

平成 22 年 3 月 29 日現在

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2008～2009

課題番号：20740212

研究課題名（和文）

スピンによる熱輸送現象のミュオンスピン緩和法を用いた直接観測

研究課題名（英文）

Direct observation of the heat transport due to spins by muon spin relaxation

研究代表者

川股 隆行 (Kawamata Takayuki)

独立行政法人理化学研究所・岩崎先端中間子研究室・協力研究員

研究者番号：00431601

研究成果の概要（和文）：

2本足梯子系 $\text{Sr}_{14}\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ において、スピンによる熱輸送現象を直接観測するためミュオンスピン緩和法による実験を行ったが、その証拠を観測することは出来なかった。この結果から、スピンの平均自由行程を伸ばした1次元量子スピン系の物質 SrCuO_2 での実験が必要と考えた。そして、原料高純度化と酸素アニールを行い、平均自由行程を 30000\AA まで伸ばすことに成功した。この値は、現在、低次元量子スピン系の物質において最大の値である。

研究成果の概要（英文）：

In 2-leg spin-ladder system $\text{Sr}_{14}\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$, direct evidence of heat transport due to spins has not been observed by muon spin relaxation. This result is suggested that we should perform experiments in one-dimensional quantum spin system SrCuO_2 extended mean free path due to spins, l_{spin} . The l_{spin} has been extended to $\sim 30000\text{\AA}$ by using high purity raw materials and O_2 annealing. At present, this value of l_{spin} is the largest in the low dimensional quantum spin systems.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	2,500,000	750,000	3,250,000
2009年度	800,000	240,000	1,040,000
総計	3,300,000	990,000	4,290,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学 ・物性Ⅱ

キーワード：スピンによる熱伝導、低次元量子スピン系、ミュオンスピン緩和法、熱伝導、1次元スピン系

1. 研究開始当初の背景

近年、いくつかの低次元量子スピン系の物質において、熱伝導率の温度依存性に異方的なピークや肩が現れることが知られている。例えば、2本足スピン梯子格子系 $\text{Sr}_{14}\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ は、 Cu^{2+} イオンが $S = 1/2$ のスピンを持ち、そのスピン同士の相関が強い方向を結ぶと、2本足梯子の形となる。その梯子格子の足方向のみ 150K 付近で熱伝導率に大きなピークを示し、それに垂直な方向では、150K 付近にピークは示さないことが知られている。このような異方的な熱伝導における肩やピークは、磁気励起による熱伝導、つまり、スピンによる熱伝導の寄与であると提案されている。しかし、スピンによる熱伝導が存在するという主張は、スピンのネットワークの異方性や「非磁性不純物の置換効果による熱伝導の抑制」による実験結果からである。つまり、実際にスピンが熱を運んでいる様子を直接的に観測した例はない。スピンによる熱伝導機構の解明のためにも、熱伝導以外の測定手段によるスピンによる熱伝導の直接観測が必要である。

「スピンによる熱輸送」は、基底状態よりも高いエネルギーを持った“磁気励起”が移動することにより生じる。この励起の移動に伴い、スピンにフリップ・フロップが起こり、内部磁場に揺らぎが生じることが予測され、この内部磁場の揺らぎをミュオンスピン緩和法 (μ SR) によって観測を行う。 μ SR は、ミュオンと呼ばれる素粒子を試料の内部に打ち込み、試料内部の局所磁場のダイナミクスを調べることが非常に有効なプローブであるため、本研究に最適な測定手段である。有限温度では、熱励起された準粒子がランダムに動くために内部磁場は揺らいでいる。それにより、 μ SR スペクトルは“緩和”がみられると予測される。そして、温度勾配を試料に発生させることによって、多くの磁気励起が高温部から低温部へと移動する。このとき、ある局所的領域を見た場合、高温部分からの磁気励起の移動より付加的に磁気励起が増加したような状態となり、 μ SR スペクトルの“緩和”が大きくなると予測される。

2. 研究の目的

本研究では、スピンによる熱輸送現象の直接的な観測が必要と考え、マイクロなプローブである μ SR を用いて、スピンによる熱伝導を直接観測することを目的とした。このスピンが熱を運ぶという現象は、現代の固体物理の教科書にも記載されておらず、本研究は新しい物理現象を解明する行為であり、固体物理学の進歩に意義のある研究である。

