

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 6 月 4 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2017

課題番号：16K13827

研究課題名(和文)スピノン・スピン流の実験的開拓

研究課題名(英文)Observation of spinon spin currents

研究代表者

塩見 雄毅 (Shiomi, Yuki)

東京大学・大学院工学系研究科(工学部)・特任講師

研究者番号：10633969

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,700,000円

研究成果の概要(和文)：本研究課題では、量子スピン液体状態に特有なスピン励起(スピノン、マヨラナ粒子)を用いたスピン流の実験的開拓を目指して研究を行った。典型的な一次元量子スピン系銅酸化物 Sr_2CuO_3 においてはスピノン励起の存在が実験的に確立されており、本研究では Sr_2CuO_3 に温度勾配を印加することでスピノンスピン流が生成されることをスピンゼーベック効果測定を用いて実証した。さらに、非常に最近特に興味をもたれているKitaev型スピン液体物質 RuCl_3 において、同じく温度勾配を利用して生成したマヨラナ粒子の流れを、熱伝導率測定を用いて観測した。

研究成果の概要(英文)：In this research, we aimed at experimental demonstration of novel spin currents using spin excitations peculiar to quantum spin liquid states: spinon and Majorana particle. In a typical one-dimensional quantum spin-liquid Sr_2CuO_3 where the existence of spinon excitation has been established experimentally, we showed by using the spin Seebeck effect that application of a temperature gradient to Sr_2CuO_3 generates spinon spin currents. Furthermore, in a Kitaev spin liquid material RuCl_3 which has attracted much attention in the condensed matter physics in the last few years, we observed the flow of Majorana particles due to a temperature gradient in thermal conductivity measurements.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：スピントロニクス スピン流 量子スピン系 スピン液体 スピノン マヨラナ粒子 Kitaev型

1. 研究開始当初の背景

本研究では、次世代の電子技術の中核と期待されるスピントロニクス基礎物理において、現在まで全く手をつけられていない低次元量子スピン系におけるスピン流伝送を明らかにする。これまでのスピントロニクス研究においては、強磁性体、フェリ磁性体、反強磁性体などの磁性体中のスピンを利用してきた。本研究では、研究代表者が強相関電子物理学分野で博士号を取り、その後スピントロニクス分野に転身し研究を行っているという経歴を活かし、一次元量子スピン系において従来のスピン流の概念体系にない新しいスピン伝送機構を実証する。

一次元量子スピン系の中でも、特に $S=1/2$ 一次元ハイゼンベルク鎖ではスピン相関が長距離であり、温度の低下とともに無限大へ近づくことが理論・実験の両面から見出されている。この強いスピン相関により超長距離のスピン流伝送が期待できることは、理論的には、 $S=1/2$ の XXZ ハミルトニアンをジョルダン・ウィグナー変換し、スピノンの言葉で書き直すことにより示すことができる。これがスピノン・スピン流であり、磁場下で温度勾配を印加することにより生成が可能であると期待される。スピノン・スピン流の直観的な描像を図1に示した。ドメイン壁に相当するスピノンが、励起された場所から強い反強磁性的な相互作用(J)によって一次元鎖に沿って伝搬していく様子が理解できる。

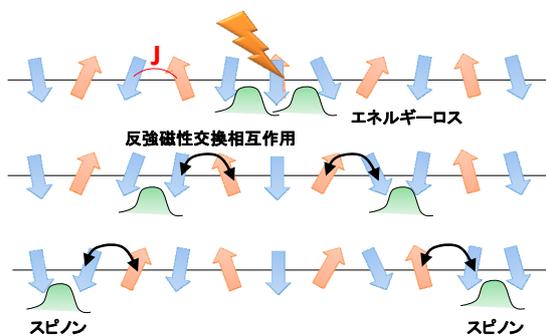


図1：ドメイン壁（スピノン）の伝搬

2. 研究の目的

本研究では、一次元量子スピン系（スピン液体状態）において、スピノンによるスピン流を実験的に実現する。一次元量子スピン系では、スピン相関が長距離で、かつスピン励起がギャップレスであるため、非磁性体であるがスピン流が長距離伝搬できる。スピノン・スピン流の開拓は、非磁性体からの初めてのスピン流生成であることに加え、これまでに知られたスピン流とは異なる物理概念に基づく新しいスピン流の発見である。一次元量子スピン系におけるスピン流伝送は、一次元的な原子配列からなる一本のスピン鎖でスピン流伝送が可能であることを意味し、

