# f 電子系における磁気八極子秩序

東北大学大学院理学研究科 楠瀬博明、倉本義夫

### 1. はじめに

固体では、電子の持つ電荷やスピンに加えて、軌道の自由度が重要な役割を果たす。注意すべきこと は、スピン軌道相互作用の強さに応じて、軌道自由度の性格がかなり異なっていることである。d 電子系 では、結晶場分裂がスピン軌道相互作用よりはるかに大きく、それぞれのスピンに対して eg 軌道や t<sub>2g</sub> 軌 道などを定義できる。この軌道概念を用いて、磁場を加えると急激に電気抵抗が減少する超巨大磁気抵抗 現象や、自発電気分極と磁性が結合したマルチ・フェロイクス現象の解明が進んでいる [1,2,3]。一方、f 電子系では、スピン軌道相互作用が結晶場分裂より大きいので、d 電子系のような意味での軌道自由度は 単独には現れず、多極子としてその姿をかいま見せる。さらに、軌道とスピンの複合体ともいうべき高次 の多極子が、自発的に秩序化することが可能となる。しかし、磁性を担う双極子、あるいは電荷分布がゆ がむ軌道秩序 (四極子) に比べて、その同定は難しい。したがって、多極子は、明白な比熱異常が観測され るのに秩序変数が同定できない「隠れた秩序」の有力な候補となりえる [4,5]。

四極子よりも高次の多極子秩序が実現していると期待される最有力候補は、Ce<sub>x</sub>La<sub>1-x</sub>B<sub>6</sub>である。この 物質は磁場中で最大4つの異なる相を持ち、長い研究の歴史がある [6,7,8]。特に、常磁性相から IV 相 と呼ばれる相への転移においては、奇妙な実験事実が知られていた。例えば、帯磁率が反強磁性転移と酷 似した異常を示すにもかかわらず、中性子散乱では長距離秩序が見出されない。また、四極子転移でみら れるような弾性定数のソフト化が生ずるにもかかわらず、転移点以下で内部磁場が観測される。このよう な異常現象の背後に磁気八極子の秩序があるとするモデルが提出され、多くの奇妙な性質が統一的に説明 された [9,10,11]。その結果、この物質の理解が急速に進み、多極子モーメントへの関心も一般に広がっ た。当然の発展として、磁気八極子の直接観測の期待が高まっていた。このような背景の下、最近行われ た共鳴 X 線散乱実験とその理論解析によって、遂に IV 相が反強的磁気八極子秩序であることが立証され た [12,13]。

本稿の目的は、この IV 相を中心に、磁気八極子秩序が引き起こす物理について解説することである。 まず一般的に、多極子モーメントとは何か、また、それらは物理量にどのように現れるのかを説明する。 次に IV 相の異常な実験結果を紹介した後、これらの実験が磁気八極子秩序によって理解されることを示 す。最後に、共鳴 X 線散乱の理論的解析について述べる。

# 2. 結晶場と多極子自由度

立方対称のような高い対称性の下では、磁性イオンの不完全殻を占める電子の状態に軌道の縮退が残る 場合がある。*d*電子系では、結晶場分裂に対してスピン軌道相互作用が弱いために、スピン自由度と軌道 自由度を別々に考え、その直積として局所電子状態を記述するのが便利である。一方、*f*電子系では強い スピン軌道相互作用のために軌道とスピンは不可分に結合する。そこで、スピンと軌道の複合体として多 極子自由度を導入するのが自然で、物事の見通しもよくなる。まず、結晶場と多極子との関係について基 本的な事柄を整理しておこう。

#### 2.1. 多極子の定義と等価演算子による表現

静電磁気学でよく知られているように、原点に置かれた磁気イオンのまわりの任意の静電ポテンシャル  $\phi(\mathbf{r})$ は、p 階の電気多極子モーメント  $Q_q^{(p)}$  を用いて

$$\phi(\mathbf{r}) = \sum_{pq} \frac{1}{r^{p+1}} C_q^{(p)}(\hat{\mathbf{r}}) Q_q^{(p)}$$
(2.1)

のように展開することができる。ここで  $C_q^{(p)}(\hat{r})$  は球面調和関数  $Y_{pq}(\hat{r})$  を  $\sqrt{4\pi/(2p+1)}$  倍したものである。 $\hat{r}$  はr の角度部分を表す。同様に、ベクトルポテンシャル A(r) は、磁気多極子モーメント  $M_q^{(p)}$  を用いて

$$A(\mathbf{r}) = \sum_{pq} \frac{1}{r^{p+1}} \frac{1}{ip} \left[ \ell C_q^{(p)}(\hat{\mathbf{r}}) \right] M_q^{(p)}$$
(2.2)

のように展開できる [14]。 $\ell$  は軌道角運動量演算子である。 $Q_q^{(p)}$  は空間反転に対して  $(-1)^p$  のパリティ を、 $M_q^{(p)}$  は  $(-1)^{p+1}$  のパリティを持つ。従って、パリティの固有状態の間の行列要素は、偶数階のテンソ ルである電気四極子、電気十六重極子など、または、奇数階の磁気双極子、磁気八極子などの場合に有限 に残る。また、 $Q_q^{(p)}$  は時間反転に対して偶、 $M_q^{(p)}$  は奇の性質を持つ。以下では強誘電性を無視して、パ リティが自発的には破れない状態だけを考える。したがって  $2^p$  極子という場合には、p が偶数なら電気 多極子、奇数であれば磁気多極子を意味するものとする。

ここに現れた多極子モーメントは、具体的には、多極子モーメントを表す量子力学的な演算子の局所的 な多電子波動関数 |ψ⟩ に関する期待値、

$$Q_q^{(p)} = \langle \psi | \hat{Q}_q^{(p)} | \psi \rangle, \quad M_q^{(p)} = \langle \psi | \hat{M}_q^{(p)} | \psi \rangle$$
(2.3)