3. 研究の方法

- (1) μ SR による 2本足スピン梯子格子系 $\text{Sr}_{14}\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ における直接観測

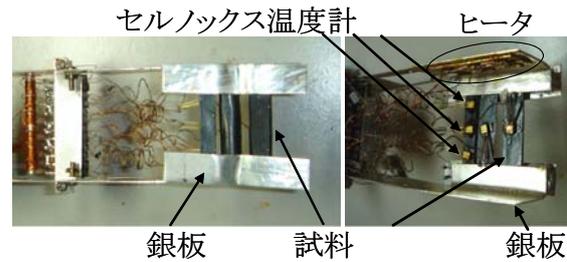


図1. 温度勾配下 μ SR 実験用ホルダ.

①試料作成

$\text{Sr}_{14}\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ の系列物質である $\text{Ca}_9\text{La}_5\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ 大型単結晶を溶媒移動型浮遊帯域法 (TSFZ 法) により育成した。

②試料評価

X線背面ラウエ、粉末X線回折、ICP、熱伝導測定より試料を評価し、短冊状に試料を成形した。

③ μ SR 実験

図1のような、試料に温度勾配を印加して、 μ SR 測定が行える装置を作成し、 μ SR 実験を行った。

- (2) 1次元量子スピン系 SrCuO_2 におけるスピンによる熱伝導

①試料作成

SrCuO_2 大型単結晶を溶媒移動型浮遊帯域法 (TSFZ 法) により育成。このとき、試料原料の純度を 99.9% (3N) と 99.99% (4N) で作成した。そして、単結晶育成後、スピンによる熱伝導の増強を目指し、Ar アニール、または、 O_2 アニールを施した。

②試料評価

X線背面ラウエ、粉末X線回折、ICP、磁化率より試料の評価を行った。

③熱伝導測定

定常熱流法により熱伝導率を測定した。

4. 研究成果

- (1) μ SR による 2本足スピン梯子格子系 $\text{Sr}_{14}\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ における直接観測

図1のように、短冊状にした $\text{Ca}_9\text{La}_5\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ 単結晶試料を作成したホルダにマウントし、理研RALにおいて、 μ SR 実験を行った。スピンによる熱伝導の寄与がもっとも大きい 150K 付近で、試料両端に定常的な温度差を付けながら、零磁場・縦磁場中でスペクトルを測定した。そのスペクトルから得られた緩和率 λ の縦磁場依存性を図2に示す。低磁場における緩和率 λ は、主に原子核スピンによるものと考えられ、高磁場における緩和率 λ が熱を運ぶスピンによる寄与であると考えられる。つまり、注目すべきは、100G 以上の緩和率 λ の振る舞いである。しかし、これをみると、試料に付けた温度差 dT によって、緩和率 λ が変化していないことが分かる。つまり、熱の流れに対して、スピンのゆらぎに変化を観測できなかった。このため、スピンが熱を運ぶ様子は μ SR により直接

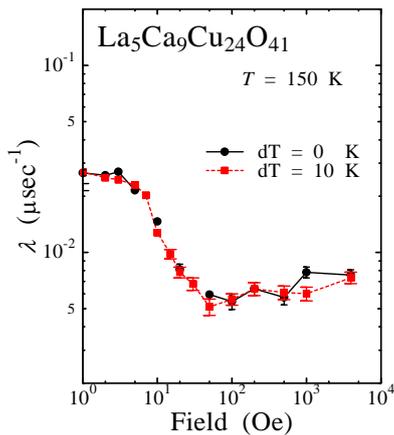


図2. 150KにおけるCa₉La₅Cu₂₄O₄₁の緩和率λの縦磁場依存性. dTは試料両端に付けた温度差である.

観測出来なかったと言うことができる. 観測出来なかった原因は、「スピンによる熱輸送が拡散的であり、そして、定常的に熱を流していたこと」によると考えている. そのため、スピンが弾道的に熱輸送をする試料を用いて、片方にパルス的な熱を加えることが必要であると考えられる.

