

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 5月28日現在

機関番号：14301

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2010 ～ 2011

課題番号：22740224

研究課題名（和文） 量子スピン液体状態におけるスピン励起による熱輸送の研究

研究課題名（英文） Thermal-transport study of spin excitations in quantum spin liquid state

研究代表者

山下 穰（YAMASHITA MINORU）

京都大学・理学研究科・助教

研究者番号：10464207

研究成果の概要（和文）：

磁性体の持つスピンの長距離秩序が量子力学的揺らぎにより融解した量子スピン液体状態は、長年にわたって論争の続く未知の状態である。我々は極低温における熱伝導率測定により、幾何学的フラストレーションを持つ二次元三角格子のスピン配列を持つ有機物におけるスピン液体状態を調べた結果、ギャップを持たない連続的な励起を持つスピン液体状態が存在することを見出した。特に準粒子がほとんど散乱を受けずに熱を運ぶことや、磁場によって誘起される磁気的ギャップを持った準粒子も共存することなど、スピン液体の興味ある性質の一端が明らかになった。

研究成果の概要（英文）：

Quantum spin liquids (QSLs) are fluid-like states of quantum spins where its long-range ordered state is destroyed by quantum fluctuations. The ground state of QSL and its exotic phenomena, which have been extensively discussed for decades, have yet to be identified. We employ thermal transport measurements on newly discovered QSL candidates, and find a sizable linear temperature dependence of thermal conductivity in the zero-temperature limit, showing gapless excitation with a long mean free path ($\sim 1,000$ lattice distances). Such a long mean free path demonstrates a novel feature of QSL as a quantum-condensed state with long-distance coherence.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010 年度	2,400,000	720,000	3,120,000
2011 年度	900,000	270,000	1,170,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,330,000	990,000	4,290,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物性 II

キーワード：磁性

1. 研究開始当初の背景

反強磁性的に相互作用する大きさ $1/2$ のスピンの二次元三角格子状に配置されたときの基底状態と低エネルギー励起はどうか？この問題は非常に単純でありながら、三

角格子という幾何学的なフラストレーションの為、いまだ理論的解決を見ない物性物理における大問題のひとつである。

このような幾何学的フラストレーションの強い系において、スピンの絶対零度まで長

距離秩序を持たず、励起に対するエネルギーギャップも持たないギャップレススピン液体が実現している可能性が理論的に提案されており、スピン液体状態の基底状態を実験的に明らかにすることが強く望まれている。近年、この系を研究するためのモデル物質となりうる有機物が発見され、核磁気共鳴法(NMR)などの磁氣的測定から長距離秩序を持たないスピン液体状態になっていることが示された。スピン励起におけるエネルギーギャップの有無はスピン液体状態を特徴づける上で最も基本的な情報であり、極低温まで不純物の影響を受けない熱伝導率測定が最もよい測定方法である。実際、スピン液体状態を示す有機物 κ -(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₃において非常に小さなエネルギーギャップの存在が我々の熱伝導率測定によって初めて明らかになった。最近、より均一なスピン液体状態をもつ有機物 EtMe₃Sb[Pd(dmit)₂]₂ が発見され、より理想的なスピン液体状態を研究できるモデル物質としてそのスピン励起を熱伝導率測定によって明らかにすることが強く望まれていた。また、比熱測定から κ -(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₃、EtMe₃Sb[Pd(dmit)₂]₂ ともに低温までギャップの無いフェルミ粒子的な励起が存在することが示唆されたが、その励起を明らかにするために磁場下での熱ホール効果測定が決定的な役割を果たすことが理論的に提案された。スピン励起に対する熱ホール効果という全く新奇な実験手法の提案に対してその検証が急務となっていた。

また、これらの素励起の磁氣的性質はスピン状態の詳細を知るうえで非常に重要な役割を果たす。上記の比熱や熱伝導率などの熱測定では非磁性的な励起が素励起を担っているのか、磁性的な励起が担っているのかは明らかでない。そこで、極低温まで磁化率を測定することが求められたがわずかに存在する不純物のために低温での磁化率の測定は困難であった。そこで、磁気トルク測定によって不純物の影響を排除した測定が求められた。

2. 研究の目的

本研究の目的は、極低温における熱伝導率測定および熱ホール効果の測定というフェルミオン励起に敏感な測定を用いて、励起におけるエネルギーギャップの有無やスピノンにフェルミ面の存在など、スピン液体状態の低エネルギー励起を明らかにすることである。さらに、磁気トルク測定によってその素励起の磁氣的性質を極低温まで明らかにすることである。