を意味する。ここで電気多極子演算子、磁気多極子演算子は、r<sub>i</sub>を各電子の座標として、それぞれ

$$\begin{split} \hat{Q}_q^{(p)} &= -e \sum_i r_i^p C_q^{(p)*}(\hat{\boldsymbol{r}}_i), \\ \hat{M}_q^{(p)} &= \mu_{\rm B} \sum_i \left( \boldsymbol{\nabla}_i r_i^p C_q^{(p)*}(\hat{\boldsymbol{r}}_i) \right) \cdot \left( \frac{2}{p+1} \boldsymbol{\ell}_i + 2s_i \right) \end{split}$$

と定義される。

全角運動量 J とその z 成分 M で指定される状態 |JM〉に関するこれらの多極子演算子の行列要素を求めるには等価演算子法を用いるのが便利である [15]。すなわち、角運動量演算子 J の各成分からなる p 次

多項式として定義される球テンソル *J*<sup>(p)</sup> が、多極子演算子と同じ角度依存性、パリティおよび時間反転の 対称性を持つことに着目すると [16]、Wigner-Eckert の定理より両者の行列要素は比例関係にあることが 結論される [17]。つまり、

$$\langle JM'|\hat{Q}_q^{(p)}|JM\rangle = -e\langle r^p\rangle A_J^{(p)}\langle JM'|J_q^{(p)}|JM\rangle$$
(2.4)

および

$$\langle JM'|\hat{M}_q^{(p)}|JM\rangle = \mu_{\rm B} \langle r^{p-1} \rangle B_J^{(p)} \langle JM'|J_q^{(p)}|JM\rangle$$
(2.5)

が成り立つ。ここで、 $\langle r^p \rangle$ は動径波動関数に関する  $r^p$ の期待値である。比例係数  $A_J^{(p)}, B_J^{(p)}$ は、具体的な局所多体波動関数に依存した M, M'によらない定数である。具体的には還元行列要素を用いて

$$\begin{split} -e\langle r^{p}\rangle A_{J}^{(p)} &= \frac{\langle J||\hat{Q}^{(p)}||J\rangle}{\langle J||J^{(p)}||J\rangle},\\ \mu_{\mathrm{B}}\langle r^{p-1}\rangle B_{J}^{(p)} &= \frac{\langle J||\hat{M}^{(p)}||J\rangle}{\langle J||J^{(p)}||J\rangle} \end{split}$$

と表される。 $Ce^{3+}(4f^1)$ の場合、 $A_{5/2}^{(2)} = -2/35$ ,  $A_{5/2}^{(4)} = 2/315$ ,  $B_{5/2}^{(1)} = 6/7$ ,  $B_{5/2}^{(3)} = -2/35$  である。特に、  $B_J^{(1)}$ は通常ランデの g 因子と呼ばれるものに対応する。以上のような事情を踏まえて、 $\hat{Q}_q^{(p)} や \hat{M}_q^{(p)}$ の代 わりに  $J_q^{(p)}$ の行列要素を用いる議論が慣習的に行われている。 $\phi(\mathbf{r}) や \mathbf{A}(\mathbf{r})$  を評価する際には、もちろ ん、物理的な演算子との比例係数を考慮する必要がある。球テンソル  $J_q^{(p)}$ の具体的な表式を求めるには、  $C_q^{(p)}(\hat{\mathbf{r}})$ 中に現れる x, y, zの積を、全角運動量の積の対称和で

$$x^{k}y^{m}z^{n} \to \frac{k!m!n!}{(k+m+n)!} \sum_{\mathcal{P}} \mathcal{P}\left(J_{x}^{k}J_{y}^{m}J_{z}^{n}\right)$$
(2.6)

と置き換えればよい。ここで、和はすべての置換に関して取るものとする。例えば、 $x^2y$ ならば ( $J_x^2J_y + J_xJ_yJ_x + J_yJ_x^2$ )/3 と置き換える。このような作業は数式処理ソフトウェアを用いて機械的に行うことができる [18]。

#### 2.2. 多極子と観測量

さて、多極子モーメントはどのようにして観測可能だろうか。周知の通り、磁気双極子モーメントはベ クトル量であり、磁場や中性子、原子核、ミューオンの持つ磁気双極子モーメントと結合する。電気四極 子は2階のテンソル量で、平均電荷密度からの局所的なずれを表す。一軸性の圧力を加えたり、超音波に よって長波長の微小な格子歪みを作り出すと、対応する歪みテンソルは電気四極子と結合し、電気四極子 モーメントを誘起したり、弾性定数に応答が現れる [6,19]。また、原子核の作り出す電場勾配とも結合す る。偏極中性子散乱を用いて軌道秩序を直接観測した先駆的な例もある [20]。磁気八極子は3階のテンソ ルで、その本質は (スピンからの寄与も含めた広義の) 局所的な渦電流である。このため、電荷分布に偏 極はなく、また、局所的に発生した渦電流も互いに打ち消しあってベクトル的な磁気双極子モーメントも 発生しない。このため、通常の磁性観測において威力を発揮する手法のほとんどが無力である。渦電流に よって磁性イオンの間に発生した局所的な内部磁場は µSR や NMR を用いて観測可能であるが [21,22]、 その定量的な解析は一般に複雑で非常に難しい。一方、近年発展の著しい原子吸収端の共鳴を利用した X 線散乱は、高次の多極子を直接観測するためにも極めて有力な手法である [23,24,25]。これについては八 極子秩序の観測例として後ほど述べる。直接または間接的に多極子の存在を観測したとの報告がある実験 手法を第1表にまとめておく。

#### **2.3.** 結晶場中の多極子

実際には、多極子自由度が活躍する場は、球対称ではなく立方対称などの結晶場下であり、点群の既約 表現を用いて記述する必要がある。例えば、CeB<sub>6</sub>では、Ce<sup>3+</sup> (4 $f^1$ ) イオンの 6 重に縮退した J = 5/2 準 位は、立方対称な結晶場によって 4 重の  $\Gamma_8$  準位および 2 重の  $\Gamma_7$  準位に分裂する<sup>\*1</sup>。 $\Gamma_7$  準位は、基底  $\Gamma_8$ 準位の 500K 程度上に位置する。従って、低温物性を考える上では  $\Gamma_8$  のみを考慮すればよく、理想的な 軌道縮退系となっている。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 × 4 = 16 個の独立な演算子が必要である。 $\Gamma_8$  の直積を  $O_h$  群の既約表現に簡約すれば<sup>\*2</sup>

$$\Gamma_8 \otimes \Gamma_8 = \Gamma_{1q}(1) \oplus \Gamma_{2u}(1) \oplus \Gamma_{3q}(2) \oplus 2\Gamma_{4u}(3) \oplus \Gamma_{5q}(3) \oplus \Gamma_{5u}(3)$$
(2.7)