原子スケールのスピン流伝送路の実現が期待される。ナノテクノロジーを超えた超微細スピントロニクスデバイスの実現に向けた基礎学理を構築する。

スピン流現象とスピノンはそれぞれ、スピントロニクスと強相関電子物理学分野で独立に研究されてきた。世界初のスピノン・スピン流の物理開拓は両分野を効果的に結びつけるものであり、新たな融合領域の創出が期待できる。さらに各分野において以下のような意義がある。

まず、強相関電子物理学分野においては、スピノンの輸送現象を測定する新しいプローブが開拓されることが重要である。量子スピン系の多くが絶縁体であり、スピノン輸送の直接観測は熱伝導率測定など少数の計測技術に限られていた。スピノンの新しいプローブの開発はスピノン研究の一層の発展を促す。一方で、スピントロニクスの観点からは、孤立した一本のスピン鎖で流れ得る新しい長距離伝搬スピン流が生み出されることが重要である。理想的にはスピノン・スピン流の伝送距離は無限大であり、これまでのスピン流とは異なる物理概念に基づいた超長距離のスピン流が開発されることはスピントロニクスとして大きな意義がある。

3. 研究の方法

一次元量子スピン系 Sr_2CuO_3 単結晶において、スピン鎖方向の温度勾配によって誘起されるスピノン・スピン流の生成・検出実験を行う。 Sr_2CuO_3 単結晶は、不純物の影響を避けるため、高純度原料（5Nグレード）からフローティングゾーン法を用いて作製する。初年度は、スピン鎖方向の温度勾配によってスピノン・スピン流を生成し、接合したPt薄膜にスピン交換相互作用を通じて注入されたスピン流をPtの逆スピンホール効果（スピン流-電流変換現象）を用いて電気信号として検出する。第二年度は、 Sr_2CuO_3 におけるスピノン・スピン流の実現を達成した前年度の成果を更に発展させるべく、その他の量子スピン液体物質への研究展開を狙う。

試料作製はフローティングゾーン法で行うが、 Sr_2CuO_3 の原料純度を5Nとすることで、所望の磁気・熱特性を実現する。なお、過去の文献では、原料純度を3Nから4Nへ引き上げることで、スピノン平均自由行程を $0.2 \mu m$ から $0.5 \mu m$ へ向上することに成功している。5Nの原料から作られた Sr_2CuO_3 単結晶のスピノンの平均自由行程は、熱伝導率の温度変化を測定しスピノン由来の熱伝導率ピークを評価することで、見積もる。

磁場を印加することによりスピノンの状態密度を変化させた状態で、一次元鎖方向に温度差をつけることでスピノン・スピン流を生成できる（スピノン・スピンゼーベック効果（図2））。 Sr_2CuO_3 劈開面にPt薄膜（厚さ10nm）をスパッタ成膜し、温度勾配と磁場を印加しスピノン・スピンゼーベック効果が起

きる配置で、Pt における逆スピンホール効果の観測を行う。スピノン・スピンゼーベック効果によってスピノン流が Pt に注入されると、スピン-軌道相互作用によってスピノン流がホール方向の電流に変換される（逆スピンホール効果）。逆スピンホール起電力を定量的に評価することでスピノン・スピン流を実証する。

