

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和元年6月11日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2018

課題番号：15K05192

研究課題名(和文) 秩序状態の局所的空間構造と巨視的位相の結合による量子輸送現象

研究課題名(英文) Quantum transport by coupling between local structure and macroscopic phase

研究代表者

森 道康 (Mori, Michiyasu)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 原子力科学研究所 先端基礎研究センター・研究主幹

研究者番号：30396519

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：磁化は巨視的物理量であり、その位相の時空間変化がスピン波と呼ばれる集団励起である。スピン波を交流磁場や温度勾配などにより駆動することで、磁気の流れであるスピン流が生成される。本研究では、スピン流の生成と電流への変換に関して、電子相関効果に焦点を当て研究を進めた。その結果、電子相関の効果によりスピン波励起のコヒーレンスが失われる事や、イリジウムをドーブした銅において、スピン流と電流との相互変換を誘起するスピンの符号の反転が起きることなどが分かった。また、スピクラスターの局所的構造変化に電子相関が伴うことにより、熱ホール効果が起こり得ることを示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

現在、世界がしのぎを削る研究的となっているのが、スピン流の物理である。スピントロニクスの研究は応用面だけでなく、基礎物理学にも豊かな色彩を放ち始めている。初期の磁気抵抗効果を中心とした研究から、現在は電流やスピン流を使う試みは新たな段階に入っている。スピン流を基軸にした熱電発電の原理(スピントロニクス効果)はその典型である。スピントロニクス効果では、スピン流の生成・注入・変換により起こる。本研究は、スピン流に対する電子相関の効果を示したものであり、新たな段階に入ったスピントロニクス研究へ貢献するものと位置付けられる。

研究成果の概要(英文)：Magnetization is a macroscopic physical quantity, and its spatiotemporal change in phase is a collective excitation called a spin wave. By driving the spin wave with an alternating magnetic field or a temperature gradient, a spin current, which is a magnetic flow, is generated. In this study, we focused on the electron correlation effect on spin current generation and spin current conversion. It is found that the coherence of spin wave excitation is lost due to electron correlation. By the spin Hall effect, mutual conversion between spin and charge current is induced. We find that the electron correlation change its sign in Ir doped Cu. We also show that the thermal Hall effect can occur due to the local structural change of the spin cluster accompanied by the electron correlation.

研究分野：物性理論

キーワード：スピントロニクス効果 熱ホール効果 電子相関

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

電子の電荷制御を基礎とするエレクトロニクスに対し、スピントロニクスは、電子のスピントロニクスに立脚する。これは次世代の省エネルギー電子デバイス技術を切り開くものとして、一大研究分野に発展をとげた。1980年代の磁性金属多層膜が示す巨大な磁気抵抗効果に関する研究は急速に進展し、いまではハードディスクに組み込まれ、高集積化不揮発メモリーへと具現化した。エレクトロニクスでは電荷の流れである電流が利用されるが、スピントロニクスで注目されるのがスピン自由度の流れ、すなわちスピン流である。現在、世界がしのぎを削る研究的となっているのが、スピン流の物理である。

スピントロニクスの研究は応用面だけでなく、基礎物理学にも豊かな色彩を放ち始めている。初期の磁気抵抗効果を中心とした研究を第一世代とすると、電流やスピン流を使う試みは第二世代と言える。この第二世代は、単なる制御法の開発に留まらず、新たな物理現象の発見をもたらした。スピン流を基軸にした熱電発電の原理(スピンゼーベック効果)はその典型である。スピンゼーベック効果では、スピン流の生成・注入・変換により起こる。スピン流の基本は、磁化の時間変化だが、これに加えて、磁化に空間変化が伴うとき、通常の電磁場とは区別される磁性体由来の電場(スピン電場)が提案された。そして、実際に磁壁の運動に伴う起電力が観測され、これはスピン起電力と呼ばれている。非平衡定常状態の物理を超え、時空磁気構造の動力学に達したスピントロニクスは第三世代へと突入している。

### 2. 研究の目的

磁化は巨視的物理量であり、その位相の時空間変化がスピン波と呼ばれる集団励起である。スピン流は、このスピン波を交流磁場や温度勾配などにより駆動することで生成される。スピンゼーベック効果に関して言えば、強磁性体におけるスピン流の生成、強磁性体と金属界面におけるスピン流の注入、金属中におけるスピン流から電流への変換、が重要な要素となる。本研究では、これまでに確立したスピン伝導理論と強相関電子系の理論を駆使して、電子のもつスピンや軌道角運動量に根差した量子輸送現象の理論を築くことを目指した。そして、以下に挙げる項目に焦点を当てて計画を進めてきた。