となる [7]。ここで、g(u)は演算子が時間反転に対して偶(奇)の対称性を持つことを意味する。また、 括弧内の数字は、各既約表現に属する多極子の成分の数である。それぞれの多極子の形状を模式的に描い たものが第1図である。電気多極子の場合、緑と紫は平均電荷密度からのずれの正負を表している。磁気 多極子の場合、分かりやすく図示するのは難しいが、単独の「磁荷」を考えて、N極S極の分布を赤と 青で示すことにする。内部磁場またはそれに対応する渦電流はこの磁荷分布から作られると考えればよ い。 $O_h$  群における多極子の等価演算子表現は、球対称での $J_q^{(p)}$ の場合と同様に、立方調和関数 [26] に  $\sqrt{4\pi/(2p+1)}$ を乗じたものに対して、(2.6) 式の置き換えを行って得られる。多極子を指定する際、立方 調和関数の次数を使って四極子、八極子など回転群の既約表現を用いることがしばしば行われる。正確に は、点群の既約表現を用いなければならないことに注意されたい<sup>\*3</sup>。例えば、上記の  $\Gamma_{4u}$  型多極子は 1 次 と 3 次のものがあるが、両方とも同じ既約表現に属し、対称性の点で違いはない。磁気モーメントが  $\Gamma_{4u}$ の対称性を持つために、むしろ、1 次、3 次の多極子とも磁気双極子のような役割を果たす。以下では、誤 解の恐れがない限り慣習に従うことにする。

完全な軌道縮退がない場合でも、その分裂がサイト間相互作用などに較べて小さい場合、分裂した結晶 場をまたいで多極子が活性化する場合がある。また、外部磁場の下ではゼーマン分裂によって、擬似的な 縮退が生じることもある。このようなケースは、充填スクッテルダイト化合物 PrOs<sub>4</sub>Sb<sub>12</sub> や PrFe<sub>4</sub>P<sub>12</sub> に おける磁場誘起秩序の問題と関連して盛んに議論されている [27,28,29]。

この他、 $\Pr^{3+}(4f^2)$ イオンなど偶数個の電子によって結晶場が構成されているときには、非クラマース 縮退と呼ばれる時間反転対称性とは無関係の縮退が生じ得る。例えば、2 重に縮退した  $\Gamma_3$  結晶場基底内で

<sup>&</sup>lt;sup>\*1</sup> $\Gamma_n$  は 2 重点群の既約表現を表すベーテの記号で、 $n \ge 6$  はスピン状態も含めた 2 価表現である。マリケンの記法とは、  $\Gamma_1 \leftrightarrow A_1, \Gamma_2 \leftrightarrow A_2, \Gamma_3 \leftrightarrow E, \Gamma_4 \leftrightarrow T_1, \Gamma_5 \leftrightarrow T_2$ の対応関係がある。マリケン記法は 2 価表現に関して一意的でないため、f 電子系では普通ベーテの記号が用いられる。

<sup>\*2</sup>後に述べる疑縮退の場合など複数の既約表現が混ざってくると、簡約の手続きは煩雑になる。等価演算子で表した多極子演算 子の行列要素を実際に計算する方が間違いが少ないかも知れない。

<sup>\*3</sup>超伝導対の対称性についても同じ慣習が用いられている。

の多極子を考えると

$$\Gamma_3 \otimes \Gamma_3 = \Gamma_{1q}(1) \oplus \Gamma_{2u}(1) \oplus \Gamma_{3q}(2) \tag{2.8}$$

となる。ここで特徴的なことは、既約表現  $\Gamma_{4u}$  に属する磁気モーメントが存在しないことである。この場 合、磁気八極子  $\Gamma_{2u}$  と電気四極子  $\Gamma_{3g}$  だけが活性である。こうした系では、四極子近藤効果が出現する可 能性 [30] や、格子歪みに対してクラマース縮退の場合とは全く異なる応答が予想されるなど、興味深い物 性の出現が期待され、条件を満たす物質探索が続いている。特に、 $\Gamma_3$  結晶場基底が実現していると考えら れる物質に PrAg<sub>2</sub>In がある。NMR の  $T_1$  の温度依存性は、第一結晶場励起のエネルギーより十分低温で もなおスピン緩和が存在していることを示しており、 $\Gamma_{2u}$  型磁気八極子の揺らぎを観測している可能性が 指摘されている [31]。

### 3. $Ce_x La_{1-x} B_6$ における磁気八極子秩序

第2図に Ce<sub>x</sub>La<sub>1-x</sub>B<sub>6</sub>の磁気相図を示す [32]。x = 1の CeB<sub>6</sub> は磁場中で3つの相を持つ。I 相は常磁 性相である。II 相は波数ベクトル Q = (1/2, 1/2, 1/2)の反強四極子秩序相であり、椎名ら [7] や世良ら [8] による詳しい解説がある。また、共鳴 X 線散乱による観測結果も報告されている [33]。III 相は、II 相の 反強四極子秩序に加えて、最近接サイトの磁気モーメントが互いに直交する複雑な磁気秩序であり [34]、 詳しい平均場解析がなされている [8,10]。こうした研究から、I–III 相については、概ね理解されていると 言ってよい。本節では、Ce<sub>x</sub>La<sub>1-x</sub>B<sub>6</sub>の IV 相における異常物性を紹介し、磁気八極子秩序による解釈につ いて述べる。

#### 3.1. IV 相の主な実験事実

Ce を La で置換し 4*f* 電子が欠損したサイトを増やしていくと、第2図に示したように、II 相の転移温 度が急速に減少して新たに IV 相が現れる。発見当時は、CeB<sub>6</sub> との繋がりから単純な磁気秩序と思われ たが、その後の実験研究の進展により、単純な磁気秩序では説明できない異常な相であることが明らかに なった。主な実験事実を紹介しよう。

