

低温まで観測されていないことから、両者の自由度が結合した軌道スピン液体状態の実現が理論的に提案されている[14]。

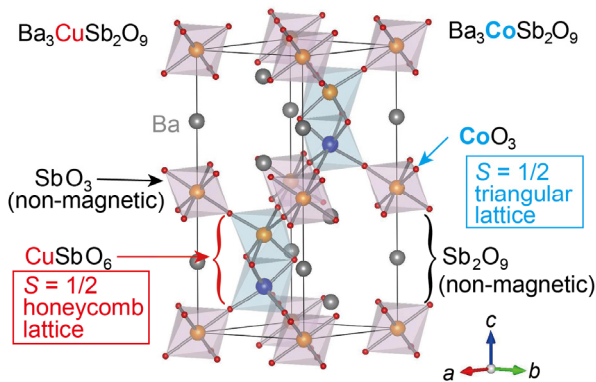


図1 Ba₃CuSb₂O₉[9]とBa₃CoSb₂O₉[11]の構造。

観測された熱伝導率の温度依存性を図2に示す。熱伝導率は非常に小さく、Ba₃CoSb₂O₉の熱伝導率[15]と比較すると桁ほど熱伝導が低いことがわかった。一般的に熱伝導率は、比熱 C 、熱を運ぶ準粒子の速度 v 、および平均自由行程 ℓ の積 $\kappa_{xx} \approx \frac{1}{3} C v \ell$ で表すことができる。仮に、この熱伝導率をすべてフォノンから来ていると仮定してフォノンの平均自由行程 ℓ_{pf} の最大値を見積もったのが図2の挿入図である。この図に示すように、 ℓ_{pf} は1 Kでも10 μm 程度と短くなっており、最低温度の0.1 Kでも飽和せずに低温に向かって伸び続けている。通常、単結晶試料におけるフォノンの平均自由行程は温度低下とともに増大し、 ~ 1 Kでは試料サイズ程度まで延びて飽和する。これはフォノンがボソンであるために、温度低下とともにその波長が伸び、低温では試料中にあるマイクロな欠陥などに散乱されにくくなるのが原因である。このとき、低温でフォノンを散乱できるのは試料端のようなマクロな欠陥であるため、温度に対して飽和しない短い ℓ_{pf} は、多結晶のアモルファス物質などで観測されることが知られている。一方、Ba₃CuSb₂O₉のように単結晶であるにもかかわらずガラス的な熱伝導を示す物質は、「フォノンガラス」と呼ばれ、ラットリングを示す籠状物質などにおける観測例[16]が知られている。これらの物質では様々な理由からフォノンが強く散乱されており、Ba₃CuSb₂O₉においてはCu²⁺-Sb⁵⁺ダンベルのもつイジング自由度によって形成されたフラクタル構造によるフォノンの散乱が重要な役割を果たしていると考えられる。

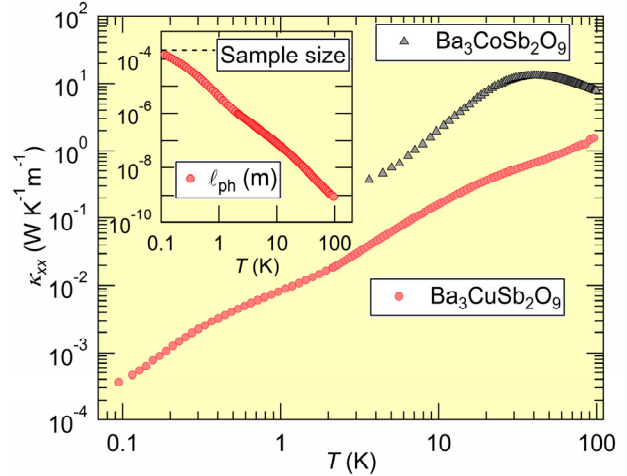


図2 Ba₃CuSb₂O₉の熱伝導率の温度依存性。Ba₃CoSb₂O₉のデータ[15]を合わせて載せる。左上挿入図はフォノンの平均自由行程 ℓ_{pf} の温度変化。

観測された熱ホール伝導率(κ_{xy})の温度依存性を示したのが図3である。 κ_{xy} は観測した温度範囲では $\kappa_{xy} < 0$ であり、50 K程度に鋭いピークを示した後に2 Kまで単調に減少した。挿入図に示すLog-logプロットから、 $|\kappa_{xy}|$ は10 K以下の低温では T^2 に比例していることがわかった。スピン励起による熱ホール効果が存在すると仮定すると、低温ではスピングャップの影響を受けるため指数関数的な温度依存性が期待される。これは、 T^2 に比例する温度変化とは矛盾していることから、低温で観測された κ_{xy} がフォノンによる熱ホール効果であると結論した。