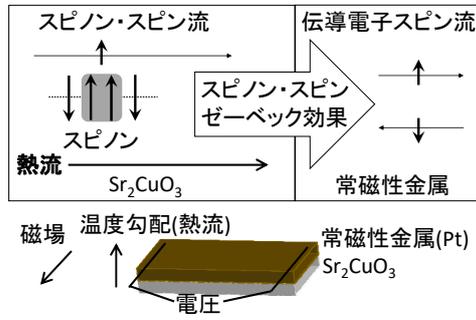


図 2：温度勾配によるスピノン・スピン流の生成と逆スピンホール効果による計測

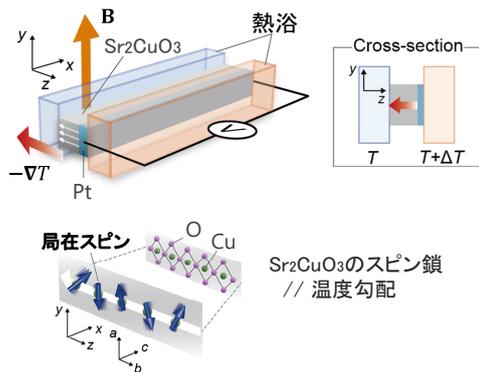


図 3：実験セットアップ

4. 研究成果

作製された Sr_2CuO_3 単結晶試料を切り出し・成形の後、Pt 薄膜を成膜しスピンゼーベック効果の測定を行った。 Sr_2CuO_3 は水に弱いいため、清浄な界面を得るために試行錯誤が必要であった。最終的に得た結果の一例を図 4 に示す。測定された電圧信号は磁場に対して線形であったため、磁場で割り算した傾きを各温度に対してプロットしている。

まず、本測定においては、非磁性の MgO 基板の上に Pt を製膜した場合と同じ測定を行うと、正符号の信号が得られた。これは Pt の正常ネルンスト効果に由来する信号である。この信号は正符号であり、ほとんど温度変化しないことがわかった。

その上で、Pt/ Sr_2CuO_3 で見られた電圧信号の温度変化を見てみると（図 4）、約 100K 以下の低温で負符号の大きな電圧信号が観測されているのがわかる。これは Pt の正常ネ

ルンスト効果では説明できず、スピノン・スピン流による信号である可能性がある。この信号は、 Sr_2CuO_3 の磁気転移点である約 5K 以下で消失することから、スピノン由来であることを支持する。

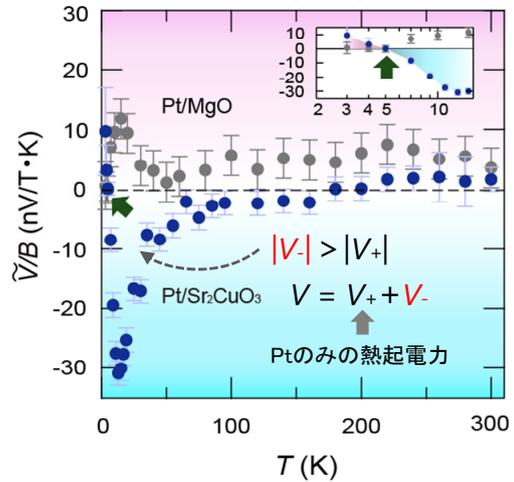


図 4：Pt/ Sr_2CuO_3 における熱流により誘起された電圧の温度変化

スピノン・スピン流の更なる証拠を得るため、Pt と逆符号のスピンホール角を有する W 薄膜を用いて同様の実験を行った。観測された電圧信号の温度変化を図 5 に示す。Pt/ Sr_2CuO_3 と同様に W/ Sr_2CuO_3 でも電圧信号は 20K 付近でピーク構造を示すが、電圧の符号は正符号である。Pt と W で逆符号の電圧が得られたことは、金属薄膜に注入されたスピノン由来のスピン流が、Pt と W の逆符号のスピンホール角に対応して逆極性の逆スピンホール起電力へと変換されたことに対応する。