- (1) スピン波励起における電子相関効果
- (2) スピンホール効果における電子相関効果
- (3) 熱ホール効果を誘起する電子相関効果

### 3. 研究の方法

(1) 反強磁性絶縁体と強相関金属の2層系を考える。そして、反強磁性層のスピン波に対する自己エネルギーを、層間の飛び移り積分2次の範囲で求めた。この計算により、スピン波に対する金属層の影響を見ることが出来る。金属層の電子相関はGutzwiller近似で扱った。電子相関が強まると、その効果を表すGutzwiller因子は小さくなる。

(2) スピンをデバイスに応用しようとするスピントロニクスは、現時点では従来のエレクトロニクス素子と組み合わせる段階にある。そのため、スピン流と電流との相互変換が起こるスピンホール効果が重要な要素となっている。スピンホール効果をもつ物質として、銅に極めて少量の遷移金属酸化物が添加された系を系統的に調べた。密度汎関数法を用いて母体の銅と遷移金属との重なり積分を求め、アンダーソン模型にハートリーフォック近似や量子モンテカルロ法を用いて電子相関の効果を取り込み、軌道の占有率を計算することで、スピンホール角を計算した。

(3) 熱ホール効果とは、熱の流れに対して垂直に磁場を与えたとき、この両者に直交する方向に温度差が生じる現象である。熱流がフォノンによって運ばれる場合は、特に「フォノンホール効果」と呼ばれる。元々、非磁性絶縁体  $Tb_3Ga_5O_{12}$  で観測された現象であるが、絶縁体  $Ba_3CuSb_2O_9$  (BCSO) においても同様な現象が報告された。BCSOは、 $Cu^{2+}$ イオンの蜂の巣構造を有し、約50Kのスピンギャップを持ち、磁気長距離秩序を示さない。従って、50K以下の低温領域における熱輸送は、フォノンによって支配されると考えられる。つまり、BCSOの熱ホール効果は、フォノンホール効果だということになる。それでは、BCSOにおけるフォノンホール効果の起源は何か？本研究では「組み残しスピン」に着目した。組み残しスピンとは、 $Cu^{2+}$ 六角形の中心に位置する不純物  $Cu^{2+}$ スピンで、低温の熱伝導率を支配している。組み残しスピンを有する銅クラスタの電子状態を、厳密対角化法を用いて計算し、フォノンの散乱機構を調べた。

### 4. 研究成果

(1) 反強磁性層におけるスピン波の線幅は、金属層におけるGutzwiller因子が小さくなるに連れて、つまり電子相関が強くなるに連れて、それに反比例して増大することが分かった(図1)。電子相関により重くなった電子系の磁気励起は、小さなエネルギー幅に大きな状態密度を持つことになる。このため、強相関金属と接した磁性絶縁体の磁気励起は、低エネルギー領域においてスペクトルの線幅が広がる。つまり、コヒーレンスが失われることになる。ここでは強相関金属を考えたが、同様な状況はスピントロニクスの舞台となる強磁性体と金属の界面にも当てはまる。コヒーレンスが悪くなることは、スピントロニクスで求められる効率的スピン流生成を阻害することになるため、界面における電子状態の重要性を示唆している。

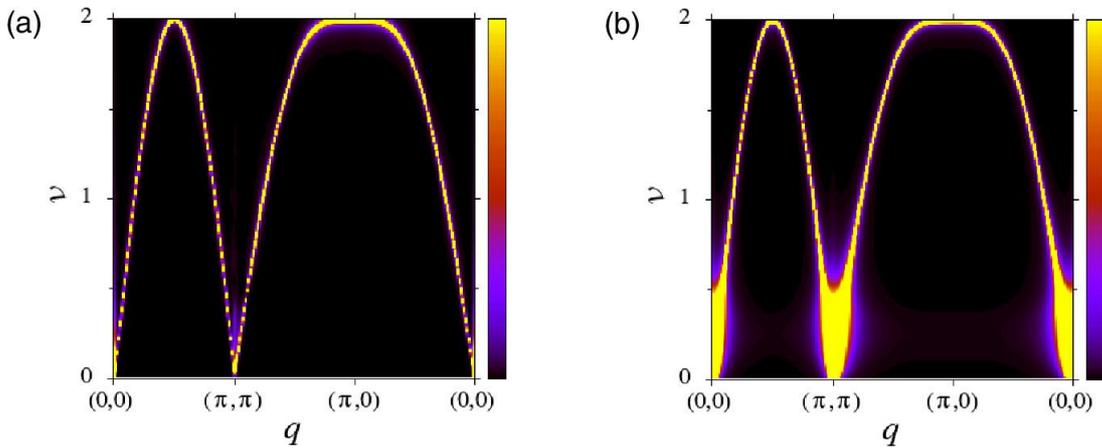


図1 金属層と反強磁性層の二層系における反強磁性スピン波励起。(a)金属層に電子相関が無い場合。(b)金属層に強い電子間相互作用がある場合。低エネルギー領域で電子相関の効果のために分散関係が不明瞭になっている。

