

令和 5 年 6 月 26 日現在

機関番号：14301

研究種目：若手研究

研究期間：2021～2022

課題番号：21K13881

研究課題名（和文）量子スピン液体におけるトポロジカル秩序相の解明と制御

研究課題名（英文）Elucidation and control of topological order in quantum spin liquids

研究代表者

末次 祥大（Suetsugu, Shota）

京都大学・理学研究科・助教

研究者番号：00893710

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,500,000円

研究成果の概要（和文）：局在スピンの絶対零度においても秩序化・凍結せずに揺らいでいる量子スピン液体ではスピンのマヨラナ粒子などの全く異なった自由度として振る舞うため注目されている。その候補物質としては $-RuCl_3$ が知られているが、実際に量子スピン液体状態を実現しているかどうかは論争の的となってきた。本研究計画では $-RuCl_3$ の比熱・熱伝導度の精密測定から磁場中で一次相転移が存在することを示し、量子スピン液体相が存在することを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

量子スピン液体状態で現れるマヨラナ粒子は環境ノイズに強いトポロジカル量子計算の実現に必要なため注目を集めている。本研究ではその候補物質である $-RuCl_3$ において確かに量子スピン液体状態が実現していることを示し、これまでの論争に決着をつけた。以上の研究成果により量子スピン液体状態の存在が確立されたため、今後はマヨラナ粒子を探索する研究がさらに加速することが期待される。

研究成果の概要（英文）：Quantum spin liquids, in which localized spins fluctuate without magnetic order or spin freezing even at absolute zero temperature, have attracted much attention because the localized spins fractionalized into different degrees of freedom, such as Majorana fermions. Although $-RuCl_3$ is known as a candidate material for the quantum spin liquid, it has been controversial whether the quantum spin liquid state is actually realized or not. In this project, we have demonstrated the existence of a first-order phase transition in a magnetic field by the specific heat and thermal conductivity experiments on $-RuCl_3$. Our results indicate the presence of the quantum spin liquid phase in $-RuCl_3$.

研究分野：物性実験

キーワード：量子スピン液体 トポロジ

1. 研究開始当初の背景

局在スピンの絶対零度においても秩序化・凍結せずに揺らいでいる状態を量子スピン液体と呼ぶ。その中でも量子スピン液体状態を基底状態として持つキタエフ模型は、局在スピンのマヨラナ粒子に分数化するため非可換エニオンなどのマヨラナ粒子によるトポロジカル励起を探索する格好の舞台となっている。このキタエフ型量子スピン液体はハニカム格子を持った Ir や Ru 化合物で実現すると理論的に提案されており、代表的なキタエフ模型候補物質としては α - RuCl_3 が知られている。この物質はゼロ磁場ではおよそ 7 K 以下でジグザグ型の反強磁性秩序を示すが、Ru が形成するハニカム格子面内に 7 T 以上の磁場をかけると磁気秩序が抑制され、磁場誘起量子無秩序状態となる。

磁場で誘起された量子無秩序状態においてマヨラナ粒子のカイラルエッジ流に由来する半整数熱量子ホール効果などが観測されており、トポロジカル量子スピン液体状態を実現しているのではないかと期待されている。一方、いくつかの実験では磁場誘起量子無秩序状態での新たな相転移は観測されていない。そのため、量子無秩序状態が量子スピン液体状態を実現しているかどうかは論争的となっている。

2. 研究の目的

本研究の第一の目的は磁場誘起量子無秩序状態における量子スピン液体状態の存在を検証することである。そのためには、反強磁性相と強磁場極限下におけるスピン偏極相の間に異なった中間相が生じているかを調べるのが重要であり、量子無秩序状態における相転移の有無を明らかにするのが重要な課題である。

本研究の第二の目的は量子スピン液体状態が実現している場合、そのトポロジカルな性質が磁場下でどのように変化するか調べることである。

3. 研究の方法

キタエフ型量子スピン液体候補物質 α - RuCl_3 の極低温、面内磁場下における相転移の有無を調べるため、単結晶試料の比熱・熱伝導度の精密測定を行った。比熱は熱力学的な量なため相転移を調べるのに適した物理量であり、熱伝導度はエントロピーの流れと密接に結びついた量なので一次相転移を検出するのに有効なプローブである。熱ホール伝導度の半整数量子化を含めた α - RuCl_3 の物性は試料内のスタッキングフォルトに非常に敏感であることが知られているため、本研究では半整数熱量子ホール効果が観測されている試料を用いてトポロジカルな性質との比較を可能にした。

