$-$	極性 (真性)
スカラーポテンシャル	$\phi(\boldsymbol{r})$	$+$	$+$	電気単極子 (電荷)
ベクトルポテンシャル	$\boldsymbol{A}(\boldsymbol{r})$	$-$	$-$	トロイダル双極子 (電流密度)
電場	$\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r})$	$-$	$+$	電気双極子
磁場	$\boldsymbol{B}(\boldsymbol{r})$	$+$	$-$	磁気双極子
球面調和関数	$Y_{lm}(\hat{\boldsymbol{r}})$	$(-)^l$	$+$	
ベクトル球面調和関数	$\boldsymbol{Y}^l_{lm}(\hat{\boldsymbol{r}})$	$(-)^l$	$+$	
	$\boldsymbol{Y}^{l\pm1}_{lm}(\hat{\boldsymbol{r}})$	$(-)^{l+1}$	$+$	

Q_{lm}, M_{lm}, T_{lm} が多極子である [*1]。a_l, b_l, c_l は多極子の規格化に応じた便宜上の係数である。この展開式から分かるように、多極子の有無が空間分布の異方性を特徴づけている。

多極子を用いた表現法が一般的に有用であることは、ミクロからマクロまで様々なスケールの現象に多極子が現れることからも分かるだろう。例えば、2015 年 9 月 14 日に LIGO で観測された重力波は四極子の波動であり、陽子の直径の 1 万分の 1 という極微の時空歪みを捉えたものである [1]。重力子が素粒子の中では比較的大きなスピン 2 を持つ点も興味深い。他方、2012 年に太陽の磁極が四極子構造に遷移しつつあることが発見され話題となっている [2]。また、人工的な電磁媒体であるメタマテリアルでは、トロイダル多極子の観測実験が進行中である [3]。時には異なるスケールで行われている研究を眺めてみることは、ミクロな多極子の研究にとっても有益かも知れない。

多極子は空間反転と時間反転に対する性質の違いによって、電気多極子 Q_{lm}、磁気多極子 M_{lm}、トロイダル多極子 T_{lm} に分類される [*2]。表 1 に関連する物理量の空間と時間反転に対する変換性をまとめた。通常の電気多極子の構成法と同じように、時空反転に対して異なる性質をもつ「電荷」ρ_α ($\alpha = \mathrm{e, m, t}$) を空間的に配置することで高次の多極子を構成できる。図 1 に示すように、多極子の変換性はそれぞれの「電荷」の変換性を用いることで求められる。

結晶中では一般に球対称性は失われるため、多極子の分類も回転群の既約表現とその成分 (lm) ではな

[*1] $\boldsymbol{\nabla} \cdot \boldsymbol{A} = 0$ のゲージを用いており、このゲージではベクトル球面調和関数の $\boldsymbol{Y}^{l-1}_{lm}(\hat{\boldsymbol{r}})$ 成分は現れない。

[*2] 空間反転に対して軸性の電気トロイダル多極子 G_{lm} (環状に並んだ電気双極子など) というものも考えられるが、磁荷流が存在しないことを反映して多極子展開には登場しない。同様に、磁気単極子やトロイダル単極子も多極子展開の表式には現れない。