(2) 1次元量子スピン系 SrCuO₂におけるスピンによる熱伝導

そのため、スピンによる熱輸送が弾道的であることが分かっている1次元量子スピン系 SrCuO₂ のスピンによる熱伝導を上昇させることを目指し、原料の高純度化、最適なアニール条件探しを行った. その熱伝導率の温度依存性を図3に示す. 3Nの熱伝導率の結果をみると、20K付近にフォノンによる熱伝導の寄与によるピークと50K付近にスピンによる熱伝導の寄与である肩を示している. そして、試料の高純度化、O₂アニールを行うことによって、スピンによる熱伝導を劇的に上昇していることがわかる. 酸素雰囲気中で単結晶育成を行うため、この物質では、従来、過剰酸素除去のための Ar アニールを行うことが常識であった. しかし、Ar アニールにより熱伝導はむしろ減少した. このようなことは、試料に生じている格子欠陥によりスピン鎖は断裂しているが、原料の高純度化と酸素アニールによって、その欠陥は埋まることによって、スピン鎖が伸び、スピンによる熱伝導が上昇したことを示している. 一方、Ar アニールは、スピン鎖中の酸素が抜けて、スピン鎖が分断されるということが起きていると考えられる.

この熱伝導の振る舞いから、スピンの平均自由行程を見積もると、今までの報告の10倍である約3μmの値を示すことがわかった.

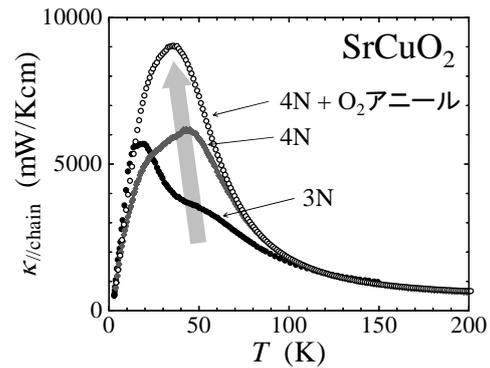


図3. SrCuO₂のスピン鎖に平行な方向の熱伝導率κ//chainの温度依存性. 3N, 4Nは原料の純度であり、それぞれ、99.9%、99.99%である.

このスピンによる平均自由行程の大きさは、現在観測されている中で、最も大きな値である. 目的とは異なっているが、本研究により、世界で一番大きなスピンによる熱伝導を持つ物質を開発することに成功した.

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4件)

[1] 著者: T Kawamata, N Sugawara, M Uesaka, N Kaneko, T Kajiwara, H Yamane, K Koyama, K Kudo, N Kobayashi, Y Koike

論文名: Single-Crystal Growth of Pb₂V₃O₉ and the Bose-Einstein Condensed State of Triplons Studied by Thermal Conductivity, Specific Heat and Magnetization Measurements

雑誌名: Journal of Physics: Conference Series 150 (2009) 042087 1-4. 査読あり

[2] 著者: T. Kawamata, N. Kaneko, M. Uesaka, M. Sato, Y. Koike

論文名: Enhancement of Thermal Conductivity due to Spinons in the One-Dimensional Spin System SrCuO₂

雑誌名: Journal of Physics: Conference Series (in press). 査読あり

[3] 著者: M Uesaka, T Kawamata, N Kaneko, M Sato, K Kudo, N Kobayashi, Y Koike

論文名: Thermal Conductivity of the Quasi One-Dimensional Spin System Sr₂V₃O₉

雑誌名: Journal of Physics: Conference Series (in press). 査読あり

[4] 著者: M. Sato, T. Kawamata, N. Sugawara, M. Uesaka, N. Kaneko, K. Kudo, N. Kobayashi, Y.

Koike

論文名 : Bose-Einstein Condensation of Triplons in the One-Dimensional Bond-Alternating System $\text{Pb}_2\text{V}_3\text{O}_9$
雑誌名 : Journal of Physics: Conference Series (in press). 査読あり

[学会発表] (計 21 件)

[1] 発表者 : 川股隆行, 菅原直樹, S. M. Haidar, 金子直人, 上坂正憲, 小山佳一, 工藤一貴, 小林典男, 小池洋二
題目 : 熱伝導, 比熱, 磁化からみた $\text{Pb}_2\text{V}_3\text{O}_9$ 単結晶におけるトリプルのボース・アインシュタイン凝縮相転移
学会名 : 第 2 回トピカルミーティング「フラストレーションとマルチフェロイクス」京都大学 (京都), 2008 年 6 月 6-7 日

[2] 発表者 : T. Kawamata, N Sugawara, M Uesaka, N Kaneko, T Kajiwara, H Yamane, K Koyama, K Kudo, N Kobayashi, Y Koike
題目 : $\text{Pb}_2\text{V}_3\text{O}_9$ and the Bose-Einstein Condensed State of Triplons Studied by Thermal Conductivity, Specific Heat and Magnetization Measurements
学会名 : 25th International Conference on Low Temperature Physics (LT25), Amsterdam (Netherlands), 2008. 8.

