

## 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31日現在

機関番号：82401

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2009～2011

課題番号：21360043

研究課題名（和文）時間反転対称性の破れと固体の熱電応答に関する理論的研究

研究課題名（英文）Theoretical study of thermoelectric response in time-reversal-symmetry breaking system

研究代表者

小椎八重 航 (KOSHIBAE WATARU)

独立行政法人理化学研究所・交差相関理論研究チーム・副チームリーダー

研究者番号：20273253

研究成果の概要（和文）：電子間の相互作用が強い系では、しばしば、強磁性のような、時間反転対称性の破れた状態が安定化される。こうした系の外場応答に対する理論的研究が、本計画では行われ、以下のような知見が得られた：i) 量子電子-古典スピン結合系の励起と緩和の実時間ダイナミクス。ii) 強い電子間相互作用がもたらす熱起電力の非単調な温度依存性。iii) 磁性体と超伝導体からなる接合系の伝導理論。iv) 強相関電子系における磁性不純物効果。

研究成果の概要（英文）：In the strongly correlated electron systems, the time-reversal-symmetry breaking often occurs. The ferromagnetic state is an example. In this project, the response of the strongly correlated electron systems to external disturbance has been studied. The main topics examined here are: i) Real-time dynamics of the excitation and relaxation of the quantum electron-classical spin hybrid system. ii) Non-monotonic temperature dependence in the power due to strong correlation. iii) Theory of superconductor/magnet/superconductor junction. iv) Effect of magnetic impurity in strongly correlated electron systems.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	9,400,000	2,820,000	12,220,000
2010年度	2,600,000	780,000	3,380,000
2011年度	2,600,000	780,000	3,380,000
年度			
年度			
総計	14,600,000	4,380,000	18,980,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎・応用物理学一般

キーワード：強相関電子系，実時間ダイナミクス，厳密対角化

## 1. 研究開始当初の背景

遷移金属酸化物に代表される強相関電子系では、しばしば、強磁性のような、時間反転対称性の破れた状態が出現する。こうした系では、伝導電子は、秩序変数が織り成す

「場」と結びつき、場と電子の競合と協力の中に、独特の不安定性を形作る。すなわち、様々の電子相が、低エネルギー領域に準安定状態としてひしめき合い、それらの状態は、小さな外部からの摂動により、互いに行き来

することになる．これが巨大な外場応答として現れるのである．例えばマンガン酸化物の中には，磁場や電場などにより絶縁体が金属に転移してしまう現象が見られ，パーマロイやガーネットのような強磁性体では，巨大な熱—スピン流交差効果が見出される．問題の焦点は，秩序変数が織り成す場と伝導電子の競合と協力，そして低エネルギー領域にひしめき合う準安定状態の多重性に絞られる．こうした強相関電子系特有の交差効果を調べべく，本研究は計画された．

## 2. 研究の目的

本研究の目的は，遷移金属酸化物に代表される強相関電子系の巨大な外場応答を理論的に調べ，その個性と起源を明らかにすることにある．相関電子系を記述する標準模型であるハバード模型，

$$H = -t \sum_{\langle ij \rangle, \sigma} c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma} + U \sum_i n_{i\uparrow} n_{i\downarrow} \quad (1)$$

を取りあげクーロン相互作用の役割について，簡単に触れよう．式(1)の第2項が電子間の相互作用を示している．この相互作用は，次のように表現することも出来る：

$$U n_{i\uparrow} n_{i\downarrow} = \frac{U}{2} \left[ (n_{i\uparrow} + n_{i\downarrow}) - (n_{i\uparrow} - n_{i\downarrow})^2 \right] \quad (2)$$

ここで， $n_{i\sigma}^2 = n_{i\sigma}$  を用いてある．式(2)から明らかのように，電子間相互作用は，磁気モーメントを誘発することで，電子系の安定化をもたらす役割を担う．すなわち強相関電子系は，磁気モーメントに衝突しながら運動する伝導電子として捉えることが出来るのである．この切り口からのアプローチを導く有効模型は，二重交換模型として知られている．それは，伝導電子のスピンが，古典的な自由度として記述される局在スピンの結合した模型である．

本計画では，様々な理論的手法を用いて強相関電子系の外場応答が調べられたが，ここでは特に，二重交換模型を対象とした，電子の励起と緩和の問題を掘り下げてみよう．

## 3. 研究の方法

上に述べたように，強相関電子系における電子は，スピンに「衝突」しながら運動する．言い換えれば，電子（電荷自由度）の運動エネルギーは，磁気状態（スピン自由度）を励起する．この「エネルギーのやりとり」は，もちろん，一方的なものではなく反跳を伴い，励起した電子—スピン状態は自己無撞着に安定化に向けて時間発展を示す．本計画では，平均場近似を越えた，電子の運動方程式を積分し数値的に時間発展を求めるアルゴリズムを新たに開発することにより，この電荷自