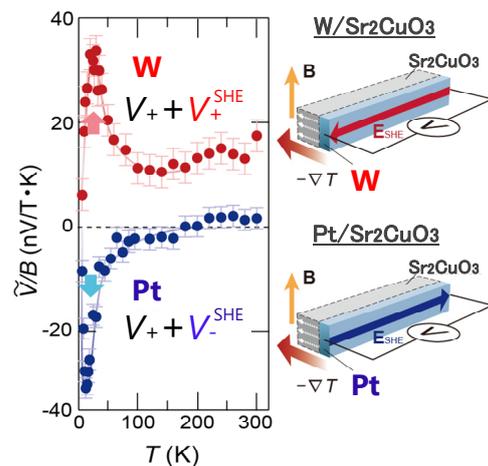


図 5：Pt/ Sr_2CuO_3 と W/ Sr_2CuO_3 の結果の比較

さらに、スピノン・スピン流は Sr_2CuO_3 結晶のスピン鎖方向にしか流れないはずであるので、結晶方向依存性が強く見られるはず

である。図6に温度勾配とスピンの両方向を直交および平行にした場合の実験結果を示す。図6に示す通り、温度勾配がスピンの直交する場合には、低温で見られた電圧のピーク信号が消失することがわかる。これは低温で大きく観測された電圧信号がスピノン・スピン流であることの強い証拠である。

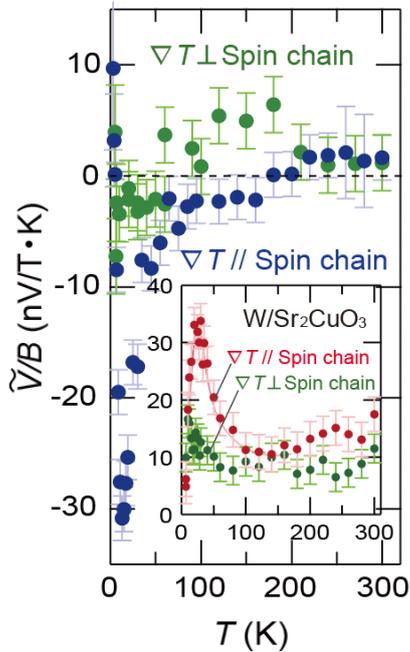


図6：温度勾配とスピンの直交させた場合の実験結果

得られた電圧信号は、Pt 薄膜を利用した場合に、負符号であった。これは磁性体におけるマグノンのスピントラップ効果（例えば、フェリ磁性体 $Y_3Fe_5O_{12}/Pt$ におけるスピントラップ効果）の起電力の符号が正であることと好対照である。これは、直観的には、強（フェリ）磁性体のマグノンは磁化が減少する励起であるのに対し、スピノンは磁化がないときからの励起であるため磁化が大きくなるという違いに対応する。実際に、理論研究者との共同研究により微視的な理論も構築し、上記の直観的描像が正しいことを示した。本成果は Nature Physics 誌に掲載され、プレスリリースも発表するなど広く成果を公表した。

以上の通り、非常に順調に第一年度に予定した研究が進んだため、第二年度はこの成果を基盤として異なる種類の量子スピン系物質への展開を狙った。近年はフラストレーションに関してスピン液体状態が発現する2次元系のスピン1/2系物質がスピン液体研究の中心であり、その中でも特にキタエフ量子スピン液体が特に注目を集めている。

そこで我々は近年注目を集める Kitaev 候補物質 $\alpha\text{-RuCl}_3$ に着目した。Kitaev 模型は honeycomb 格子上的量子コンパス模型とし

て Kitaev が 2006 年に導入した異方的磁性体模型である。その基底状態は無秩序なスピン液体であり、励起状態は局在 Z_2 ゲージ場と結合した遍歴的なマヨラナ粒子で記述できることが示されている。マヨラナ粒子によるスピン流は、近年高い期待を集める量子コンピュータの基盤技術としても重要である。この新奇的な準粒子の兆候が報告されている有力候補物質の一つが $\alpha\text{-RuCl}_3$ であり、本研究で我々は $\alpha\text{-RuCl}_3$ 単結晶における縦熱伝導度 κ を測定した。

縦熱伝導度 κ の温度変化の一例を図7に示す。 κ の温度依存性がフォノン由来のメイン・ピーク（ $\sim 50\text{K}$ ）の他に、サブピーク構造を高温領域（ $\sim 100\text{K}$ ）に形成することを見出した。帯磁率および磁気比熱の測定結果との対応関係の議論、および構造相転移の温度依存性が異なる試料であっても、同様のサブピーク構造が普遍的に現れることを見出したことから、サブピーク構造の起源が単なるフォノンではなく、Kitaev 相互作用に由来する磁気励起であると結論した。この結果は最近の理論計算 (J. Nasu et al. Phys. Rev. Lett. 119, 127204 (2017)) とも定性的に整合する。この成果は、マヨラナ粒子を用いたスピン流の実現に向けた重要な一歩である。