[3] 発表者 : M. Uesaka, T. Kawamata, N. Sugawara, N. Kaneko, K. Kudo, N. Kobayashi, and Y. Koike
題目 : Single-Crystal Growth and Thermal Conductivity of the Quasi One-Dimensional Spin System $\text{Sr}_2\text{V}_3\text{O}_9$
学会名 : 25th International Conference on Low Temperature Physics (LT25), Amsterdam (Netherlands), 2008. 8.

[4] 発表者 : 川股隆行, 金子直人, 上坂正憲, 工藤一貴, 小林典男, 小池洋二
題目 : Sr_2CuO_3 , SrCuO_2 におけるスピンのよる巨大熱伝導
学会名 : 2008 年秋季 第 69 回応用物理学会学術講演会, 中部大学 (春日井), 2p-P5-5, 2008 年 9 月 2 日

[5] 発表者 : 小池洋二, 川股隆行, 高橋伸雄, 金子直人, 上坂正憲, 足立匡, 野地尚, 工藤一貴, 小林典男
題目 : 低次元量子スピン系物質におけるスピンによる熱伝導
学会名 : 日本熱物性学会第 10 回「マイクロナノスケールの熱物性とシステムデザイン」研究会, 慶應義塾大学 (三田), 2008 年 9 月 12 日

[6] 発表者 : 金子直人, 川股隆行, 上坂正憲, 小池洋二
題目 : 1 次元量子スピン系 SrCuO_2 単結晶におけるスピンによる熱伝導のアニール効果
学会名 : 日本物理学会 2008 年秋季大会, 岩手大学 (岩手), 21aQH-2, 2008 年 9 月 21 日

[7] 発表者 : 上坂正憲, 川股隆行, 金子直人, 菅原直樹, 工藤一貴, 小林典男, 小池洋二
題目 : 1 次元量子スピン系 $\text{Sr}_2\text{V}_3\text{O}_9$ 単結晶の育成とスピンによる熱伝導
学会名 : 日本物理学会 2008 年秋季大会, 岩手大学 (岩手), 21aQH-6, 2008 年 9 月 21 日

[8] 発表者 : T. Kawamata, M. Uesaka, N. Sugawara, N. Kaneko, K. Koyama, K. Kudo, N. Kobayashi, Y. Koike
題目 : Single-Crystal Growth and Thermal Conductivity of the Alternating Chain System $\text{Pb}_2\text{V}_3\text{O}_9$ and Uniform Chain System $\text{Sr}_2\text{V}_3\text{O}_9$
学会名 : The 2nd International Symposium on Anomalous Quantum Materials (ISAQM2008) and the 7th Asia-Pacific Workshop, Univ. of Tokyo (Hongo), PSA-26, 2008. 11. 8.

[9] 発表者 : 川股隆行, 金子直人, 上坂正憲, 工藤一貴, 小林典男, 小池洋二
題目 : 1 次元量子スピン系 SrCuO_2 , $\text{Sr}_2\text{V}_3\text{O}_9$ におけるスピンによる熱伝導
学会名 : 物性科学領域横断研究会「スピンが拓く物性科学の最前線」, 東京大学 (本郷), 2008 年 11 月 29 日

[10] 発表者 : 金子直人, 川股隆行, 上坂正憲, 佐藤光秀, 小池洋二
題目 : 1 次元量子スピン系 SrCuO_2 単結晶におけるスピンによる熱伝導の向上
学会名 : 日本応用物理学会 東北支部第 63 回学術講演会, 東北大学 (仙台), 2009 年 12 月 5 日

[11] 発表者 : 上坂正憲, 川股隆行, 金子直人, 菅原直樹, 工藤一貴, 小林典男, 小池洋二
題目 : 1 次元量子スピン系 $\text{Sr}_2\text{V}_3\text{O}_9$ 単結晶の育成とスピンによる熱伝導
学会名 : 日本応用物理学会 東北支部第 63 回学術講演会, 東北大学 (仙台), 2009 年 12 月 5 日

