

磁気八極子秩序 — 共鳴 X 線散乱の理論的解析

東北大学大学院理学研究科

楠瀬博明、倉本義夫

Abstract

$Ce_xLa_{1-x}B_6$ は、秩序変数を同定できない奇妙な相を持つことが知られていた。我々は最近の共鳴 X 線散乱実験を理論的に解析することにより、隠れた秩序変数は磁気八極子の反強的整列であることを立証した。磁気八極子や電気四極子などの多極子モーメントは、縮退した局在電子軌道が存在する場合に生ずる。本稿では、高次モーメントの秩序状態が示す物性について述べ、八極子秩序の回折による直接観測にいたる背景を説明する。

1. はじめに

磁石の存在は古代ギリシャにおいて既に知られていたが、その微視的な起源の解明は量子力学の誕生を待たねばならなかった。現在では、かなり複雑な磁気構造でも中性子散乱を用いて詳細な解析ができるようになってきている。通常、強磁性や反強磁性は電子の磁気双極子が秩序化した相を意味する。それに対して、結晶格子の周期性と異なる周期を持つ電荷密度波などの秩序は、電子の持つ電気単極子の秩序化とみなせる。このように、よく知られた秩序を多極子の秩序という視点から眺めると、四極子や八極子など高次の多極子秩序の可能性が浮かび上がってくる。実際、 CeB_6 や DyB_2C_2 では、電子雲の歪みが交互に並んだ反強的電気四極子秩序の存在が確認されている [1]。四極子秩序は、Mn などの遷移金属化合物系では、軌道秩序と呼ばれている [2]。さらに新しい研究例として NpO_2 , $SmRu_4P_{12}$ などでは、磁気八極子秩序の可能性が議論されている [3,4]。本稿では、最近磁気八極子秩序が確認された $Ce_xLa_{1-x}B_6$ を例にとり、多極子秩序がもたらす物性の特徴を説明する。磁気八極子秩序の存在は、共鳴 X 線散乱の超格子散乱強度に現れる異常な角度依存性を理論的に解析することにより明らかにされた。

一般に、多極子秩序を直接観測することは、磁気秩序の場合と比べて遙かに困難である。一方、多極子秩序が相転移である以上、比熱の異常は必ず存在する。実際、明白な比熱異常を示す相転移が観測されているものの、磁気秩序は伴っていない系がある。このように秩序変数が同定されていない相転移を、「隠れた秩序」と呼ぶ。観測困難という意味で、八極子や四極子などは隠れた秩序変数の候補になる。直接観測は難しいものの、多極子はその種類に応じて様々な外場や内場と結合する。磁気双極子が磁場と結合することは自明であるが、電気四極子は格子歪みと結合し、しばしば弾性異常をもたらす。すなわち、磁気双極子と電気四極子は全く異なる性質のプロープに応答する。一方、様々な多極子秩序があっても、これを担うのは結局の所、一つの局所的な波動関数といえる。従って、様々な多極子自由度は波動関数から見れば互いに関連しており、その様々な表現とみなせる。その結果、一軸性圧力が磁性を誘起したり、磁場によって格子歪みが生じたりという興味深い現象が引き起こされる。さらに、多極子秩序が問題となる系では一般に揺らぎも大きいという事情がある。多極子間の相互作用の性質によっては、多極子秩序のフラ