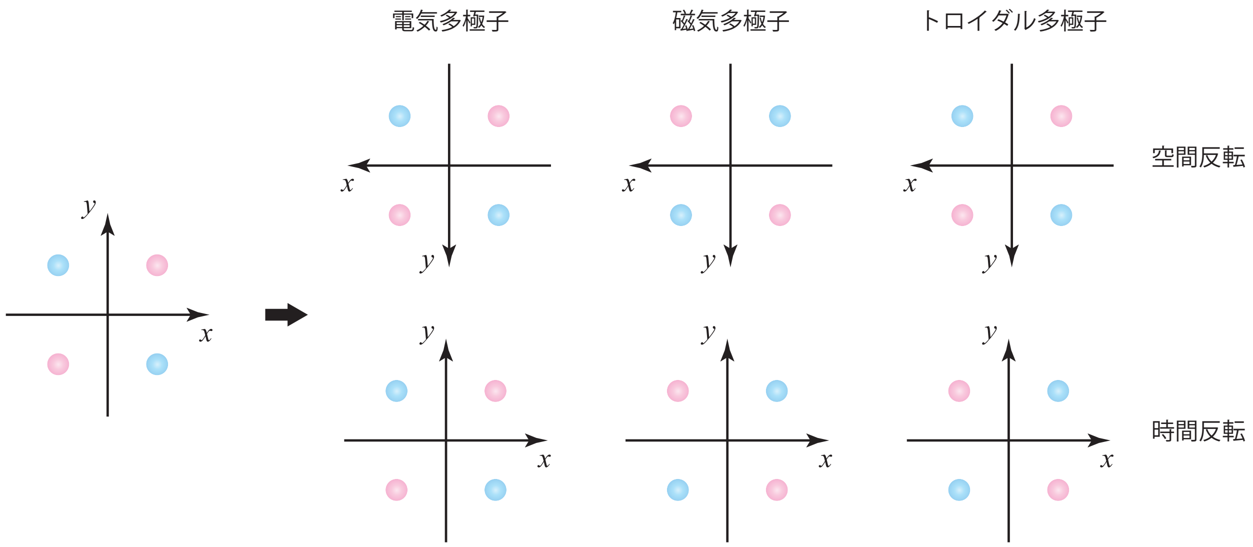

図 1　空間および時間反転による多極子の変換の様子。赤青丸は正負の「電荷」ρ_α (α = e, m, t) を表し、表 1 の時空反転性に従って変換する。

く、点群 ($\Gamma\gamma$) を用いて行われる。多くの場合、時空反転に対する分類法は点群の下でもそのまま有効である。

3.　非従来型多極子

ミクロな多極子自由度が秩序化することで自発的に対称性が破れて、結晶がもつ対称性とは異なる異方的な $\phi(\boldsymbol{r})$ や $\boldsymbol{A}(\boldsymbol{r})$ の空間分布が現れる。対称性の破れ方に応じて異なった電磁応答が現れるため、秩序下では無秩序相とは全く異なる物性が期待できる。強的な秩序の下では、一様な外場に対して一様な応答が生じるため、特に興味が持たれている。電気磁気応答を示すマルチフェロイクスがその代表例である [4]。

このような微視的多極子秩序の研究では、一つの原子サイトに局在した偶パリティの多極子 (表 1 における偶数次の Q_{lm} と奇数次の M_{lm}) がこれまで主な対象であった [5]。実は、偶数次の T_{lm} も偶パリティであるが、s-d 軌道のように角運動量の大きさが異なる状態空間でのみ活性となるため、本格的に検討されてこなかった。さらに、空間反転対称性がない物質や蜂の巣構造の各原子位置のように反転中心ではないサイトにおいては、奇パリティの多極子（奇数次の Q_{lm}、T_{lm}、偶数次の M_{lm}) が活性となる (図 2(a))。これらの多極子はこれからの研究対象である [6]。なかでも T_{1m} は時空反転の両方に対して奇の性質をもつベクトルで、電気現象と磁気現象をつなぐ要と言える。この対称性はベクトルポテンシャルのそれと同じであり、バンド電子に対して一種のゲージ場として作用するという点も興味深い。このようなゲージ場は (スピン) ホール効果等における異常項の起源であり、スピン軌道相互作用の一つの重要な帰結である。

反転対称性のない系において超伝導が発見されたときの Saxena らの解説には “($CePt_3Si$) is the first example of a magnetic superconductor that has no mirror symmetry, an observation that will lead

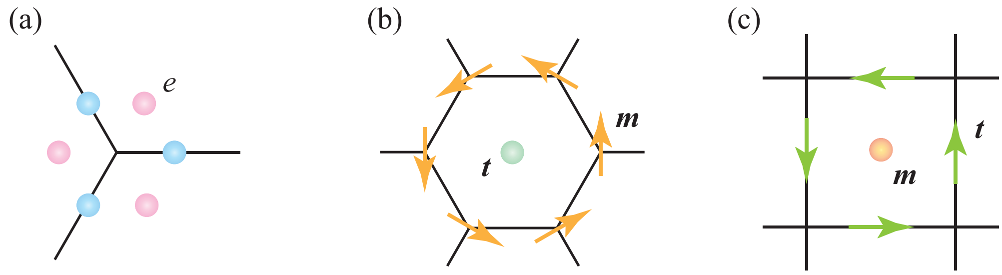

図 2　非従来型多極子の例。(a) 奇パリティ多極子 (電気八極子)、(b) 拡張多極子 (トロイダル双極子)、(c) 遍歴系のフラックス状態 (トロイダル四極子)。

to a re-examination of our current understanding of these phenomena.” という記述がある [7]。多極子研究にも同様の教訓が当てはまるであろう。