4. 研究成果

磁場をハニカム格子のジグザグ方向 (a 軸方向) にかけた場合の比熱のピークから 7.3 T 程度の磁場で量子無秩序状態になっていることがわかった。さらに熱伝導測定でも量子無秩序状態に到達する磁場で明瞭なディップが観測された。より高磁場における量子無秩序状態での熱伝導度にはいくつかのピーク構造が観測された (図 1)。以前の研究では通常は金属でしか観測されない量子振動が絶縁体でも生じている可能性が提案されていたが、低温でこのピーク構造が消失していくことが観測されたため低温でより顕著に観測される量子振動とは異なる起源であることが示唆された。

量子無秩序状態で観測された最も著しい特徴はジグザグ方向に 11 T の磁場下で現れる熱伝導度の不連続なジャンプである (図 2 上)。熱伝導度はエントロピーの流れと密接に結びついた量なので、これは一次相転移が存在することを示す結果である。さらに比熱ではピークが観測され、相転移が存在する熱力学的な証拠を得た。さらに、熱伝導や比熱で観測された異常は高温で見えづらく

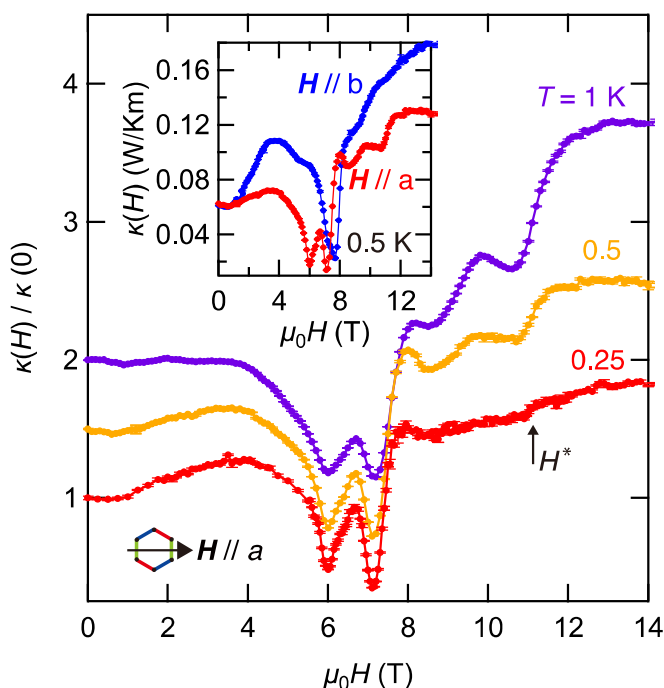


図 1: 熱伝導度の磁場依存性

なるといった、熱力学的な相転移であることを支持する結果も得られた。

さらに興味深いことに、同一試料における熱ホール伝導度の測定結果と比較すると、熱伝導度や比熱が異常を示す磁場と非常に近い磁場において熱ホール伝導度が半整数量子化値からズレ始めることがわかった(図1下)。これらの結果から、今回観測された一次相転移はトポロジカルな性質に影響を与えることがわかった。

また、磁場を八ニカム格子のジグザグ方向とボンド方向にかけた場合を比較すると 11 T よりも上の磁場においても熱伝導度の値を大きく異なることがわかった。強磁場極限下のスピン偏極状態ではこのような異方性は現れないため、この結果は 11 T よりも上の磁場でもスピン液体状態が保たれていることを示唆している。これを踏まえて作成した量子無秩序状態における $-RuCl_3$ の相図を図2に示す。今回の結果から、絶対零度におけるトポロジカル相転移から一次相転移線が発生していると考えられる。

以上まとめると、 $-RuCl_3$ の熱伝導度と比熱の測定を行い、観測された異常から 11 T に一次相転移が存在することを見出した。さらに、高磁場でも熱伝導の異方性が残っていることからスピン液体状態が保たれていることが期待される。同一試料の熱ホール伝導度との比較も合わせると、今回観測された一次相転移はトポロジカルに非自明なチャーン数を持った量子スピン液体状態からチャーン数 0 の量子スピン液体状態へのトポロジカル相転移であることが示唆された。