第3図に比熱の温度依存性を示す [35]。IV 相の転移温度  $T_{IV} = 1.7$  K で比熱に明白な跳びがあり 2 次 転移であることが分かる。この時点で、4 重縮退の持つエントロピーの大部分が放出されている。さらに 低温側で III 相へ1 次転移する [32]。一様帯磁率は、第4 図に示すように、 $T_{IV}$  でカスプ的振る舞いを示 す。この振る舞いは CeB<sub>6</sub> の場合の III 相への転移と似ており、磁気転移であることを示唆しているよう に見える [32]。しかしながら、中性子散乱実験では磁気秩序を示す超格子反射は観測されていない [36]。 ただし、NMR [37] や  $\mu$ SR [38] では IV 相への転移に際して内部磁場の大きな変化が観測されており、時 間反転対称性は破れているものと思われる。これらの実験事実は、磁気秩序でも四極子秩序でもない、高 次の磁気多極子秩序が実現している可能性を強く示唆するものである。

一方、IV相では弾性定数にも異常が現れる。第5図に示すように、弾性定数のC44モードは、TIV以

上でキュリー・ワイス的な減少を示すが、IV 相に入ると急激にソフト化し、その後、急激なソフト化は 緩和して III 相に入る [35]。このような振る舞いは、強的四極子秩序の場合に知られている温度変化とは 全く異なっている [19]。さらに、IV 相に入ると [111] 軸に沿って格子歪みが生じることが報告されてい る [39]。 $C_{44}$  モードは  $\Gamma_{5g}$  型四極子と結合するモードで、急激なソフト化は  $\Gamma_{5g}$  型四極子の歪み感受率の 急激な増大を意味する。また、[111] 軸に沿った格子歪みは  $\Gamma_{5g}$  型の強的四極子秩序として理解できる。 上に述べた一様帯磁率の実験結果なども考慮すると、磁気八極子秩序の可能性とともに、 $\Gamma_{5g}$  型の強的四 極子秩序が共存しているものと予想される。

#### 3.2. 多極子秩序のギンツブルグ・ランダウ理論

以上の実験結果は、いくつかの多極子自由度が絡み合っていることを示唆している。このような問題を 取り扱うには、ギンツブルグ・ランダウの自由エネルギーを考えるのが、最も分かりやすい。しかし、多 極子の種類が増えてくると、自由エネルギーの正しい表式を見落としなく書き下すのは大変である。そこ で、平均場近似の範囲でギンツブルグ・ランダウの自由エネルギーを一般的に書き下してみよう。次のよ うな一般的な交換相互作用模型を考える。

$$H = -\frac{1}{2} \sum_{ij} D_{ij}^{\alpha\beta} X_i^{\alpha} X_j^{\beta}$$
(3.1)

ここで、iサイトの多極子演算子を $X_i^{\alpha}$ と表す。 $\alpha$ は既約表現とその成分をまとめて指定する添字である。 ギリシャ文字が二度現れた場合、和を取るものと約束する。多極子演算子は行列のサイズをdとして、

$$\frac{1}{d} \operatorname{Tr}_i(X_i^{\alpha} X_i^{\beta}) = \delta_{\alpha\beta}$$

と規格直交化しておく。試行ハミルトニアン  $H_0 = -\sum_i \phi_i^{\alpha} X_i^{\alpha}$ に対して、ファインマンの不等式に基づい た平均場近似を行えば、ギンツブルグ・ランダウ自由エネルギーの 4 次までの表式は

$$F_{\rm MF} = \frac{1}{2} \sum_{ij} (T \delta_{\alpha\beta} \delta_{ij} - D_{ij}^{\alpha\beta}) \langle X_i^{\alpha} \rangle \langle X_j^{\beta} \rangle - \frac{T}{3!} \sum_i g_{\alpha\beta\gamma} \langle X_i^{\alpha} \rangle \langle X_i^{\beta} \rangle \langle X_i^{\gamma} \rangle + \frac{2T}{4!} \sum_i \left( g_{\alpha\beta\xi} g_{\xi\gamma\delta} + \delta_{\alpha\beta} \delta_{\gamma\delta} \right) \langle X_i^{\alpha} \rangle \langle X_i^{\beta} \rangle \langle X_i^{\gamma} \rangle \langle X_i^{\delta} \rangle$$
(3.2)

となる [10]。多極子の持つ対称性の情報は完全対称テンソル  $g_{lphaeta\gamma}$  に含まれ、

$$g_{\alpha\beta\gamma} = \frac{1}{2d} \operatorname{Tr}_i [(X_i^{\alpha} X_i^{\beta} + X_i^{\beta} X_i^{\alpha}) X_i^{\gamma}]$$
(3.3)

から求めることができる。2 重縮退の場合に  $X_i^{\alpha}$  としてパウリ行列を取ると、 $g_{\alpha\beta\gamma} = 0$ となり、よく知ら れたハイゼンベルク模型の平均場近似での自由エネルギーの表式が再現される。軌道縮退系で3 次項が現 れるのは、自発秩序によって分裂した準位を表す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。自発秩序または外場によって  $\langle X_i^{\alpha} \rangle$ 、 $\langle X_i^{\beta} \rangle$ が有限の値を持つとき、3 次項を通じて  $\langle X_i^{\gamma} \rangle$ が誘起 される。同一サイト*i*の和があるので、多極子秩序の組み合わせは運動量を保存する必要がある。どの多 極子が互いに関連しているかは、 $g_{\alpha\beta\gamma}$ の構造を解析することで容易に分かる。また、自由エネルギーは時 間反転に対して偶だから、3 次項に磁気多極子は偶数個含まれる。このことから、2 次転移で電気と磁気 の多極子が共存する場合は、必ず、磁気多極子が第1 秩序変数であることが結論される。 以上の一般論を用いて、IV 相を解析してみよう [10]。状況証拠から磁気八極子秩序の可能性が高い。 八極子には擬スカラーの $\Gamma_{2u}$ 型と3次元表現の $\Gamma_{5u}$ 型がある。 $\Gamma_{2u}$ 秩序の場合、4 重縮退は2つの2重項 に分裂する。秩序相でもなお縮退が残っているために一様帯磁率は転移温度以下でも増大し続け [9]、実 験結果と整合しない。また、 $\Gamma_{2u}$ 秩序は、 $\Gamma_{5g}$ 四極子秩序を誘起しない。そこで、 $\Gamma_{5u}$ 型の反強八極子秩序 を仮定してみよう。 $\Gamma_{5u}$ 型八極子の容易軸は [111] 方向 (とそれに等価な方向) である。以下では、誤解の 恐れがない限り、演算子 X<sup>a</sup> とその平均値 (X<sup>a</sup>) を区別せずに表記する。秩序変数を