一方、複数の原子からなるクラスター上に分布する電荷や磁気モーメントを組み合わせた拡張多極子 (拡がった多極子) という見方も有用である。このような見方は、パイロクロア等における磁気モノポールやスカラー (ベクトル) カイラリティの議論に既に現れていた [8]。図 2(b) に示すマルチ Q の反強磁性秩序は、拡張多極子の視点では面に垂直なトロイダル双極子の一様秩序と見なすことができる。トロイダル双極子という見方によって新しい電流磁気効果を明瞭に予見できるという御利益がある。実際に UNi_4B において、予見した電流磁気効果が見出されたとの報告があり、目下、詳細に検討中である [9]。このように、拡張多極子は一見すると従来型の秩序であるが、見方を変えることで新しい物性を予見できる場合がある。後述するが、銅酸化物高温超伝導体で話題になった遍歴秩序の反強フラックス状態 (図 2(c)) は、拡張多極子の視点では反強トロイダル四極子秩序に分類される。その他、時折話題にのぼるスピン・ネマティック秩序は (拡張された) 電気四極子秩序の一種である。

4.　遍歴系の多極子秩序

次に遍歴電子系の秩序について多極子の観点から整理してみよう。一体の秩序変数に限ると電子・ホールペアの秩序変数 (一般化された密度波) は次のように表すことができる。

$$\langle a^{\dagger}_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{q}\mu} a_{\boldsymbol{k}\nu} \rangle = \delta_{\boldsymbol{q},\boldsymbol{Q}} \sum_{\gamma} \eta_{\gamma}\, g^{(\gamma)}_{\mu\nu}(\boldsymbol{k}).$$

ここで、$\boldsymbol{Q}$ は秩序ベクトル、η_γ は既約表現 Γ の成分 γ の秩序変数の大きさ、$g^{(\gamma)}_{\mu\nu}(\boldsymbol{k})$ は形状因子 (既約表現の基底) を表す。μ, ν はスピンや軌道をひとまとめにしたラベルである。多極子は端的にいえば有限の角運動量を持った状態のことであり、遍歴系の秩序変数において角運動量が生じる原因は、軌道やスピン μ, ν と波数依存性 $\boldsymbol{k}$ に求められる。秩序変数の既約表現 Γ は、直積を $\Gamma_\mu \otimes \Gamma_\nu \otimes \Gamma_{\boldsymbol{k}} = \sum_{a\oplus} \Gamma_a$ のように簡

約化したとき現れる既約表現 Γ_a のいずれかである[*3]。$\boldsymbol{k}$ 依存性をもつ秩序変数を超伝導の場合にならって異方的な密度波とよぶ。

例えば、$Sr_3Ru_2O_7$ で議論されている Pomeranchuk 不安定性と呼ばれる秩序は、Fermi 面の異方的な不安定性によって生じ、$g^{(\gamma)}_{\mu\nu}(\boldsymbol{k}) \propto (\cos k_x - \cos k_y)\delta_{\mu,\nu}\delta_{\boldsymbol{Q},0}$ によって表現される。一方、同じ物質で提案されている O_{22} の四極子秩序は、$\boldsymbol{k}$ 依存性のない $g^{(\gamma)}_{\mu\nu}(\boldsymbol{k}) \propto (O_{22})_{\mu,\nu}\delta_{\boldsymbol{Q},0}$ によって表される。これらの秩序は、4 回から 2 回への対称性の低下という側面を強調して (電子) ネマティック秩序と呼ばれる場合もある。このように、同じ既約表現の多極子であっても、有限の角運動量が生じる原因の違いによって、別の名称が与えられている。これらはすべて同じ既約表現 (電気四極子) に属するので、単一成分の純粋な秩序だけが生じることはないが、主要な成分がどれかによって現れる物性は異なってくる。

この他、正方格子では前述の反強フラックス状態と呼ばれる秩序も提案されている。この秩序は $g^{(\gamma)}_{\mu\nu}(\boldsymbol{k}) \propto i(\cos k_x - \cos k_y)\delta_{\mu,\nu}\delta_{\boldsymbol{Q},(\pi,\pi)}$ と表現される。因子 i から生じる位相により図 2(c) の緑矢印で示したような自発カレント (トロイダルモーメント) が生じており[*4]、正方格子の中心に交替的に磁束が貫いているような状態になっている。この秩序変数は、四極子の角度依存性を持ち時間反転が奇、空間反転が偶であることからトロイダル四極子に分類される。詳しくは文献 [10] を参照されたい。

最後に、超伝導秩序について述べる。秩序変数は次のように書ける。

$$\langle a_{\boldsymbol{q}-\boldsymbol{k}\mu} a_{\boldsymbol{k}\nu} \rangle = \delta_{\boldsymbol{q},\boldsymbol{Q}} \sum_{\gamma} \eta_\gamma \, g^{(\gamma)}_{\mu\nu}(\boldsymbol{k}).$$