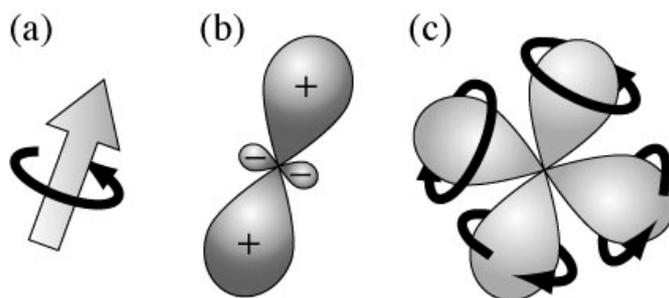


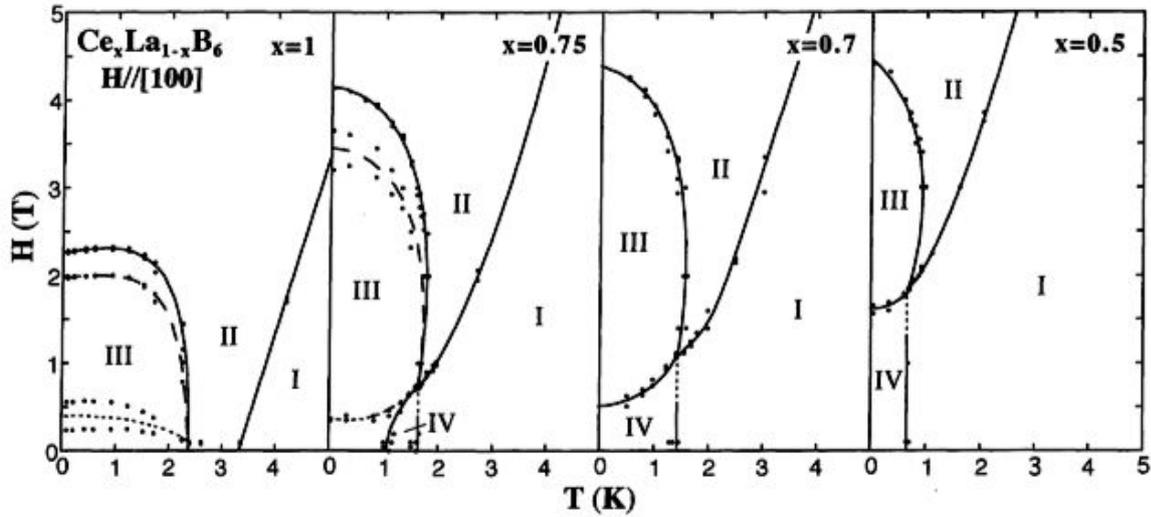
Fig. 1 多極子の概念図。矢印は、電流をあらわす。(a) 磁気双極子、(b) 電気四極子、(c) 磁気八極子。

ストレーションが生じる可能性もあり、今後さらなる発展が期待される。

2. 多極子とその秩序

結晶中の電子は、不完全殻を持つ磁性イオンのどの軌道に入るかにより、その性質が異なる。結晶場が球対称よりも低い対称性を持つことによって、 d や f などの電子エネルギー準位は一般に分裂し、占有可能な軌道は制限される。しかし、立方対称のような高い対称性の下では軌道縮退が残る場合がある。例えば、 CeB_6 では、 f 電子の基底結晶場準位は 4 重に縮退していることが分かっている。励起結晶場準位は 500 K 程度離れているので、低温物性を考える上では無視してよい。その意味で CeB_6 は理想的な軌道縮退系の一つといえる。縮退 4 重項のいずれかを占める電子の運動、すなわち量子力学的な遷移を表現するには、 $4 \times 4 = 16$ 個の独立な演算子が必要である。これらの演算子を既約表現に分解すると、電荷を表す単位行列を除いて、磁気双極子 (3 成分)、電気四極子 (5 成分) および磁気八極子 (7 成分) という内訳になる [5]。これらはそれぞれ、1 階、2 階、3 階のテンソルである。代表的な多極子の概念図を図 1 に示す。(a) はお馴染みの磁気双極子 (スピン) である。(b) は電荷分布の立方対称からの歪みを表し、電気四極子テンソルの一成分である。このような電荷偏極が整列したものが四極子秩序である。(c) は磁気八極子テンソルの一成分を表す。図から分かるように、磁気八極子の電荷分布は立方対称性を保ち、また、(スピンから生じるものも含めた広い意味での) 渦電流は磁性イオンの周りで互いに打ち消しあっている。この結果、イオン全体としては磁気モーメントも四極子モーメントも持たない。しかし有限の渦電流に伴って、時間反転対称性は破れている。

角運動量と同じ状態間の遷移の場合、パリティ保存の選択則から偶数次の電気多極子と奇数次の磁気多極子のみを考えればよい。軌道縮退系では独立な演算子が多いために、一般に相転移はかなり多彩なものになる。軌道縮退電子系の典型物質 $\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6$ の磁場中相図を図 2 に示す [7]。この中には最大 4 つの相が現れている。I は常磁性相、II は波数ベクトル $\mathbf{Q} = (1/2, 1/2, 1/2)$ の反強四極子秩序に対応し、低温側の III 相はさらに別の波数の反強磁性秩序が重なったものと解釈されている。IV 相は、最近行われた共鳴 X 線散乱実験の理論解析から、磁気八極子の秩序であることが明らかになったが、これについては後ほ


 Fig. 2 $Ce_xLa_{1-x}B_6$ の磁場中相図 [7].