由度とスピン自由度の結合ダイナミクスを調べた．それは，電子の量子力学的な時間発展と，古典的な運動方程式に従う局在スピンの時間発展を連立させたものであり，エネルギー，運動量，そしてスピン角運動量の散逸の効果をあらわに取り扱うものである．この手法を用いることにより，我々は外場により励起された強相関電子系の緩和過程を，実時間ダイナミクスとして可視化することに成功した．

## 4. 研究成果

下に示す図1は，本計画による，強相関電子系の外場応答の実時間シミュレーションの実証例である．半導体に代表される従来の

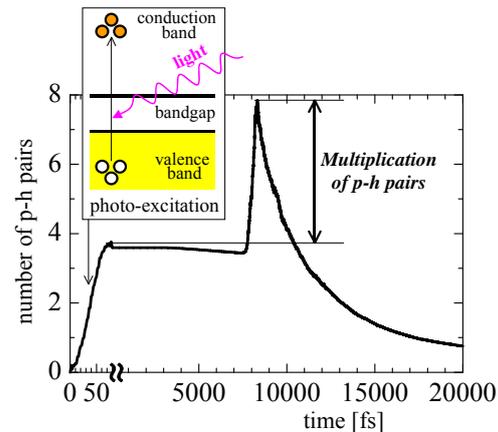


図1．光誘起絶縁体金属転移における電子正孔対数の時間依存性．時刻 80[fs]まで光を照射し電子正孔対を生成させた後（挿入図），光照射をやめる．光照射が無いにもかかわらず，緩和過程の最中に多量の電子正孔対生成が引き起こされる様子がわかる．

電子材料では，「バンドギャップ」は各電子材料を特徴付ける固有の不変量としてデバイス設計に利用される．この概念は，しかし，強相関電子系では成立しない．よく知られるように，マンガン，ニッケル，バナジウムなどを含む酸化物では，光や電場，磁場そして熱による絶縁体金属転移が観測される．すなわちバンドギャップは不変量ではなく，外場応答の結果として消失してしまう．我々は量子多体問題そのものといえるこの問題に取り組んだ結果，絶縁体金属転移を掌る電子系の励起とその緩和過程に，強相関電子系ならではの实時間ダイナミクスを見出した．それは，電子状態の再構成に伴い出現する「電子—正孔対増殖」の新機構である．外場により励起された電子系は，その受け取ったエネルギーを絶縁体金属転移の駆動とともに周囲の熱浴に解放し，安定化の道を進む．このとき，絶縁体のバンドギャップは閉じていくが，その様子は単調なものではなく，固有の振動を伴いながら消失していく．そしてこの固有

振動は、多くの電子-正孔対を玉突き現象的に生み出す。この素過程は、原子物理学の概念であるオージェ過程の逆過程に例えることができ、これが強相関電子系では玉突き現象的に起こるのである。こうして励起した強相関電子系は、ただ単調な安定化の道を進るのではなく、いふなれば有限の寿命を持つプラズマ状態を形成することにより、緩和の促進を図ることが明らかとなった。

ほか、本計画では以下の問題が取り扱われた：

- ・ ニッケル不純物を含む銅酸化物での、正孔キャリア局在化の条件
- ・ 銅酸化物の結晶構造とクーパー対の不安定性
- ・ 梯子格子強相関電子系の電子状態の解明
- ・ 鉄を含む酸化物の電子状態と結晶構造の関係
- ・ コバルト酸化物の熱電応答の研究
- ・ 磁性体を挟んで構成されるジョセフソン接合における、磁区構造の磁壁のダイナミクスを反映した電気伝導の理論