(2) 極僅かにイリジウムを添加した銅において、スピンホール効果で生じる電圧の符号に着目した。この物質の測定は既に行われているが、これまでの密度汎関数法(結晶を構成する原子と構造を基に、全ての物理量が電子密度の関数で表される)として結晶の電子状態を計算する手法を用いた理論研究では、実際の実験で表れた符号とは異なる結果しか得られなかった。そこで、電子間相互作用という電子同士が互いに反発しあう力を計算に取り込むことで、実験と理論との食い違いを解決できるのではないかと考えた。まず、密度汎関数法を用いてイリジウムを添加した銅の電子状態を求め、イリジウムとその周りを取り囲む銅との重なり積分を見積もった。さらに、電子間相互作用のある系の物理量を求める数値計算手法である量子モンテカルロ法を用いて、イリジウム上の電子間相互作用を取り込んだ計算を行った。この方法の長所は、それまでの密度汎関数法では取り扱えない、イリジウム原子のスピンや軌道に関する状態の複雑な組み合わせを取り扱える点にある。その結果、電子間相互作用によってイリジウム上の電子配置が変化するため、スピンホール効果によって生じた電圧の符号が正から負に反転し、実験と一致した結果が得られることが分かった(図2)。本成果は、スピントロニクスに不可欠であるスピンホール効果において、電子相関が無視出来ないことを示したものである。

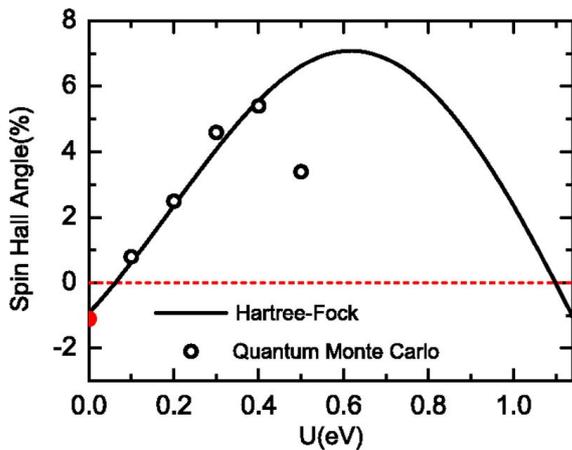


図2 銅に 5d 系の遷移金属(イリジウム)を不純物として添加した系を考える。不純物上の電子間斥力  $U$  をパラメータとしてスピンホール角を計算した結果。実線は、電子相関を平均場近似で扱った結果。白丸は、量子モンテカルロ法による結果。赤丸は電子相関が無い場合。赤の破線はスピンホール角が 0。

(3) 局所構造の変化が、磁場下において横熱伝導度を誘起する現象(熱ホール効果)について研究を行った。熱ホール効果とは、熱の流れに対して垂直に磁場を与えたとき、この両者に直交する方向に温度差が生じる現象である。熱流がフォノンによって運ばれる場合は、特に「フォノンホール効果」と呼ばれる。BCSO におけるフォノンホール効果の起源として「組み残しスピン」に着目した。組み残しスピンとは、 $\text{Cu}^{2+}$ 六角形の中心に位置する不純物  $\text{Cu}^{2+}$  スピンで、低温の熱伝導率を支配している。組み残しスピンを有する銅クラスターの電子状態を、厳密対角化法を用いて計算した。組み残しスピンを含む六角形のスピングルusterに、ヤーン・テラー歪みが加わると四重極対称の電荷再配置が起こることを見出した。これは、BCSO におけるスピン-フォノン結合を与え、スピングルusterによるフォノンのスピンフリップ散乱が可能となる。これこそが BCSO におけるフォノンホール効果の起源だと考えられる。熱ホール効果自体は、磁場による熱流制御という側面を持つ。多くの研究が行われている熱勾配によるスピンの生成の研究への貢献が期待出来る。

## 5 . 主な発表論文等

[雑誌論文](計18件)(全て査読有)