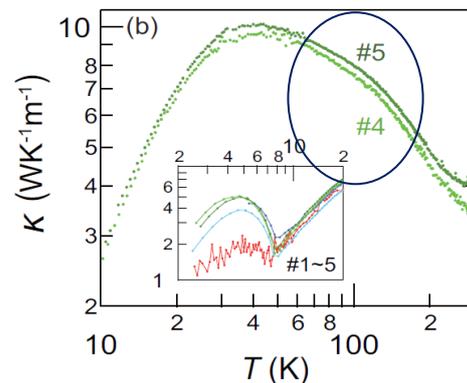


図7： $\alpha\text{-RuCl}_3$ の熱伝導度の温度依存性

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 5 件)

(1) “Magnetic thermal conductivity far above the Neel temperatures in the Kitaev-magnet candidate $\alpha\text{-RuCl}_3$ ” Phys. Rev. B 95, 241112 (2017) (Editors’ suggestion)

Daichi Hirobe, Masahiro Sato, Yuki Shiomi, Hidekazu Tanaka, and Eiji Saitoh

査読有, URL:

<https://journals.aps.org/prb/abstract/10.1103/PhysRevB.95.241112>

(2) “Oscillatory Nernst effect in Pt|ferrite|cuprate-superconductor trilayer films”

Sci. Rep. 7, 5358 (2017)

Y. Shiomi, J. Lustikova, and E. Saitoh
査読有, URL:

<https://www.nature.com/articles/s41598-017-05747-6>

(3) “Experimental evidence consistent with a magnon Nernst effect in the antiferromagnetic insulator MnPS₃”

Phys. Rev. B 96, 134425 (2017)

Y. Shiomi, R. Takashima, and E. Saitoh
査読有, URL:

<https://journals.aps.org/prb/abstract/10.1103/PhysRevB.96.134425>

(4) “Spin Seebeck effect in the polar antiferromagnet α -Cu₂V₂O₇”

Phys. Rev. B 96, 180414(R) (2017)

(Editors’ suggestion)

Y. Shiomi, R. Takashima, D. Okuyama, G. Gitgeatpong, P. Piyawongwatthana, K. Matan, T. J. Sato, and E. Saitoh
査読有, URL:

<https://journals.aps.org/prb/abstract/10.1103/PhysRevB.96.180414>

(5) “One-dimensional spinon spin currents”

Nature Phys. 13, 30–34 (2017)

Daichi Hirobe, Masahiro Sato, Takayuki Kawamata, Yuki Shiomi, Ken-ichi Uchida, Ryo Iguchi, Yoji Koike, Sadamichi Maekawa, and Eiji Saitoh
査読有, URL:

<https://www.nature.com/articles/nphys3895>

[学会発表] (計 2件)

(1) Y. Shiomi, “Magnetic thermal conductivity far above the Neel temperature in the Kitaev-magnet candidate α -RuCl₃”, TMS-EPIQS 2nd Alliance Workshop “Topological magnets and topological superconductors” (Kyoto University, Kyoto, Japan), 2018 Jan.13.

(2) 塩見雄毅, “スピン液体状態におけるスピン熱伝導とスピン流”, 「第二回 量子スピン液体研究の新展開」研究会, (本郷キャンパス, 東京), 2017年12月13日.

[図書] (計 0件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0件)

○取得状況 (計 0件)

[その他]

ホームページ等

(1) 新たなスピン流の担い手を発見 URL:
https://www.wpi-aimr.tohoku.ac.jp/jp/news/press/2016/20160928_000663.html

6. 研究組織

(1) 研究代表者

塩見 雄毅 (SHIOMI, Yuki)

東京大学・大学院工学系研究科・特任講師
研究者番号: 10633969