$$\bar{X}_{Q}^{5u} \equiv \frac{1}{\sqrt{3}} \left[ X_{Q}^{5ux} + X_{Q}^{5uy} + X_{Q}^{5uz} \right]$$
(3.4)

とすれば、g<sub>αβγ</sub>の解析から関与する自由エネルギーは

$$F = \frac{a}{2}(T - T_{\rm IV})[\bar{X}^{5u}(Q)]^2 + \frac{b}{4}[\bar{X}^{5u}(Q)]^4 + \frac{a'}{2}[\bar{X}_0^{5g}]^2 - g[\bar{X}^{5u}(Q)]^2\bar{X}_0^{5g} + \cdots$$
(3.5)

となる<sup>\*4</sup>。ここで、a, a', b > 0であり、 $T_{IV}$ 近傍でa', bの温度変化を無視した。反強八極子は一様な四極 子  $\bar{X}_0^{5g} \equiv [X_0^{5gx} + X_0^{5gy} + X_0^{5gz}]/\sqrt{3}$ と結合している。このことから、反強八極子秩序が強的四極子秩序を 誘起し、[111] 軸に沿った格子歪みが生じることが分かる。秩序変数の温度依存性は $A = aa'/(a'b - 2g^2)$ として、それぞれ

$$\bar{X}_Q^{5u} = \sqrt{A(T_{\rm IV} - T)}, \ \bar{X}_0^{5g} = \frac{g}{a}A(T_{\rm IV} - T)$$
 (3.6)

と求まる。 $\bar{X}_Q^{5u}$ 秩序の場合、4 重項は下から1重、2重、1重に分裂する。最低エネルギー準位に縮退がないために、一様帯磁率にカスプ的な振る舞いが生じる。

秩序変数に対する感受率を求めるには、自由エネルギーの表式において  $T > T_{IV}$  で  $\bar{X}^{\alpha} \rightarrow \delta \bar{X}^{\alpha}$ 、  $T < T_{IV}$  で  $\bar{X}^{\alpha} \rightarrow \bar{X}^{\alpha} + \delta \bar{X}^{\alpha}$  として、 $\delta \bar{X}^{\alpha}$  で2階微分したものの逆行列を求めればよい。結果は、

$$\chi_{5u}(\mathbf{Q}) = \begin{cases} 1/2a(T_{\rm IV} - T) & (T < T_{\rm IV}) \\ 1/a(T_{\rm IV} - T) & (T > T_{\rm IV}) \end{cases}$$
(3.7)

および

$$\chi_{5g}(\mathbf{0}) = \begin{cases} bA/aa' & (T < T_{\rm IV}) \\ 1/a' & (T > T_{\rm IV}) \end{cases}$$
(3.8)

となる。第1秩序変数の感受率は通常どおり発散するが、第2秩序変数の感受率は転移温度で相関長が有限に留まるため発散しない。ただし、非線形感受率に異常が生じる可能性はある。 $\chi_{5g}(0)$ の転移温度での跳びは、 $\Delta\chi_{5g} \equiv \chi_{5g}(T_{\rm IV} - 0) - \chi_{5g}(T_{\rm IV} + 0) = 2g^2/a'(a'b - 2g^2) > 0$ と評価される。従って、歪み感受率は転移温度で不連続に増大、すなわち、弾性定数はソフト化の傾向を示すことが理解される。こうして、 $\Gamma_{5u}$ 型の反強八極子秩序は、主な実験事実を矛盾なく説明できることが示された。さらに詳細な平均場解析も行われており[11]、予言された一軸圧力による異方的な帯磁率も実験で確認されている[40]。

<sup>&</sup>lt;sup>\*4</sup>係数は g<sub>αβy</sub> から具体的に求めることもできるが、ここでは、より一般的にパラメータとした。

## 4. 共鳴 X 線散乱による多極子秩序の観測

共鳴 X 線散乱実験は、四極子秩序の観測に威力を発揮してきた [23,24,25]。この方法は、より高次の多 極子を観測する手段としても強力である。本節では、磁気八極子の初めての観測例である IV 相の共鳴 X 線実験結果とその理論解析を紹介する。

#### 4.1. 多極子秩序とアジマス角依存性

多極子秩序の実体は、磁性イオン付近に局所的に発生した平均電荷分布からのずれや渦電流などである。 このため超格子反射に現れる信号は非常に弱く中性子散乱や 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 [23]。例えば、希土類化合物では、 $L_2$ ,  $L_3$  吸収端の  $2p \rightarrow 5d \rightarrow 2p$  または  $2p \rightarrow 4f \rightarrow 2p$ 遷移過程を利用した実験が行われている。

特定サイトでの共鳴 X 線散乱の振幅は、フェルミの黄金律より

$$F_{\rm reso} = -\frac{\Delta^2}{\hbar^2 c^2} \sum_m \frac{W_{fi}^{(m)}}{\hbar\omega - \Delta + i\Gamma/2}$$
(4.1)

と与えられる。ここで、中間状態 m、および、その幅 Γ のエネルギー分布を無視した。共鳴 X 線散乱で は、入射 X 線のエネルギーを吸収端 Δ 付近に調節する。遷移の振幅は

$$W_{fi}^{(m)} = \langle f | \boldsymbol{\epsilon}' \cdot \boldsymbol{P} | m \rangle \langle m | \boldsymbol{\epsilon} \cdot \boldsymbol{P} | i \rangle + \langle f | \operatorname{Tr}(\hat{\boldsymbol{\epsilon}}' \cdot \hat{\boldsymbol{Q}}) | m \rangle \langle m | \operatorname{Tr}(\hat{\boldsymbol{\epsilon}} \cdot \hat{\boldsymbol{Q}}) | i \rangle$$
(4.2)