- "Dynamical DMRG study of spin and charge excitations in the four-leg t-t'-J ladder"  
T. Tohyama, M. Mori, and S. Sota  
Phys. Rev. B **97**, 235137 (2018)  
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.97.235137>
- "Magnetic Phase Diagram of Frustrated Spin Ladder"  
T. Sugimoto, M. Mori, T. Tohyama, and S. Maekawa,  
Phys. Rev. B **97**, 144424 (2018)  
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.97.144424>
- "Theory of current-driven skyrmions in disordered magnets"  
W. Koshibae and N. Nagaosa  
Scientific Reports **8**, 6328 (2018)  
DOI: 10.1038/s41598-018-24693-5
- "Broad line-width of antiferromagnetic spinwave due to electrons correlation"  
M. Mori,  
J. Phys. Soc. Jpn. **86**, 124705 (2017)  
<https://doi.org/10.7566/JPSJ.86.124705>
- "Magnetic structure and dispersion relation of the S=1/2 quasi-one-dimensional Ising-like antiferromagnet BaCo<sub>2</sub>V<sub>2</sub>O<sub>8</sub> in a transverse magnetic field"  
M. Matsuda, H. Onishi, A. Okutani, J. Ma, H. Agrawal, T. Hong, D. M. Pajerowski, J. R. D. Copley, K. Okunishi, M. Mori, S. Kimura, and M. Hagiwara,  
Phys. Rev. B **96**, 024439 (2017).  
<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.96.024439>
- "Magnetization dynamics and its scattering mechanism in thin CoFeB films with interfacial anisotropy"  
Okada, S. He, Bo Gu, S. Kanai, A. Soumyanarayanan, S. T. Lim, M. Tran, M. Mori, S. Maekawa, F. Matsukura, H. Ohno, C. Panagopoulos,  
PNAS **114**, 3815-3820 (2017)  
<http://dx.doi.org/10.1073/pnas.1613864114>
- "Theory of skyrmions in bilayer systems"  
W. Koshibae and N. Nagaosa  
Scientific Reports **7**, 42645 (2017)  
DOI: 10.1038/srep42645
- "What determines the sign of the spin Hall effects in Cu alloys doped with 5d elements?"  
Z. Xu, B. Gu, M. Mori, T. Ziman, and S. Maekawa,  
J. Magn. Magn. Mater. **400** 184-187 (2016)  
<http://dx.doi.org/10.1016/j.jmmm.2015.08.073>
- "Berry curvature and dynamics of a magnetic bubble"  
W. Koshibae and N. Nagaosa  
New J. Phys. **18**, 045007 (2016)  
DOI: 10.1088/1367-2630/18/4/045007
- "Theory of antiskyrmions in magnets"  
W. Koshibae and N. Nagaosa  
Nature Commun. **7**, 10542 (2016)  
DOI: 10.1038/ncomms10542
- "Quasi-spin correlations in a frustrated quantum spin ladder"  
T. Sugimoto, M. Mori, T. Tohyama, and S. Maekawa,  
Physics Procedia **75**, 861 (2015)  
<http://dx.doi.org/10.1016/j.phpro.2015.12.111>
- "Lifshitz Transition Induced by Magnetic Field for Frustrated Two-Leg Spin-Ladder System"  
T. Sugimoto, M. Mori, T. Tohyama, and S. Maekawa  
JPS Conf. Proc. **8**, 034005 (2015)  
<http://dx.doi.org/10.7566/JPSCP.8.034005>
- "Magnetization Plateaux by Reconstructed Quasi-spinons in a Frustrated Two-Leg Spin Ladder under a Magnetic Field"  
T. Sugimoto, M. Mori, T. Tohyama, and S. Maekawa  
Phys. Rev. B **92**, 125114 (2015)  
<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.92.125114>
- "Enhanced Charge Excitations in Electron-Doped Cuprates by Resonant Inelastic X-Ray Scattering"

T. Tohyama, K. Tsutsui, M. Mori, S. Sota, and S. Yunoki  
Phys. Rev. B **92**, 014515 (2015)  
<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.92.014515>  
"Analysis of the spin Hall effect in Culr alloys: Combined approach of density functional theory and Hartree-Fock approximation"  
Z. Xu, B. Gu, M. Mori, T. Ziman, and S. Maekawa,  
J. Appl. Phys. **117**, 17D510 (2015)  
<http://dx.doi.org/10.1063/1.4914531>  
"Enhanced spin Hall effect by electron correlations in CuBi alloys"  
B. Gu, Z. Xu, M. Mori, T. Ziman, and S. Maekawa,  
J. Appl. Phys. **117**, 17D503 (2015)  
<http://dx.doi.org/10.1063/1.4906443>  
"Sign change of the spin Hall effect due to electron correlation in non-magnetic Culr alloys"  
Z. Xu, B. Gu, M. Mori, T. Ziman, and S. Maekawa,  
Phys. Rev. Lett. **114**, 017202 (2015)  
<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.114.017202>  
"Memory functions of magnetic skyrmions"  
W. Koshibae, Y. Kaneko, J. Iwasaki, M. Kawasaki, Y. Tokura, and N. Nagaosa  
Jpn. J. Appl. Phys. **54**, 053001 (2015)  
DOI: 10.7567/JJAP.54.053001