ど述べる。

I から IV の秩序は、異なるサイトの多極子間に働く相互作用によって引き起こされる。多極子間に働く相互作用は、ある軌道を占める電子が他のサイトに出かけて行って、元のサイトのいずれかの軌道に戻って来るという仮想的なプロセスによって生じる。 d 電子系では、このプロセスはリガンドの局在軌道を介して起こり、超交換相互作用と呼ばれる [8]。 f 電子系では、伝導電子を介することが多く、RKKY (Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida) 相互作用と呼ばれている [9]。いずれにせよ、上記のプロセスによって、電子の占める状態を交換する相互作用の大きさは

$$J \sim |\text{遷移行列}|^2 / \text{中間状態のエネルギー} \quad (1)$$

程度になる。 f 電子系ではスピン軌道相互作用が強いために、遷移行列や J はすべての多極子に対して同程度の大きさになる。言い換えれば、高次の多極子であっても秩序として出現する可能性がある。ただし、図 2 にも見られるように、磁性イオンの希釈による転移温度の低下は、磁気転移温度よりも四極子転移温度の方がより顕著であることが経験的に知られている。このことは、電気多極子間に働く相互作用の方が希釈による格子の乱れの影響を受けやすいためと考えられている。

さて、図 2 で特徴的なことは、磁場の増加とともに四極子転移温度が上昇する点である。この現象の背後には互いに絡み合った複数の多極子自由度の存在がある。サイト i での 15 個の多極子演算子を X_i^α ($\alpha = 1 \sim 15$) とすると、ギンツブルグ・ランダウ (GL) 自由エネルギーの 3 次項は平均を $\langle X_i^\alpha \rangle$ などと書いて

$$F^{(3)} = -\frac{T}{6} \sum_{\alpha\beta\gamma} g_{\alpha\beta\gamma} \sum_i \langle X_i^\alpha \rangle \langle X_i^\beta \rangle \langle X_i^\gamma \rangle \quad (2)$$

と表される [10]。ここで、 $g_{\alpha\beta\gamma}$ は $\text{Tr}[(X_i^\alpha X_i^\beta + X_i^\beta X_i^\alpha) X_i^\gamma] / 8$ で表される完全対称テンソルであり、多極子の持つ対称性を反映して値が決まる。以下では、誤解の恐れがない場合には演算子 X_i^α とその平均値 $\langle X_i^\alpha \rangle$ を区別しないで表記する。このような 3 次項が現れるのは、1 つの局所波動関数がすべての多極子を

規定しているからである。軌道縮退系では

$$\text{電気四極子} \times \text{磁気双極子} \times \text{磁気八極子} \quad (3)$$

などの時間反転対称な 3 次項が可能である。波数 Q の反強四極子秩序の存在下で、磁場をかけて一様な磁気双極子を作ると、上記の 3 次項の存在により波数 Q の反強磁気八極子が誘起される。磁気八極子間に反強的な相互作用が働いていると、誘起された磁気八極子は系のエネルギーを下げ、その結果、転移温度が上昇するというわけである [5]。また反強的四極子秩序のもとでは、一様磁場によって反強磁気双極子が誘起されることも結論される。これは中性子散乱で実際に確認されている [6]。また、誘起八極子が作る内部磁場も B_6 の核磁気共鳴を用いて観測されている [11]。

4 行 4 列の行列には、単位行列を除いて 3 つの独立な対角行列がある。これは、4 重縮退した結晶場状態では、最大 3 種類の多極子が同時に現れる可能性を意味する。残りの 12 個の多極子はすべて非対角成分 (横成分) として働くため、通常のスピン系に比べて非常に大きな揺らぎが存在する。実際、 CeB_6 の比熱測定から、反強四極子転移温度よりかなり高い温度から軌道縮退の持つエントロピーが減少すること、さらに磁場をかけるとこの減少が抑えられることが分かっている。この振る舞いは、磁場によって横成分の揺らぎが抑えられるとして理解される。転移温度の右上がりの振る舞いには、強い揺らぎによって低く抑えられた転移温度が、磁場による揺らぎの抑制によって増大するという効果も加わっている [12, 13]。