[12] 発表者 : 川股隆行, 上坂正憲, 菅原直樹, 佐藤光秀, 金子直人, 小山佳一, 工藤一貴, 小林典男, 小池洋二
題目 : 比熱と磁化からみた $\text{Pb}_2\text{V}_3\text{O}_9$ 単結晶のボース・アインシュタイン凝縮相転移
学会名 : 日本物理学会第 64 回年次大会, 立教大学 (池袋), 28aTG-9, 2009 年 3 月 28 日

[13] 発表者 : 上坂正憲, 川股隆行, 金子直人, 佐藤光秀, 菅原直樹, 工藤一貴, 小林典男, 小池洋二

題目：1次元量子スピン系 $\text{Sr}_2\text{V}_3\text{O}_9$ 単結晶のスピンによる熱伝導

学会名：日本物理学会第 64 回年次大会，立教大学（池袋），28aTG-8，2009 年 3 月 28 日

[14] 発表者：大久保晋，日野俊一，藤澤真士，太田仁，菅原直樹，川股隆行，小池洋二
題目：ボンド交替系 $\text{Pb}_2\text{V}_3\text{O}_9$ 単結晶試料の強磁場 ESR 測定

学会名：日本物理学会第 64 回年次大会，立教大学（池袋），28aTG-10，2009 年 3 月 28 日

[15] 発表者：金子直人，川股隆行，上坂正憲，佐藤光秀，小池洋二

題目：一次元量子スピン系 SrCuO_2 単結晶における巨大スピン熱伝導

学会名：2009 年春季 第 56 回応用物理学関係連合講演会，筑波大学（つくば），30p-ZV-8，2009 年 3 月 30 日

[16] 発表者：T. Kawamata, N. Kaneko, M. Uesaka, M. Sato, Y. Koike

題目：Enhancement of Thermal Conductivity due to Spinons in the One-Dimensional Spin System SrCuO_2

学会名：The 18th International Conference on Magnetism (ICM2009), Karlsruhe (Germany), Th-JB5-05, 2009. 7. 30.

[17] 発表者：Masanori Uesaka, Takayuki Kawamata, Naoto Kaneko, Mitsuhide Sato, Kazutaka Kudo, Norio Kobayashi, Yoji Koike

題目：Thermal Conductivity of the Quasi One-Dimensional Spin System $\text{Sr}_2\text{V}_3\text{O}_9$

学会名：The 18th International Conference on Magnetism (ICM2009), Karlsruhe (Germany), Th-A-2.1-10, 2009. 7. 30.

[18] 発表者：Mitsuhide Sato, Takayuki Kawamata, Naoki Sugawara, Naoto Kaneko, Masanori Uesaka, Kazutaka Kudo, Norio Kobayashi, Yoji Koike

題目：Thermal Conductivity in the Bose-Einstein Condensed State of Triplons in the Bond-Alternating Spin-Chain System $\text{Pb}_2\text{V}_3\text{O}_9$

学会名：The 18th International Conference on Magnetism (ICM2009), Karlsruhe (Germany), Th-A-2.1-13, 2009. 7. 30.

[19] 発表者：佐藤光秀，川股隆行，上坂正憲，工藤一貴，小林典男，小池洋二

題目：一次元ボンド交替鎖を持つ $\text{Pb}_2\text{V}_3\text{O}_9$ におけるトリプロンのボーズ・アインシュタイン凝縮転移と熱伝導

学会名：日本物理学会 2009 年秋季大会，熊本大学（熊本），25pQJ-10，2009 年 9 月 25 日

[20] 発表者：大久保晋，近藤健太，日野俊一，藤澤真士，櫻井敬博，太田仁，菅原直樹，川股隆行，小池洋二

題目：ボンド交替系 $\text{Pb}_2\text{V}_3\text{O}_9$ 単結晶試料の強磁場 ESR 測定 II

学会名：日本物理学会 2009 年秋季大会，熊本大学（熊本），25pQJ-11，2009 年 9 月 25 日

[21] 発表者：本堂英，益田隆嗣，川股隆行，佐藤光秀，小池洋二

題目：S=1/2 スピン・ギャップ物質 $\text{Pb}_2\text{V}_3\text{O}_9$ の磁気励起

学会名：日本物理学会 2009 年秋季大会，熊本大学（熊本），25pQJ-12，2009 年 9 月 25 日

6. 研究組織

(1) 研究代表者

川股 隆行 (Kawamata Takayuki)

独立行政法人理化学研究所・岩崎先端中間子研究室・協力研究員

研究者番号：00431601