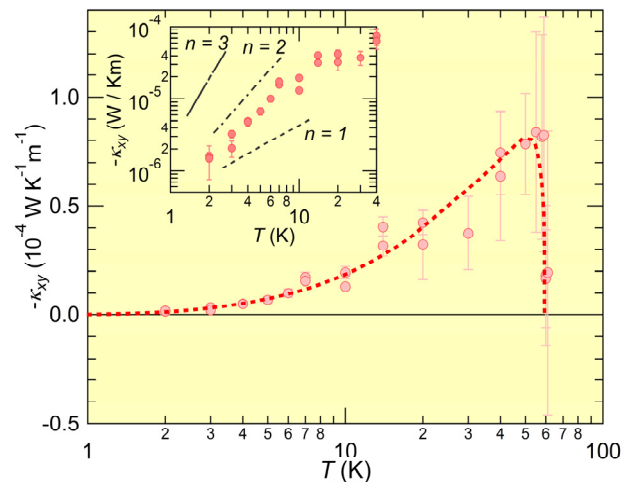


図3 熱ホール伝導率($-\kappa_{xy}$)の温度依存性。挿入図は両対数プロットで、 T^n の傾きを点線で示してある。

Ba₃CuSb₂O₉におけるフォノンの熱ホール効果はどのような機構で生じるのだろうか。実はTbGGではTbが過剰に入った試料でのみ熱ホール効果が観測[7, 8]されており、過剰Tbイオンとフォノンとの散乱の効果[17]が熱ホール

効果の起源として有力視されている。Ba₃CuSb₂O₉においてもフォノンガラス的な熱伝導が観測されたことから、フォノンに対する強い散乱の効果が熱ホールと関連していることが期待されるが、その詳細はわかっていない。TbGGにおける熱ホール測定の結果に対しては様々なモデルが提案されているが、いずれの理論も低温で観測された $|\kappa_{xy}| \propto T^2$ の温度依存性とはあわず、フォノン熱ホール機構の解明は今後の課題として残された。しかし、今回フォノンの熱ホール効果の温度依存性を明らかにしたことによって初めて理論研究との比較検討が可能になったのであり、我々の結果は今後のフォノンの熱ホール効果を解明するための重要な結果であると考えている。

まとめ/今後の展望

本研究からBa₃CuSb₂O₉では、フォノンガラス的な熱伝導が観測され、低温で $|\kappa_{xy}| \propto T^2$ の温度依存性を持つ熱ホール効果が観測された。低温ではスピンギャップが形成されることから、観測された熱ホール効果はフォノンの熱ホール効果だと考えられる。TbGGの先行研究からは不明であったフォノンの熱ホール効果の温度依存性がわかったことで、今後の理論研究につながると期待している。また、 κ_{xy} の符号はTbGGの κ_{xy} とは逆であった。フォノンの熱ホール効果の符号をきめるメカニズムは全く不明であるが、 κ_{xy} の符号も今後の解明に重要な情報であると考えている。

謝辞

本研究は以下の方々(杉井かおり、下澤雅明、渡邊大樹、鈴木喜貴、M. Halim、木俣基、松本洋介、中辻知)との共同研究による成果であり、山田科学振興財団、東レ科学研究助成、日本学術振興会による科学研究費補助金事業の助成のもとに行われました。ここに感謝の意を表します。

参考文献

1. Y. Zhang *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 2219–2222 (2000).
2. K. Sugii *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **118**, 145902 (2017).
3. Y. Onose *et al.*, *Science* **329**, 297–299 (2010).
4. H. Katsura, N. Nagaosa, and P. A. Lee, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 066403 (2010).
5. R. Matsumoto, R. Shindou, and S. Murakami, *Phys. Rev. B* **89**, 054420 (2014).
6. D. Watanabe *et al.*, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **113**, 8653–8657 (2016).

7. C. Strohm, G. L. J. A. Rikken, and P. Wyder, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 155901 (2005).
8. A. V. Inyushkin and A. N. Taldenkov, *JETP Lett.* **86**, 379–382 (2007).
9. S. Nakatsuji *et al.*, *Science* **336**, 559–563 (2012).
10. J. A. Quilliam *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **109**, 117203 (2012).
11. Y. Doi, Y. Hinatsu, and K. Ohoyama, *J. Phys.: Condens. Matter* **16**, 8923–8935 (2004).
12. Y. Wakabayashi *et al.*, *Phys. Rev. B* **93**, 245117 (2016).
13. A. Smerald and F. Mila, *Phys. Rev. Lett.* **115**, 147202 (2015).
14. J. Nasu and S. Ishihara, *Phys. Rev. B* **91**, 045117 (2015).
15. K. Naruse *et al.*, *J. Phys.: Conf. Ser.* **568**, 042014 (2014).
16. T. Takabatake *et al.*, *Rev. Mod. Phys.* **86**, 669 (2014).
17. M. Mori *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **113**, 265901 (2014).