$\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6$ で IV 相が現れるのは、La 希釈によって四極子秩序が抑制された結果であることから、その秩序変数としてまず磁気モーメントが予想された。ところが、中性子散乱では磁気秩序の存在は確認されなかった。一方、時間反転対称性は破れていることが、核磁気共鳴 [15] やミュオンスピンの緩和 [16] から示唆されていた。実は、2001 年の時点で既に GL 理論を用いた II 相、III 相の平均場解析との整合性から、7 成分を持つ八極子テンソルのうち Γ_{5u} 型と呼ばれる 3 次元表現 (T_x, T_y, T_z) の 1 次結合 $X^{(5u)} \equiv (T_x + T_y + T_z)/\sqrt{3}$ が IV 相の秩序変数であることが予想されていた [10]。秩序変数 $X^{(5u)}$ は、四極子 $X^{(5g)} \equiv (O_{yz} + O_{zx} + O_{xy})/\sqrt{3}$ と GL の 3 次項 $\sum_i (X_i^{(5u)})^2 X_i^{(5g)}$ によって結合している。すなわち、有限波数 Q^* の $X^{(5u)}$ 八極子秩序に伴って一様な四極子 $X^{(5g)}$ が誘起される。この機構によって $\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6$ の IV 相では、[111] 方向の格子歪みが生じている可能性が指摘された [10]。その後、[111] 方向の歪みが実際に観測された [14]。また、 $X^{(5u)}$ の八極子秩序を仮定した詳細な平均場計算は、主な実験事実を矛盾無く説明することができた [17]。特に、一軸性圧力による異方的帯磁率の予言は、実験で確認された [18]。これらの状況から八極子秩序の存在を示唆する状況証拠は積み重なっていたが、最近になって遂に、共鳴 X 線散乱による磁気八極子秩序の直接観測が行われた。

3. 多極子超格子による共鳴 X 線散乱

多極子秩序の実体は、図 1 に示したように、磁性イオン付近に局所的に発生した電荷分布の立方対称からのずれや互いに打ち消しあう渦電流といったものである。このため超格子反射に現れる信号は非常に弱く、中性子や X 線散乱による直接観測は相当難しい。強力な放射光 X 線によって内殻電子を外殻にたた

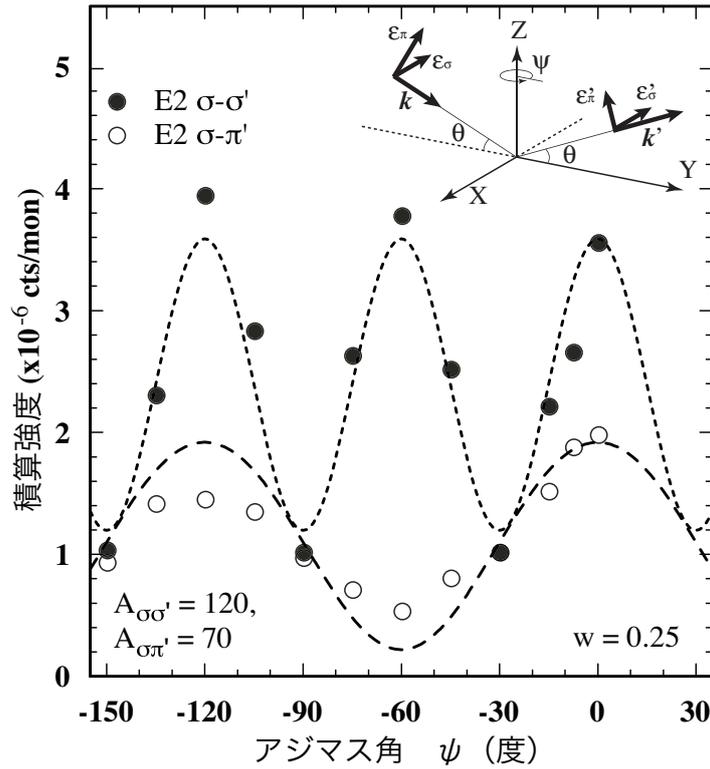


Fig. 3 $\text{Ce}_{0.7}\text{La}_{0.3}\text{B}_6$ における $Z=[111]$ 軸まわりのアジマス角 ψ 依存性の測定結果 (シンボル) と Γ_{5u} 型磁気八極子秩序を仮定した理論曲線 (点線、破線)。