と書ける [41]。 $P = -e \sum_{n}^{\text{atom}} r_n$ ,  $\hat{Q}_{\alpha\beta} = -e \sum_{n} r_n^{\alpha} r_n^{\beta}/2$ は、電気双極子、電気四極子を表し、第1項は電気双極子遷移 (E1)、第2項は電気四極子遷移 (E2) と呼ばれる。また、X 線の波数ベクトルと偏極ベクトルからなる行列  $\hat{\epsilon}_{\alpha\beta} = k^{\alpha} \epsilon^{\beta}/2$ を導入した。希土類化合物では、E1 遷移は 5*d* を介する過程である。一方、E2 遷移は 4*f* を介する過程で、*f* 電子の状態をより直接的に観測していると言える。共鳴 X 線散乱は、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、Wigner-Eckart の定理を使って中間状態の和が実行できる。その結果、E1 遷移と E2 遷移における散乱振幅はスカラー積の形で書ける [42]。例えば、E2 遷移の散乱振幅は

$$W_{fi}^{E2} = \sum_{p=0}^{4} c_p \sum_{q=-p}^{p} \langle JM' | J_q^{(p)} | JM \rangle H_q^{(p)*}(\hat{\epsilon}', \hat{\epsilon})$$
(4.3)

と表される<sup>\*5</sup>。 $H_q^{(p)}(\hat{\epsilon}',\hat{\epsilon})$ は $k, k', \epsilon, \epsilon'$ から構成される p 階の球テンソルである。E1 遷移の場合も同様にスカラー積で書けるが、球テンソル $H_q^{(p)}(\hat{\epsilon}',\hat{\epsilon})$ が別の球テンソル $K_q^{(p)}(\epsilon',\epsilon')$ に置き換わる。もし、 $J_q^{(p)}$ の多極子秩序が発生したならば、散乱振幅に $H_q^{(p)}(\hat{\epsilon}',\hat{\epsilon})$ を介して X 線の散乱ベクトルや偏極の情報が反映されるわけである。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 線の散乱過程を第6図に示すような座標系を用いて記述しよう。この座標系で試料を Z 軸まわりに角度  $\psi$  だけ回転させる。回転するにつれて k や  $\epsilon_{\sigma}$  などが変化するので  $K_q^{(p)}(\epsilon',\epsilon)$  と  $H_q^{(p)}(\hat{\epsilon}',\hat{\epsilon})$ 

<sup>&</sup>lt;sup>\*5</sup>c<sub>p</sub> は還元行列要素や 9j 記号を用いて表される定数。

の表式は角度に依存する。用いる座標系を決めれば、それぞれの多極子秩序に対して散乱振幅の角度依存 性を顕わに書き下すことができる [13]。散乱角 θ は X 線の波長から決まる。散乱強度の ψ 依存性は多極 子の種類によって異なるので、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。(4.3) 式が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 依存性は、単純な座標変換によって簡単に求まる。

#### 4.2. Ce<sub>0.7</sub>La<sub>0.3</sub>B<sub>6</sub>のIV相の理論解析

Ce<sub>0.7</sub>La<sub>0.3</sub>B<sub>6</sub>の IV 相の実験結果とその理論解析について述べよう。Ce の L<sub>2</sub> 吸収端を用いた 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第7図に示す [12]。 E2σ-σ' 遷移では、明確な6回振動が観測されているので、[111] 軸まわりの6回対称な秩序が発生してい るはずである。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、その散乱強度は多 極子の形状を最も忠実に反映していると考えられる。第8図にZ=[111]方向から見た多極子の形状を示 す。3 成分の多極子については、(3.4) 式と同様の定義を用いた。このうち明確な6回対称性を持つもの は、 $\Gamma_{2u}$ 、 $\Gamma_{4u}$ 、 $\Gamma_{5u}$ 、および、 $\Gamma_{4g}$ 型の多極子である。また、 $\Gamma_{2u}$ 、 $\Gamma_{4u}$  と  $\Gamma_{5u}$ 、 $\Gamma_{4g}$ の角度依存性は異なる はずである。実際、散乱強度の角度依存性を求めてみると、第2表に示すように、 $\Gamma_{2u}$ 、 $\Gamma_{4u}$ 型が  $\sin^2(3\psi)$ の角度依存性を、 $\Gamma_{5u}$ 型が  $\cos^2(3\psi)$ の角度依存性を示す。選択則から  $\Gamma_{4q}$ 型の寄与がゼロとなっている 他は、形状から期待される角度依存性が得られる。実験結果は $\psi = 0$ で最大値を示しており、 $\Gamma_{5u}$ 型だけ がこれに符合する。一方、E2σ-π' 遷移は3回対称に近い振動を示しており、第2表の結果と食い違って いる。この点については、[111] 方向の秩序と等価な4つのドメインからの寄与を考慮すれば解決される。 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  $\Gamma_{5u}$  型八極子秩序に対して計算を行ったも のが、第7図の点線、破線である。ここで、 $A_{\sigma\sigma'}$ と $A_{\sigma\pi'}$ 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 θ = -39°を用いた (負符号は軸の取り方の違いによる)。理論曲 線は、σ-σ'、σ-π'の両過程で、実験結果と非常に良い一致を示している。ドメインの比率を多少変えても 角度依存性は定性的に変わらない。エネルギー・プロファイルについても詳しい議論が行われている[43]。