軌道自由度がない場合、μ, ν は時間反転ペアの「スピン」を意味し、一重項ペアは $\sum_\gamma \eta_\gamma g^{(\gamma)}_{\mu\nu} = \Delta(\boldsymbol{k})(i\sigma^y)_{\mu\nu}$、三重項ペアは $\sum_\gamma \eta_\gamma g^{(\gamma)}_{\mu\nu} = \boldsymbol{d}(\boldsymbol{k})\cdot(i\boldsymbol{\sigma}\sigma^y)_{\mu\nu}$ のように表されるのが一般的である。これまでの分類では、μ, ν の軌道依存性は考慮されておらず、秩序変数の対称性はスピン μ, ν と $\boldsymbol{k}$ の直積の簡約から決まる既約表現で分類されていた。実際の超伝導は多軌道からなる Fermi 面で起こる場合が多いことから、ペアを構成する粒子の軌道対称性を考慮することの重要性が指摘されており、μ, ν の軌道依存性を含めた再分類が行われている [11]。

このように、一般化された密度波と超伝導は多極子の視点で整理するとき、多くの類似点がある。ただし、注意すべき点として、密度波は様々な秩序ベクトル $\boldsymbol{Q}$ を持ち得るが、通常 $\boldsymbol{k}$ 依存性を持たないのに対して、超伝導は $\boldsymbol{Q} = 0$ の場合が一般的であり $\boldsymbol{k}$ 依存性を持つ場合が多い。強相関電子系に特徴的な局所的斥力は、超伝導チャンネルに対しては局所的斥力として作用するのに対して、密度波チャンネルでは局所的引力として作用する場合が多いという事実がこの差異を生んでいる。従って、通常の状況で起こりやすい秩序に打ち勝って非従来型の秩序を実現するには、それらに有利な相互作用構造をもつように一捻り加える必要がある。

[*3] $\boldsymbol{Q} \neq 0$ の場合はそれほど単純ではない場合もあるだろう。既約分解の簡単な例として、SU(2) 対称性の下での二つのスピン 1/2 の合成、$D_{1/2} \otimes D_{1/2} = D_0 \oplus D_1$ がある。

[*4] 正味の伝導電流が生じる訳ではない事に注意する。

5. おわりに

本稿では、これまでに提案されてきた様々な exotic 秩序、非従来型秩序、超伝導が多極子の観点から整理できる点を強調した。現状では、同じ既約表現に属する様々な秩序が色々な名称で独立に議論されていて、それらの間にある共通点を見落としていることも多い。対称性は、物性現象における様々な選択則を支配するため、同じ対称性のものを分類・整理することは重要では無いかと思う。J-Physics をきっかけとして、過去の提案を見直して整理してみると、新たな道が開けるのではないかと思う今日この頃である。

本稿は速水賢、求幸年両氏との共同研究に基づくものです。また、柳有起、有馬孝尚、網塚浩、柳瀬陽一、播磨尚朝各氏をはじめ多くの方々との有益な議論に感謝致します。

参考文献

[1] http://natgeo.nikkeibp.co.jp/atcl/news/16/021200053/

[2] 常田佐久,「ひので」による今回の観測の意義と最近の太陽活動について (国立天文台) 2012.4.19.

[3] N. Papasimakis, V. A. Fedotov, V. Savinov, T. A. Raybould, and N. I. Zheludev, Nat. Mater. **15**, 263 (2016).

[4] 有馬孝尚,「マルチフェロイクス — 物質中の電磁気学の新展開 —」共立出版, (2014).

[5] 例えば、楠瀬博明,「多極子入門」物性研究 **97**, 730 (2012); Y. Kuramoto, H. Kusunose, and A. Kiss, J. Phys. Soc. Jpn. **78**, 072001 (2009).

[6] 速水賢, 楠瀬博明, 求幸年,「遍歴電子系における自発的な空間反転対称性の破れ — 非従来型多極子秩序とスピン・バレー分裂、非対角応答 —」固体物理 **50**, 217 (2015).

[7] S. S. Saxena and P. Monthoux, Nature **427**, 799 (2004).

[8] D. Khomskii, Physics **2**, 20 (2009).

[9] 斉藤開, 網塚浩他, 日本物理学会第 71 回年次大会, 20pBL10 (2016).

[10] 柳有起,「実験家向けの多極子入門」J-Physics 若手夏の学校テキスト (2016).

[11] T. Nomoto, K. Hattori, and H. Ikeda, arXiv:1607.02716.