き上げる吸収端の共鳴過程を利用すると、信号は増大して観測しやすくなる [2]。共鳴 X 線散乱は、関与する X 線のエネルギーが数 keV にも及ぶ高エネルギー過程である。そこで、近似的に中間状態の回転対称性を仮定すると、電気双極子 (E1) 遷移および電気四極子 (E2) 遷移における散乱振幅は、多極子を表す p 階の球テンソルの q 成分 $X_q^{(p)}$ と、X 線の入射 (反射) 波数ベクトル \mathbf{k} (\mathbf{k}')、偏光ベクトル $\boldsymbol{\epsilon}$ ($\boldsymbol{\epsilon}'$) から構成される別の p 階球テンソルとのスカラー積として書ける [19]。例えば、E1 遷移の場合、散乱振幅は

$$Z^{E1} = \sum_{p=0}^2 c_p \sum_q X_q^{(p)} K_q^{(p)*}(\boldsymbol{\epsilon}'; \boldsymbol{\epsilon}) \quad (4)$$

と表される。スカラー積であるから、磁気双極子演算子 $X_\alpha^{(1)}$ ($\alpha = x, y, z$) であれば、同じ対称性をもつ軸性のベクトル $K_\alpha^{(1)} = (\boldsymbol{\epsilon}' \times \boldsymbol{\epsilon})_\alpha$ と結合する、といった具合である。E2 遷移の場合も同様にスカラー積で書けるが、 p 階の球テンソル $K_q^{(p)}(\boldsymbol{\epsilon}'; \boldsymbol{\epsilon})$ が、別の球テンソル $H_q^{(p)}(\mathbf{k}', \boldsymbol{\epsilon}'; \mathbf{k}, \boldsymbol{\epsilon})$ に置き換わる。E1 遷移では、観測できるのは $p = 2$ の四極子までに限られるが、E2 遷移を用いれば $p = 4$ の十六極子まで観測可能である。

さて、X 線の散乱過程を図 3 の挿入図に示すような座標系を用いて記述しよう。ここで、 $\boldsymbol{\epsilon}_\sigma, \boldsymbol{\epsilon}_\pi$ などは偏光方向を指定するベクトルである。例えば、 x 方向の磁気双極子秩序 ($\langle X_x^{(1)} \rangle \neq 0$) が生じている場合、 σ - π' 散乱振幅は回転角 ψ に依存した特徴的な変化を示す。具体的には $K_x^{(1)} = (\boldsymbol{\epsilon}' \times \boldsymbol{\epsilon})_x \propto \cos \theta \sin \psi$ となる。散乱振幅のアジマス角 ψ 依存性は多極子の種類によって定性的に異なるため、この依存性を測定することで多極子秩序を直接かつ選択的に観測することができる。(4) 式が 2 つの球テンソルのスカラー積で表されているおかげで、任意の量子化軸に関する秩序の示すアジマス角依存性を、座標回転によって簡

Table. 1 [111] 軸に関する多極子秩序と散乱強度のアジマス角依存性との関係。

$p\text{-}\Gamma$	$E2\ \sigma\sigma'$	$E2\ \sigma\pi'$
1-4u	0	$\frac{1}{40} \sin^2(3\theta)$
2-5g	$\frac{1}{224} (3 + \cos(2\theta))^2$	0
3-2u	$\frac{1}{36} \sin^2(2\theta) \sin^2(3\psi)$	$\frac{1}{144} (3 \cos(2\theta) - 1)^2 \cos^2 \theta \left[\frac{1}{\sqrt{2}} \tan \theta - \cos(3\psi) \right]^2$
3-4u	$\frac{1}{36} \sin^2(2\theta) \sin^2(3\psi)$	$\frac{1}{144} (3 \cos(2\theta) - 1)^2 \cos^2 \theta \left[\frac{1}{\sqrt{2}} \tan \theta + \cos(3\psi) \right]^2$
3-5u	$\frac{1}{16} \sin^2(2\theta) \cos^2(3\psi)$	$\frac{1}{256} (\cos \theta + 3 \cos(3\theta))^2 \sin^2(3\psi)$
4-4g	0	$\frac{1}{16} \cos^6 \theta \cos^2(3\psi)$
4-5g	$\frac{1}{1512} (5 - 3 \cos(2\theta))^2$	$\frac{1}{1296} \cos^6 \theta \sin^2(3\psi)$