こうして、 $Ce_xLa_{1-x}B_6$ の IV 相における共鳴 X 線散乱も含めた主要な実験事実はすべて、 $\Gamma_{5u}$ 型の磁 気八極子秩序によって説明された。 $Ce_xLa_{1-x}B_6$ の場合は、E2 遷移が 4f 電子の状態を直接見ていること や、誘起された四極子秩序の伝搬ベクトルが磁気八極子秩序のものと異なっているために、E2 遷移の信 号が明瞭に観測できたものと思われる。他に、八極子秩序の存在が報告されているものとして NpO<sub>2</sub> があ る [44]。しかし、この場合の八極子秩序は直接観測ではなく、同じ伝搬ベクトルをもつ四極子秩序の観測 を通じた間接的なものである。アクチノイド化合物で八極子を見るには、 $M_2$ 、 $M_3$  吸収端を用いるのが有 利である。この場合 E2 遷移が  $3p \leftrightarrow 5f$  の遷移過程に対応するからである。これに対して、 $M_4$ 、 $M_5$  吸 収端からの E1 遷移も  $3d \leftrightarrow 5f$  で、5f 電子の状態を直接反映するが、八極子は見ることはできない。一 方、 $M_4$ 、 $M_5$  吸収端の E2 遷移は  $3d \leftrightarrow 6g$  の遷移過程に対応するため、散乱強度は非常に弱い。高次多 極子の共鳴 X 線散乱による観測には、常にこうした事情を考慮に入れてデータを解析する必要がある。

### 5. おわりに

本稿では、電荷やスピンの自然な拡張としての多極子が f 電子系の物性においてどのように現れるの か、特に、磁気八極子秩序を背景とする物理とその観測を中心に述べた。Ce<sub>x</sub>La<sub>1-x</sub>B<sub>6</sub> は、磁気八極子秩 序の物理が明快に現れている初めての例であり、今後の高次多極子秩序の探索に有益な指針を与えてくれ るのではないかと考えている。八極子秩序としては他に、NpO<sub>2</sub> や SmRu<sub>4</sub>P<sub>12</sub> などでその可能性が議論さ れている [44,45]。さらに PrRu<sub>4</sub>P<sub>12</sub> では、スカラー型の反強電気十六極子秩序が実現している可能性が高 い [46,47]。こうした高次多極子秩序の探索に加えて、今後、多極子の揺らぎ [48,49,50] や低エネルギー の多極子励起 [51,52,53] などが重要な問題となってくるだろう。

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、中尾裕則、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 の諸先生には多くご教示いただいた。この場を借りて感謝したい。

# References

- [1] 例えば、特集号 巨大磁気伝導の新展開, 固体物理 32 No. 4 (1997).
- [2] S. Maekawa, T. Tohyama, S.E. Barnes, S. Ishihara, W. Koshibae and G. Khaliullin: *Physics of Transition Metal Oxides* (Springer 2004).
- [3] 木村剛: 固体物理 39 (2004) 175.
- [4] 斯波弘行: 固体物理 33 (1998) 369.
- [5] Proceedings of the International Conference on Strongly Correlated Electrons with Orbital Degrees of Freedom, J. Phys. Soc. Jpn. Suppl. 71 (2002).
- [6] 榊原俊郎: 固体物理 33 (1998) 321.
- [7] R. Shiina, H. Shiba and P. Thalmeier: J. Phys. Soc. Jpn. 66 (1997) 1741; 椎名亮輔、酒井治: 固体物 理 33 (1998) 631.
- [8] M. Sera and S. Kobayashi: J. Phys. Soc. Jpn. 68 (1999) 1664; 世良正文: 固体物理 35 (2000) 229.
- [9] Y. Kuramoto and H. Kusunose: J. Phys. Soc. Jpn. 69 (2000) 671.
- [10] H. Kusunose and Y. Kuramoto: J. Phys. Soc. Jpn. 70 (2001) 1751.
- [11] K. Kubo and Y. Kuramoto: J. Phys. Soc. Jpn. 73 (2004) 216.
- [12] D. Mannix, Y. Tanaka, D. Carbone, N. Bernfoeft, and S. Kunii: Phys. Rev. Lett. 95 (2005) 117206.
- [13] H. Kusunose and Y. Kuramoto: J. Phys. Soc. Jpn. 74 (2005) 3139.
- [14] C. Schwartz: Phys. Rev. 97 (1955) 380.
- [15] K.W.H. Stevens: Proc. Phys. Soc. A65 (1952) 209.

- [16] R. Chatterjee, J.A. Tuszyński and H.A. Buckmaster: Can. J. Phys. 61 (1983) 1613.
- [17] 小野寺、田辺、犬井:応用群論(裳華房、1976)
- [18] 例えば、http://www.cmpt.phys.tohoku.ac.jp/~kusu/doc/eq-op.pdf
- [19] 後藤輝孝: 固体物理 25 (1990) 1.
- [20] Y. Ito and J. Akimitsu: J. Phys. Soc. Jpn. 40 (1976) 1333.
- [21] O. Sakai, R. Shiina, H. Shiba and P. Thalmeier: J. Phys. Soc. Jpn. 66 (1997) 3005.
- [22] K. Hanzawa: J. Phys. Soc. Jpn. 69 (2000) 510; 半澤克郎: 固体物理 36 (2001) 459.
- [23] 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.
- [24] 石原純夫: 固体物理 37 (2002) 1.
- [25] 特集号 放射光 X 線による構造物性研究の最前線, 固体物理 37 No. 9 (2002).
- [26] 上村、菅野、田辺:配位子場の理論と応用(裳華房、1969)p.145, p.173. (ただし、p.173 の表 8-3 に は誤植がある。正しい表式は [18] を参照のこと。)
- [27] R. Shiina and Y. Aoki: J. Phys. Soc. Jpn. 73 (2004) 541; R. Shiina: ibid. 2257.
- [28] T. Tayama, J. Custers, H. Sato, T. Sakakibara, H. Sugawara and H. Sato: J. Phys. Soc. Jpn. 73 (2004) 3258.
- [29] A. Kiss and Y. Kuramoto: J. Phys. Soc. Jpn. 74 (2005) 2530.
- [30] D.L. Cox and A. Zawadowski: Adv. Phys. 47 (1998) 599.
- [31] H. Tanida, H.S. Suzuki, S. Takagi, H. Onodera and K. Tanigaki: J. Phy. Soc. Jpn. 75 (2006) 073706;
  H. Tanida, S. Takagi, H.S. Suzuki, I. Satoh and T. Komatsubara: *ibid.* 75 (2006) 074721.
- [32] T. Tayama, T. Sakakibara, K. Tenya, H. Amitsuka and S. Kunii: J. Phys. Soc. Jpn. 66 (1997) 2268.
- [33] H. Nakao, K. Magishi, Y. Wakabayashi, Y. Murakami, K. Koyama, K. Hirota, Y. Endoh and S. Kunii: J. Phys. Soc. Jpn. 70 (2001) 1857.
- [34] J.M. Effantin, J. Rossat-Mignod, P. Burlet, H. Bartholin, S. Kunii and T. Kasuya: J. Magn. Magn. Mater. 47&48 (1985) 145.
- [35] O. Suzuki, T. Goto, S. Nakamura, T. Matsumura and S. Kunii: J. Phys. Soc. Jpn. 67 (1998) 4243.
- [36] K. Iwasa, K. Kuwahara, M. Kohgi, P. Fischer, A. Dönni, L. Keller, T.C. Hansen, S. Kunii, N. Metoki, Y. Koike and K. Ohoyama: Physica B 329&333 (2003) 582.
- [37] K. Magishi, M. Kawakami, T. Saito, K. Koyama, K. Mizuno, and S. Kunii: Z. Naturforsch. 57a (2002) 441.
- [38] H. Takagiwa, K. Ohishi, J. Akimitsu, W. Higemoto, R. Kadono, M. Sera and S. Kunii: J. Phys. Soc. Jpn. 71 (2002) 31.
- [39] M. Akatsu, T. Goto, Y. Nemoto, O. Suzuki, S. Nakamura and S. Kunii: J. Phys. Soc. Jpn. 72 (2003) 205.
- [40] T. Morie, T. Sakakibara, T. Tayama and S. Kunii: J. Phys. Soc. Jpn. 73 (2004) 2381.
- [41] 例えば、小出昭一郎: 量子力学 (II) 第 13 章 (裳華房、1990).
- [42] S.W. Lovesey and E. Balcar: J. Phys.: Condens. Matter 8 (1996) 10983; S.W. Lovesey: *ibid.* 8 (1996)