3. 研究の方法

量子スピン液体の素励起を明らかにする

ために熱伝導率測定と磁気トルク測定を極低温まで行った。

まず、均一度の高いスピン液体状態をもつことがNMRによって示された

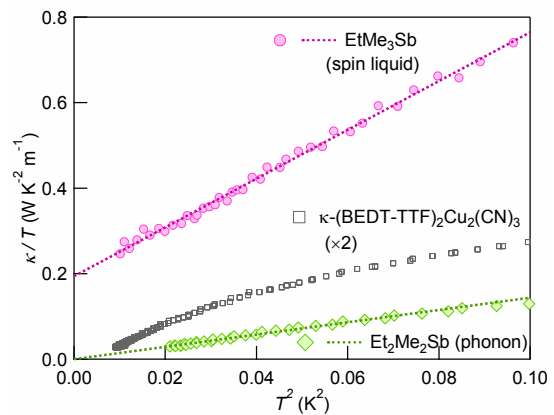
EtMe₃Sb[Pd(dmit)₂]₂の熱伝導率測定を極低温まで行い、この物質におけるスピン励起におけるギャップの有無やその温度依存性を明らかにする。その後、大きなスピンギャップをもつ Et₂Me₂Sb[Pd(dmit)₂]₂の測定から格子の寄与を差し引き、スピン励起に対する評価を行う。

続いて、AFM用のカンチレバーを用いた磁気トルク測定を行った。複数の試料について比較的高温から測定を行った。その後、極低温までの実験をフランスのグルノーブルにある強磁場施設と物質材料機構の強磁場施設において行った。

4. 研究成果

本研究成果の中でもっとも目覚ましい点は量子スピン液体状態においてギャップレスの素励起があり、それが磁氣的な性質を持っている点を明らかにしたことである。

下にスピン液体の候補物質 EtMe₃Sb[Pd(dmit)₂]₂ と比較のために測定した非磁性の Et₂Me₂Sb[Pd(dmit)₂]₂ の熱伝導率の温度依存性を示す。



この結果からスピン液体の候補物質 EtMe₃Sb[Pd(dmit)₂]₂ においては極低温で大きな熱伝導率を示し、温度に比例する項が最低温まで残っていることが分かった。これはスピン励起が最低温までギャップレスに残っていることを意味する。このギャップレス励起の平均自由行程を見積もったところ、約 1 μm 程度と格子間隔の 1,000 倍にも及ぶ長さになっていることが分かった。これはこのギャップレス励起がほとんど散乱されずに熱を運んでいることを意味する。このことはこのスピン液体が非常にコヒーレンスの良いスピン液体であることを意味していると考えられる。一方、磁場中ではスピン励起にギャップがあるような振る舞いが観測

された。これは二種類の異なるスピン励起が存在することを意味する。これらの振る舞いは以前に行った κ -(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₃ とは全く異なり、本質的に異なるスピン液体状態が存在していることを明らかにした。さらに我々は熱ホール効果の測定に挑戦した。これは強磁場中において熱流に対して直角方向に温度差が現れる現象で電子系ではよく知られているがスピン系ではまったく測定例がない。しかし、スピノン励起に対しては熱ホール効果が存在することが最近理論的に示されその存在が注目を集めていた。我々は熱ホール効果を最低温度から 12 テスラの強磁場までの測定を試みたが、測定精度の範囲内においてその存在を確認することはできなかった。

さらにこの素励起の磁氣的性質を明らかにするため、フランスのグルノーブルにある強磁場施設を用いて 50 mK, 32 テスラまでの極低温強磁場環境下において磁気トルク測定を行った。その結果、量子スピン液体の候補物質である EtMe₃Sb[Pd(dmit)₂]₂ において磁化がほぼ線形な磁場依存性を示すことが分かった。最低温の 30 mK においてもほとんどゼロ磁場から 32 T の最高磁場まで異常のない磁化の増加が観測された。これは非常に強く相互作用しあったスピンが磁気励起にギャップのない量子スピン液体状態にあることを示している。ギャップのない磁気励起は磁気秩序した物質の性質であるから、磁気秩序のない量子スピン液体でこのような励起が観測されたのは驚きであった。さらに高精度の測定を行うため物質・材料研究機構 (NIMS) の強磁場施設を用いた磁気トルク測定を NIMS の宇治グループの協力を得て行った。その結果、ほぼゼロ磁場からの磁化の線形な増加を非常に高精度に観測することに成功した。さらに、重水素置換することによって物質の性質を少し変えてもこのギャップの磁気励起は安定に存在することを見出した。磁気秩序相と量子スピン液体相を考えた場合、そのどちらに属するかによって磁気秩序か磁気励起に対するギャップがあるか考えるのが今までの常識であった。そのため、今回明らかになった磁気秩序と磁気励起に対するギャップの両方が存在しないという実験事実を説明するためには、二つの異なる相の間にある量子臨界点にその物質がたまたま位置していたと考えざるを得ない。ところが、重水素置換した試料においても同様の性質が観測されたことから、今回の実験結果は今まで考えられていた描像とは異なる新奇な量子臨界相が量子スピン液体に存在していることを示唆する実験結果であるといえ、今後のさらなる発展が期待できる。

5. 主な発表論文等
(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 8 件)