単に求めることができる [20]。

$\text{Ce}_{0.7}\text{La}_{0.3}\text{B}_6$ の IV 相について述べよう。Ce の L_2 吸収端を用いた $\mathbf{q} = (3/2, 3/2, 3/2)$ の超格子反射に対する [111] 軸まわりのアジマス角依存性の測定結果を図 3 に示す [21]。E2 σ - σ' 遷移では、明確な 6 回振動が観測されている。 σ - σ' 遷移は、光子の偏光状態すなわち角運動量を保存する過程であり、多極子の形状を最も忠実に反映すると考えて良い。考え得る多極子のうち、[111] 軸まわりで明確な 6 回対称の形状を持つものは、表 1 に示した多極子のうち、 Γ_{2u} 、 Γ_{4u} 、 Γ_{5u} 、そして Γ_{4g} 型である。それぞれの形状を考えると、前者 2 つは X 軸方向で最小値を、後者の 2 つは最大値を持つ。上述の手順に従って散乱強度の角度依存性を求めたものが表 1 である。形状から期待されるように、E2 σ - σ' 遷移では、 Γ_{2u} 、 Γ_{4u} 型が $\psi = 0$ で最小値をとるのに対し、 Γ_{5u} 型では最大値をとる。 Γ_{4g} 型の場合は、選択則からゼロとなることに注意。こうして、 Γ_{5u} 型が最有力候補であることが分かった。一方、E2 σ - π' 遷移は 3 回振動を示しており、単純な考えでは説明がつかない。実は、[111] 方向の秩序が実現した場合、これに等価な 4 つのドメインがあるのが自然である。すべてのドメインが同じ割合で存在する ($w = 1/4$) と仮定して計算を行った結果、 σ - σ' 遷移では他のドメインの寄与は無視できるほど小さいのに対し、 σ - π' 遷移では他のドメインからの寄与が優勢であることが分かった。 Γ_{5u} 型八極子秩序について、ドメインを考慮して計算を行った結果が、図 3 の破線および点線である。ここで、 $A_{\sigma\sigma'}$ および $A_{\sigma\pi'}$ は強度全体を調節するためのスケール因子である。また、実験で用いられている散乱角 $\theta = -39^\circ$ を用いた (負符号は軸の取り方の違いによる)。磁気八極子秩序を仮定した場合の理論曲線は、 σ - σ' 、 σ - π' の両過程で実験結果と非常に一致を示している。ドメインの比率を多少変えても散乱強度の角度依存性は定性的に変わらない。こうして、 Γ_{5u} 型の磁気八極子秩序の存在が立証された [20]。より定量的な比較をするには、非共鳴散乱からの寄与や E1 遷移との干渉効果などからくる補正も考慮する必要があるだろう。 NpO_2 では、共鳴 X 線散乱による四極子秩序の観測から間接的に八極子秩序の存在が報告されていたが [22]、八極子そのものは観測されていない。この意味で、八極子秩序の直接観測は $\text{Ce}_{0.7}\text{La}_{0.3}\text{B}_6$ が初めて、ということができる。

4. おわりに

本稿では、高次の多極子の秩序がどのような状況で生じるのか、また、その特徴は何かということ、多極子自由度の絡み合いを強調する視点から述べた。また、状況証拠を積み重ねた末に、共鳴 X 線散乱による磁気八極子の直接観測に至った経緯について簡単に触れた。しかし、現時点では八極子の直接観測結果は、 $\text{Ce}_{0.7}\text{La}_{0.3}\text{B}_6$ の一例しかない。近い将来には、磁気構造の解析と同様、複雑な多極子構造を解明できるほどの進歩があることを期待したい。スピン系に対する詳細な理解には、中性子散乱が重要な役割を果たしていることは言うまでもない。X 線や中性子線を用いての直接観測の技術が成熟した暁には、多極子の秩序やその揺らぎについてより深い理解が得られることと思う。

本研究の一部は、科学研究費補助金・基盤研究 (B) および特定領域研究の補助を受けて行われました。多極子の物理や共鳴 X 線散乱に関して、椎名亮輔、久保勝規、酒井治、斯波弘行、松村武、榊原俊郎、世良正文、後藤輝孝、石原純夫、村上洋一、田中良和、勝又紘一、Stephen Lovesey, Danny Mannix, Nick Bernhoeft の諸先生には多くを教わりました。この場を借りて感謝致します。

Magnetic Octupole Order — The theoretical interpretation for Resonant X-Ray Scattering
Hiroaki Kusunose and Yoshio Kuramoto

abstract: The mysterious phase in $\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6$ is discussed with emphasis on the nature of the hidden order parameter. We explain the characteristic behaviors of ordered multipoles such as the electric quadrupole and the magnetic octupole, which become active in orbitally degenerate electron systems. We give the theoretical interpretation of the resonant X-ray measurement yielding that an antiferro magnetic octupole order is realized in this mysterious phase.