#### 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 19 件)

- ① S. Hikino, M. Mori, W. Koshibae, and S. Maekawa, Towards precise measurement of oscillatory domain wall by ferromagnetic Josephson junction, *Applied Physics Letters* **100**, 152402-1-3 (2012). (査読あり)
- ② K. Ishii, K. Tsutsui, K. Ikeuchi, I. Jarrige, J. Mizuki, H. Hiraka, K. Yamada, T. Tohyama, S. Maekawa, Y. Endo, H. Ishii, and Y. Q. Cai, Electronic excitations around the substituted atom in  $\text{La}_2\text{Cu}_{1-y}\text{Ni}_y\text{O}_4$  as seen via resonant inelastic x-ray scattering, *Physical Review B* **85**, 104509-1-5 (2012). (査読あり)
- ③ W. Koshibae, N. Furukawa, and N. Nagaosa, Photo-induced insulator-metal transition of a spin-electron coupled system, *EPL* **94**, 27003-p1-p5 (2011). (査読あり)
- ④ T. Kajitani, Y. Miyazaki, K. Hayashi, K. Yubuta, X.Y. Huang, W. Koshibae, Thermoelectric Energy Conversion and Ceramic Thermoelectrics, *Materials Science Forum* **671**, 1-20 (2011). (査読あり)
- ⑤ M. Uchida, K. Oishi, M. Matsuo, W. Koshibae, Y. Onose, M. Mori, J. Fujioka, S. Miyasaka, S. Maekawa, and Y. Tokura, Thermoelectric response in the incoherent transport region near Mott transition: the case study of  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{VO}_3$ , *Phys. Rev. B* **83**, 165127-1-5 (2011). (査読あり)
- ⑥ S. Hikino, M. Mori, S. Takahashi, and S. Maekawa, Composite excitation of Josephson phase and spin waves in Josephson junctions with ferromagnetic insulator, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **80**, 074707-1-8 (2011). (査読あり)
- ⑦ S. Hikino, M. Mori, S. Takahashi, and S. Maekawa, Microwave-induced supercurrent in a ferromagnetic Josephson junction, *Supercond. Sci. Technol.* **24**, 024008-1-5 (2011). (査読あり)
- ⑧ K. Tsutsui, T. Tohyama, W. Koshibae, and S. Maekawa, Theoretical Study of Resonant Inelastic X-ray Scattering Spectrum in Nickelates, *Journal of Physics: Conference Series* (in press), (査読あり)
- ⑨ E. Kaneshita, K. Tsutsui, and T. Tohyama, Spin and Orbital Characters of Excitations in Iron Arsenides Revealed by Simulated Fe L-Edge RIXS, *Physical Review B* **84**, 020511-1-5 (2011). (査読あり)
- ⑩ K. Tsutsui, T. Tohyama, S. Maekawa, Theory of resonant inelastic X-ray scattering spectrum for Ni impurities in cuprates, *Journal of Physics and Chemistry of Solids* **72**, 354-357 (2011). (査読あり)
- ⑪ K. Tsutsui, T. Tohyama, S. Maekawa, Theoretical Study of Resonant Inelastic X-ray Scattering Spectrum in the Hubbard Ladder, *Physica C* **470** S232-S233 (2010). (査読あり)
- ⑫ K. Ishii, K. Ikeuchi, I. Jarrige, J. Mizuki, H. Hiraka, Y. Yamada, K. Tsutsui, T. Tohyama, S. Maekawa, Resonant inelastic x-ray scattering of  $\text{La}_2\text{Cu}_{0.95}\text{Ni}_{0.05}\text{O}_4$ , Y. Endoh, H. Ishii, Y. Q. Cai, *Physica C* **470** S155-S157 (2010). (査読あり)
- ⑬ M. Yoshida, K. Ishii, K. Ikeuchi, I. Jarrige, Y. Murakami, J. Mizuki, K. Tsutsui, T. Tohyama, S. Maekawa, K. Kudo, Y. Koike, Y. Endoh, Temperature-dependence of electronic structures in  $\text{Sr}_{14}\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$  studied by resonant inelastic x-ray scattering, *Physica C* **470** S145-S146 (2010). (査読あり)
- ⑭ G. Khaliullin, M. Mori, T. Tohyama, and S. Maekawa, Enhanced pairing