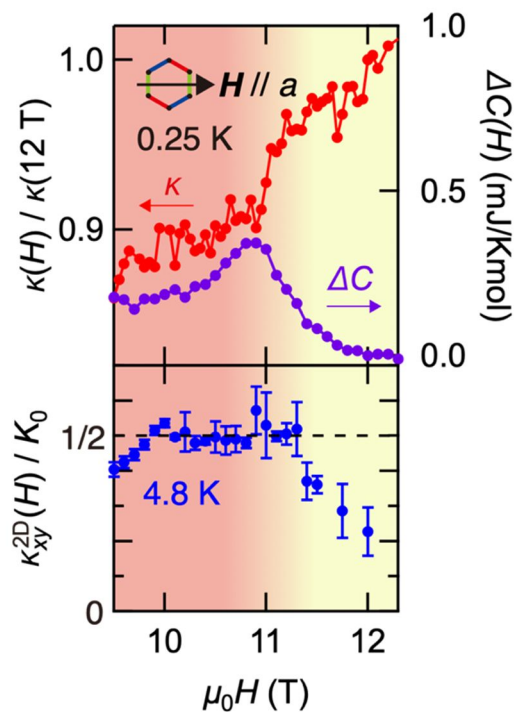


図 2: 熱伝導度と比熱(上)と同一試料で測定された熱ホール伝導度(下)。

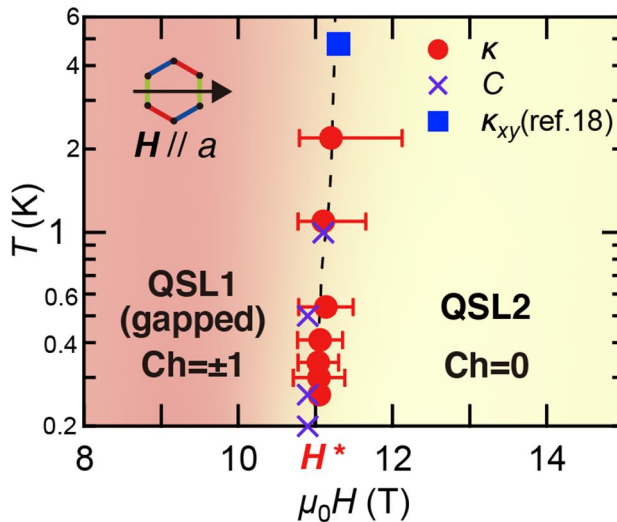


図 3: $-RuCl_3$ のジグザグ方向磁場下の磁場温度相図。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Suetsugu S., Yokoi T., Totsuka K., Ono T., Tanaka I., Kasahara S., Kasahara Y., Chengchao Z., Kageyama H., Matsuda Y.	4. 巻 105
2. 論文標題 Intrinsic suppression of the topological thermal Hall effect in an exactly solvable quantum magnet	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 24415
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.105.024415	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Suetsugu Shota, Ukai Yuzuki, Shimomura Masaki, Kamimura Masashi, Asaba Tomoya, Kasahara Yuichi, Kurita Nobuyuki, Tanaka Hidekazu, Shibauchi Takasada, Nasu Joji, Motome Yukitoshi, Matsuda Yuji	4. 巻 91
2. 論文標題 Evidence for a Phase Transition in the Quantum Spin Liquid State of a Kitaev Candidate -RuCl ₃	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 124703
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.7566/JPSJ.91.124703	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kasahara Y., Suetsugu S., Asaba T., Kasahara S., Shibauchi T., Kurita N., Tanaka H., Matsuda Y.	4. 巻 106
2. 論文標題 Quantized and unquantized thermal Hall conductance of the Kitaev spin liquid candidate -RuCl ₃	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 L060410
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.106.L060410	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件/うち国際学会 2件）

1. 発表者名 S. Suetsugu, Y. Ukai, M. Shimomura, M. Kamimura, T. Asaba, Y. Kasahara, N. Kurita, H. Tanaka, T. Shibauchi, J. Nasu, Y. Motome, Y. Matsuda
2. 発表標題 Field-induced first-order topological phase transition in a Kitaev spin liquid candidate -RuCl ₃
3. 学会等名 APS March meeting 2022（国際学会）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 S. Suetsugu, M. Shimomura, M. Kamimura, T. Asaba, H. Asaeda, Y. Kosuge, Y. Sekino, S. Ikemori, Y. Kasahara, Y. Kohsaka, M. Lee, Y. Yanase, H. Sakai, P. Opletal, Y. Tokiwa, Y. Haga, and Y. Matsuda
2. 発表標題 Fully gapped pairing states in spin-triplet superconductor UTe2
3. 学会等名 APS March Meeting 2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 S. Suetsugu, M. Shimomura, M. Kamimura, T. Asaba, H. Asaeda, Y. Kosuge, Y. Sekino, S. Ikemori, Y. Kasahara, Y. Kohsaka, Y. Yanase, H. Sakai, P. Opletal, Y. Tokiwa, Y. Haga, and Y. Matsuda
2. 発表標題 Fully gapped pairing states in spin-triplet superconductor UTe2
3. 学会等名 非自明な電子状態で発現する超伝導現象の新しい潮流
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関