References

- [1] H. Yamauchi, H. Onodera, K. Ohoyama, T. Onimaru, M. Kosaka, M. Ohashi and Y. Yamaguchi: J. Phys. Soc. Jpn. **68** (1999) 62057.
- [2] Y. Murakami, J.P. Hill, D. Gibbs, M. Blume, I. Koyama, M. Tanaka, H. Kawata, T. Arima, Y. Tokura, K. Hirota and Y. Endoh: Phys. Rev. Lett. **81** (1998) 582.
- [3] R. Caciuffo, J.A. Paixão, C. Detlefs, M.J. Longfield, P. Santini, N. Bernhoeft, J. Rebizant and G.H. Lander: J. Phys. Condens. Matter **15** (2003) S2287.
- [4] M. Yoshizawa, Y. Nakanishi, M. Oikawa, C. Sekine, I. Shirotnani, S.R. Saha, H. Sugawara and H. Sato: J. Phys. Soc. Jpn. **74** (2005) 2141.
- [5] R. Shiina, H. Shiba and P. Thalmeier: J. Phys. Soc. Jpn. **66** (1997) 1741.

- [6] J.M. Effantin, J. Rossat-Mignod, P. Burlet, H. Bartholin, S. Kunii and T. Kasuya: *J. Magn. Magn. Matter.* **47&48** (1985) 145.
- [7] T. Tayama, T. Sakakibara, K. Tenya, H. Amitsuka and S. Kunii: *J. Phys. Soc. Jpn.* **66** (1997) 2268.
- [8] K.I. Kugel and D.I. Khomskii: *Sov. Phys. JETP* **37** (1973) 725.
- [9] F.J. Ohkawa: *J. Phys. Soc. Jpn.* **52** (1983) 3897; *ibid.* **54** (1985) 3909.
- [10] H. Kusunose and Y. Kuramoto: *J. Phys. Soc. Jpn.* **70** (2001) 1751.
- [11] O. Sakai, R. Shiina, H. Shiba and P. Thalmeier: *J. Phys. Soc. Jpn.* **66** (1997) 3005.
- [12] G. Uimin, Y. Kuramoto and N. Fukushima: *Solid State Commun.* **97** (1996) 595.
- [13] N. Fukushima and Y. Kuramoto: *J. Phys. Soc. Jpn.* **67** (1998) 2460.
- [14] M. Akatsu, T. Goto, Y. Nemoto, O. Suzuki, S. Nakamura and S. Kunii: *J. Phys. Soc. Jpn.* **72** (2003) 205.
- [15] K. Magishi, M. Kawakami, T. Saito, K. Koyama, K. Mizuno, and S. Kunii: *Z. Naturforsch.* **57a** (2002) 441.
- [16] H. Takagiwa, K. Ohishi, J. Akimitsu, W. Higemoto, R. Kadono, M. Sera and S. Kunii: *J. Phys. Soc. Jpn.* **71** (2002) 31.
- [17] K. Kubo and Y. Kuramoto: *J. Phys. Soc. Jpn.* **73** (2004) 216.
- [18] T. Morie, T. Sakakibara, T. Tayama and S. Kunii: *J. Phys. Soc. Jpn.* **73** (2004) 2381.
- [19] S.W. Lovesey, E. Balcar, K.S. Knight and J. Fernández Rodríguez: *Phys. Rep.* **411** (2005) 233.
- [20] H. Kusunose and Y. Kuramoto: *J. Phys. Soc. Jpn.* **74** (2005) 3139.
- [21] D. Mannix, Y. Tanaka, D. Carbone, N. Bernfoeft, and S. Kunii: *Phys. Rev. Lett.* **95** (2005) 117206.
- [22] J.A. Paixao, C. Detlefs, M.J. Longfield, R. Caciuffo, P. Santini, N. Bernfoeft, J. Rebizant and G.H. Lander: *Phys. Rev. Lett.* **89** (2002) 187202.