- correlations near oxygen dopants in cuprate superconductors, Phys. Rev. Lett. **105**, 257005-1-4 (2010). (査読あり)
- ⑮ S. Hikino, M. Mori, S. Takahashi, and S. Maekawa, Sign reversal of ac Josephson current in a ferromagnetic Josephson junction, J. Phys. Soc. Jpn. **78**, 014708-1-8 (2009). (査読あり)
- ⑯ K. Tsutsui, A. Toyama, T. Tohyama, S. Maekawa, Exact Diagonalization Calculations of Hole Binding around Ni Impurities in Ni-substituted Cuprate Superconductors, Phys. Rev. B **80**, 224519-1-5 (2009). (査読あり)
- ⑰ W. Koshibae, N. Furukawa, and N. Nagaosa, Real-Time Quantum Dynamics of Interacting Electrons: Self-Organized Nanoscale Structure in a Spin-Electron Coupled System, Phys. Rev. Lett **103**, 266402-1-4 (2009). (査読あり)
- ⑱ M. Mori, N. A. Shooshtary, T. Tohyama, and S. Maekawa. Nuclear quadrupole frequency in multilayered cuprates, J. Phys. Soc. Jpn. **78**, 123704-1-4 (2009). (査読あり)
- ⑲ M. Mori, G. Khaliullin, T. Tohyama, and S. Maekawa, Mechanism on spatial variation of pairing gap by apical atoms in cuprates, J. Phys. Conf. Ser. **150**, 052169-1-4 (2009). (査読あり)
- [学会発表] (計 16 件)
- ① M. Mori, Transport Properties Characterized by Magnetic Domain-Wall Motion in Josephson Junction, APS March Meeting 2012, 2012 年 2 月 27 日, Boston, Massachusetts, USA
- ② W. Koshibae, Photo-excitation and relaxation dynamics in junction of double-exchange systems, APS March Meeting 2012, 2012 年 2 月 29 日, Boston, Massachusetts, USA
- ③ Wataru Koshibae, Numerical study of real-time quantum dynamics in spin-electron coupled system, APS March Meeting 2011, 2011 年 3 月 23 日, Dallas, Texas, USA
- ④ Wataru Koshibae, Theory of thermopower in strongly correlated electron systems: non-monotonic temperature dependence, , June 14-17, 2011, Aalto University, Department of Chemistry, Helsinki, Finland
- ⑤ 小椎八重 航, 遷移金属酸化物にみられる巨大な熱起電力に関する理論的研究, 粉体粉末冶金協会, 平成 23 年度秋季講演大会, 大阪大学コンベンションセンター, 大阪府吹田市山田丘 1-1, 平成 23 年 10 月 26 日(水)
- ⑥ M. Mori, Thermopower in correlated electron systems revisited: non-monotonic temperature dependence, ARW Workshop Hvar 2011, September 18-25, 2011, Hvar, Croatia
- ⑦ M. Mori, Influences of magnetic-fluctuation, resonance, and oscillation on Josephson current in superconductor/ferromagnet/superconductor junction, Vortex matter in nanostructured superconductors (VORTEX VII), September 10-17, 2011, Rhodes, Greece
- ⑧ M. Mori, Dynamics of Josephson-phase coupled with spin waves, The 26th International Conference on Low Temperature Physics (LT26), August 10-17, 2011, Beijing, China
- ⑨ W. Koshibae, Relaxation dynamics of excited states in spin-electron coupled systems, APS March Meeting 2010, March 17, 2010, Portland, Oregon, USA
- ⑩ M. Mori, Possible mechanisms of enhanced pairing gap near apical and dopant oxygens in cuprate, The 9th Asia Pacific Workshop on Materials Physics (APW2010), December 12-15, 2010, Hanoi, Vietnam
- ⑪ M. Mori, Enhanced pairing correlation near oxygens in cuprate, Super-PIRE/REIMEI workshop, October 28-31, 2010, Knoxville, USA
- ⑫ M. Mori, Quantum transport in nano-structure of superconductor and ferromagnet, ARW Workshop Hvar 2010, October 2-7, 2010, Hvar, Croatia
- ⑬ 小椎八重 航, 強相関電子系の熱起電力に関する理論的研究: スピンと軌道自由度の役割, 第 5 回 KEK 連携研究会「熱電変換材料と新規機能物質」, 2010 年 12 月 17 日, 筑波大学
- ⑭ 小椎八重 航, 強相関電子系の熱電応答, 第 36 回化合物新磁性材料研究会「熱電材料と場の理論」, 2010 年 2 月 24 日, 東京大学物性研究所
- ⑮ K. Tsutsui, Exact Diagonalization study for Ni substitution effect in d-p Model, ICC-IMR workshop "Physics on Transition Metal Based Superconductors", 2009/6/26, 東北大

学金属材料研究所, 仙台

- ⑩ M. Mori, Local structure and superconductivity in cuprates, The 7-th International Conference on New Theories, Discoveries and Applications of Superconductors and Related Materials, May. 13-16, 2009, Beijing, China

[図書] (計2件)

- ① 小椎八重 航, 熱電変換技術の基礎と応用—クリーンエネルギーをめざして—, シーエムシー出版, 2011, pp. 31-37
- ② W. Koshibae and S. Maekawa, Properties and Applications of Thermoelectric Materials: The Search for New Materials for Thermoelectric Devices (NATO Science for Peace and Security Series B: Physics and Biophysics). 2009, pp. 69—79

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

小椎八重 航 (KOSHIBAE WATARU)

独立行政法人理化学研究所・交差相関理論研究チーム・副チームリーダー

研究者番号：20273253

### (2) 研究分担者

森 道康 (MORI MICHIASU)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・先端基礎研究センター・研究副主幹

研究者番号：30396519

筒井 健二 (TSUTSUI KENJI)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・量子ビーム応用研究部門・研究副主幹

研究者番号：80291011

### (3) 連携研究者

なし