1. (Review article)
"Thermal-Transport Studies on Two-Dimensional Quantum Spin Liquids"
M. Yamashita, T. Shibauchi, and Y. Matsuda
ChemPhysChem **13**, 74-78 (2012)
2. 二次元量子スピン液体の熱輸送現象
山下穰、芝内孝禎、松田祐司
日本物理学会誌 **66**, 928-932 (2011)
3. Nodal versus Nodeless Behaviors of the Order Parameters of LiFeP and LiFeAs Superconductors from Magnetic Penetration-Depth Measurements
K. Hashimoto, S. Kasahara, R. Katsumata, Y. Mizukami, M. Yamashita, H. Ikeda, T. Terashima, A. Carrington, Y. Matsuda, and T. Shibauchi
Phys. Rev. Lett. **108**, 47003 (2012)
4. Extremely strong coupling superconductivity in artificial two-dimensional Kondo lattices
Y. Mizukami, H. Shishido, T. Shibauchi, M. Shimozawa, S. Yasumoto, D. Watanabe, M. Yamashita, H. Ikeda, T.

Terashima, H. Kontani, Y.
Matsuda

Nature Physics, **7**, 849 (2011)

5. Nodal gap structure of superconducting $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$ from angle-resolved thermal conductivity in a magnetic field

M. Yamashita, Y. Senshu, T. Shibauchi, S. Kasahara, K. Hashimoto, D. Watanabe, H. Ikeda, T. Terashima, I. Vekhter, A. B. Vorontsov, and Y. Matsuda

Phys. Rev. B, **84**, 060507(R) (2011)

6. Interplay of Rotational, Relaxational, and Shear Dynamics in Solid He-4

E. J. Pratt, B. Hunt, V. Gadagkar, M. Yamashita, M. J. Graf, A. V. Balatsky, and J. C. Davis

Science, **332**, 821-824 (2011)

7. Highly Mobile Gapless Excitations in a Two-Dimensional Candidate Quantum Spin Liquid

Minoru Yamashita, Norihito Nakata, Yoshinori Senshu, Masaki Nagata, Hiroshi M. Yamamoto, Reizo Kato, Takasada Shibauchi and Yuji Matsuda

Science, **328**, 1246-1248 (2010)

8. Line nodes in the energy gap of superconducting $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$ single crystals as seen via penetration depth and thermal

conductivity

K. Hashimoto, M. Yamashita, S. Kasahara, Y. Senshu, N. Nakata, S. Tonegawa, K. Ikada, A. Serafin, A. Carrington, T. Terashima, H. Ikeda, T. Shibauchi, and Y. Matsuda
Phys. Rev. B, **81**, 220501(R) (2010)

[学会発表] (計 9 件)

1. 渡邊大樹, “ $\text{EtMe}_3\text{Sb}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$ における代数的量子スピン液体の実現”, 日本物理学会 第 67 回年次大会 2012/3/25 関西学院大
2. 山下卓也, “ $(\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x)\text{Fe}_2\text{As}_2$ 純良単結晶における熱伝導率測定”, 日本物理学会 第 67 回年次大会 2012/3/24 関西学院大
3. 渡邊大樹, “量子スピン液体物質 $\text{EtMe}_3\text{Sb}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$ の極低温磁化率測定”, 日本物理学会 2011 年秋季大会 2011/9/22 富山大学
4. 山下 穰, “Study of Quantum Spin Liquid in Two-dimensional Antiferromagnets”, Aspen Winter Conference on Condensed Matter Physics, Novel Paradigms for Low-Dimensional Electronic Materials (招待講演), 2012/2/9 Aspen CO, USA
5. 山下 穰, “Thermal-transport studies of Quantum Spin Liquids”, Search for topological phase of matter (招待講演), 2011/4/21 Princeton NJ, USA
6. 山下 穰, “Thermal-transport Studies of Quantum Spin Liquids”, APS March Meeting 2011 (招待公演), 2011/3/23 ダラス (USA)
7. 山下 穰, “Thermal-transport studies of quantum spin liquids”, International Conference on Frustration in Condensed Matter (ICFCM), 2011/01/11 仙台市
8. 山下 穰, “Bipartite spin excitations in a two-dimensional quantum spin liquid state”, Highly Frustrated Magnetism 2010, 2010/08/04 ボルチモア (USA)
9. 山下 穰, “Bipartite Spin Excitations in a Two-Dimensional Quantum Spin-Liquid State of

EtMe3Sb[Pd(dmit)2]” , International
Conference on Science and Technology
of Synthetic Metals 2010 (ICSM2010),
2010/07/08 京都市

〔図書〕 (計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 0 件)

名称 :
発明者 :
権利者 :
種類 :
番号 :
出願年月日 :
国内外の別 :

○取得状況 (計 0 件)

名称 :
発明者 :
権利者 :
種類 :
番号 :
取得年月日 :
国内外の別 :

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

山下 穰 (YAMASHITA MINORU)
京都大学・理学研究科・助教

研究者番号 : 10464207

(2) 研究分担者

()

研究者番号 :

(3) 連携研究者

()

研究者番号 :