11009.; S.W. Lovesey, E. Balcar, K.S. Knight and J. Fernández Rodriguez: Phys. Rep. **411** (2005) 233.

- [43] T. Nagao and J. Igarashi: cond-mat/0605288.
- [44] 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.
- [45] M. Yoshizawa, Y. Nakanishi, M. Oikawa, C. Sekine, I. Shirotani, S.R. Saha, H. Sugawara and H. Sato: J. Phys. Soc. Jpn. 74 (2005) 2141.
- [46] Y. Kuramoto, J. Otsuki, A. Kiss and H. Kusunose: Prog. Theor. Phys. Suppl. 160 (2005) 134.
- [47] T. Takimoto: J. Phys. Soc. Jpn. 75 (2006) 034714.
- [48] G. Uimin: Phys. Rev. B 55 (1997) 8267.
- [49] N. Fukushima and Y. Kuramoto: J. Phys. Soc. Jpn. 67 (1998) 2460.
- [50] R. Shiina: J. Phys. Soc. Jpn. 70 (2001) 2746.
- [51] H. Kusunose and Y. Kuramoto: J. Phys. Soc. Jpn. 70 (2001) 3076.
- [52] R. Shiina, H. Shiba, P. Thalmeier, A. Takahashi and O. Sakai: J. Phys. Soc. Jpn. 72 (2003) 1216.
- [53] R. Shiina, M. Matsumoto and M. Koga: J. Phys. Soc. Jpn. 73 (2004) 3453.

多極子	磁気双極子	電気四極子	磁気八極子
手段、場	磁場	一軸性圧力	局所磁場
	中性子散乱	弾性定数 (超音波)	$\mu SR$
	NMR	NMR, NQR	NMR
	$\mu$ SR	偏極中性子散乱	共鳴 X 線散乱
		共鳴 X 線散乱	

Table.1 多極子自由度とその観測手段。

$p-\Gamma_n$	E2 σσ′	E2 $\sigma\pi'$
1 <b>-</b> 4u	0	$\frac{1}{40}\sin^2(3\theta)$
2-5g	$\tfrac{1}{224}(3+\cos(2\theta))^2$	0
3 <b>-</b> 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	$\frac{1}{1512}(5 - 3\cos(2\theta))^2$	$\frac{1}{1296}\cos^6\theta\sin^2(3\psi)$

Table. 2 [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。



Fig. 1 点群  $O_h$  の 4 重項  $\Gamma_8$  結晶場基底で活性な多極子の形状。電気多極子における緑と紫は平均電 荷密度からのずれの正負を表す。また、磁気多極子の場合、N 極 S 極の「磁荷」分布を赤と青で表し、 これらの磁荷分布が内部磁場または渦電流を作り出すとみなす。



Fig. 2  $Ce_x La_{1-x} B_6$ の磁気相図 [32]。



Fig. 3 Ce<sub>0.75</sub>La<sub>0.25</sub>B<sub>6</sub>の磁場中比熱の温度依存性 [35]。



Fig. 4 Ce<sub>x</sub>La<sub>1-x</sub>B<sub>6</sub>の一様帯磁率の温度依存性 [32]。



Fig. 5 Ce<sub>0.75</sub>La<sub>0.25</sub>B<sub>6</sub>の弾性定数の温度依存性 [35]。



Fig. 6 共鳴X線散乱で用いる座標系。散乱強度のアジマス角  $\psi$  依存性は、試料を Z 軸まわりに回転 させることで得られる。 $\psi = 0$  のとき X 線の波数ベクトルは YZ 面内にある。偏極ベクトルも合わせ て示した ( $\epsilon_{\sigma} \times \epsilon_{\pi} = k/|k|$ )。



Fig. 7 Ce<sub>0.7</sub>La<sub>0.3</sub>B<sub>6</sub> における Z = [111] 軸まわりの共鳴 X 線散乱強度のアジマス角依存性。シンボルは測定結果 [12]、点線、破線は  $\Gamma_{5u}$  型磁気八極子を仮定した理論曲線 [13]。



Fig. 8 Z = [111]軸から見た多極子の形状。p-nは、p階 $\Gamma_n$ 型の多極子を表す。