[学会発表](計16件)

日本物理学会 74 回年次大会, 九州大学伊都キャンパス, 2019 年 3 月 14 日 ~ 17 日  
"熱ホール効果を示す  $Tb_3Ga_5O_{12}$  のフォノンと結晶場"  
森道康, 藤田全基, 南部雄亮, 河村聖子, 古府麻衣子, 中島健次. C. Ulrich,  
O.P.Sushkov  
50th REIMEI International Workshop  
Tokai, December 12-14, 2018  
"Phonon Hall effect by extended cluster multipoles"  
M. Mori  
日本物理学会 2018 年秋季大会, 同志社大学京田辺キャンパス, 2018 年 9 月 9 日 ~ 12 日  
"スピクラスタによるフォノンホール効果"  
森道康, 楠瀬博明  
9th JEMS Conference 2018  
Mainz, Germany, September 3-7, 2018  
"Temperature dependence of spin stiffness in ferri-magnet"  
M. Mori  
Workshop on Antiferromagnetic spintronics  
Grenoble, France, October 25-27, 2017  
"Lifetime of magnons in an antiferromagnet/correlated-metal bilayer"  
M. Mori  
Physics of Uranium based Superconductors  
Tokai, Ibaraki, Japan September 29-30, 2017  
"Broad line-width of antiferromagnetic spinwave due to electrons correlation"  
M. Mori  
International Workshop on Multipole Physics and Related Phenomena (J-Physics 2017)  
Hachimantai, Iwate, Japan September 24-28, 2017  
"Thermal Hall effect and multipole"  
M. Mori  
日本物理学会 2017 年秋季大会, 岩手大学上田キャンパス, 2017 年 9 月 21 日 ~ 24 日  
"熱ホール効果と拡張多極子"  
森道康  
The International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SCES)  
Prague, Czech Republic, July 17-21, 2017  
"Lifetime of antiferromagnetic spinwave due to electrons correlation"  
M. Mori  
日本物理学会 2016 年秋季大会, 金沢大学角間キャンパス, 2016 年 9 月 13 日 ~ 16 日  
"多層系銅酸化物における反強磁性スピン波"  
森道康  
The 11th International Conference on Spectroscopies in Novel Superconductors  
(SNS2016)  
Ludwigsburg, Germany, June 19-24, 2016

"Lifetime of Antiferromagnetic Magnon in Multilayered Cuprate"

M. Mori

日本物理学会 71 回年次大会, 東北学院大学泉キャンパス, 2016 年 3 月 19 日 ~ 22 日

"銅酸化物高温超伝導体における空間不均一性と磁気励起 II"

森道康

2015 Gordon Godfrey Workshop on Spins and Strong Correlations

Sydney, Australia, November 2-6, 2015

"Sign change of spin Hall effect in Cu alloys by electrons correlation"

M. Mori [Invited]

The Mainz-Tohoku-JAEA-Kaiserslautern joint workshop & The 29th REIMEI International Workshop on "Spin-orbit Coupling and Spin Mechanics"

Mainz Uni, Germany, October 23-24, 2015

"Spin Hall effect in Cu alloys and phonon Hall effect: Skew scattering of electrons and phonons"

M. Mori [Invited]

日本物理学会 2015 年秋季大会, 関西大学千里山キャンパス, 2015 年 9 月 16 日 ~ 19 日

"銅酸化物高温超伝導体における空間不均一性と磁気励起"

森道康

The 20th International Conference on Magnetism (ICM)

Barcelona, Spain, 5-10 July 2015

"Magnetic field dependence of phonons in the terbium gallium garnet"

M. Mori

[ その他 ]

ホームページ等

<https://asrc.jaea.go.jp/soshiki/gr/spinenergy/morimichi/morihome.html>

## 6 . 研究組織

### (1)研究分担者

研究分担者氏名 : 小椎八重 航

ローマ字氏名 : KOSHIBAE, Wataru

所属研究機関名 : 国立研究開発法人理化学研究所

部局名 : 創発物性科学研究センター

職名 : 上級研究員

研究者番号 ( 8 桁 ) : 20273253

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。