

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 27 日現在

機関番号：82401

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2012～2015

課題番号：24360036

研究課題名(和文) 相関電子系の励起と緩和のダイナミクス

研究課題名(英文) Excitation and relaxation dynamics of correlated electron systems

研究代表者

小椎八重 航 (Koshibae, Wataru)

国立研究開発法人理化学研究所・創発物性科学研究センター・上級研究員

研究者番号：20273253

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 15,000,000円

研究成果の概要(和文)：本計画では、相関電子系の励起と緩和の実時間ダイナミクスが調べられた。とりわけ、平衡から遠く離れた電子励起の緩和過程を、数値的手法を駆使することにより解明した。これにより、光励起状態における電子相関由来の電子-正孔対増殖現象が明らかとなった。この理論に基づき現実の光電変換デバイスを設計し、光電効果の磁場制御を実験的に確認することに成功した。電子相関は磁気モーメントを誘起し、その秩序状態を築き上げる。それはまた、位相幾何学的な磁気テクスチャの外場制御の舞台となる。こうした磁気テクスチャの実時間ダイナミクスを我々は調べ、新たな磁気メモリーデバイスの理論設計を示した。

研究成果の概要(英文)：In this project, we theoretically study the real-time dynamics of excitation and relaxation of the electronic states in strongly correlated electron systems. The electron-electron interaction is expressed by the mutual precession of the coupled quantum-electron spin and local classically-ordered spin. We develop a numerical method to examine the time evolution of the electronic structure and find the multiple carrier generation by electron-electron interaction. Based on our theory, we design a hetero-structured device and successfully show the magnetically controlled photovoltaic effect experimentally. We also study the real-time dynamics of the topological magnetic texture in chiral and dipolar magnets and theoretically develop the design principles of skyrmionic memory devices.

研究分野：物性理論

キーワード：光電変換 skyrmion

### 1. 研究開始当初の背景

固体電子の外場応答には、平衡からあまり遠く離れていない励起状態によるものと、平衡から遠くはなれた励起状態によるものがある。前者は線形応答の物理としてよく整理されている。一方、後者には未踏の領域が広がり、それは理論的・実験的研究の重要課題として注目されてきた。我々が発展させてきた、相関電子系の励起状態とその緩和過程の実時間ダイナミクスに特化した理論的手法は、線形応答の垣根を越えて、熱、光、電場、磁場などの外場応答の研究にも威力を発揮することがわかってきた。ここに電子相関が導くスピンと電子系の競合に焦点を当て、平衡から離れた励起状態の緩和過程までも取り扱う新たな理論的研究が計画された。

### 2. 研究の目的

本研究が計画されるまでに我々は、光電効果において電子相関が生み出す電子-正孔対の増殖機構を理論的に見出ししていた。この概念に立脚した光電変換デバイスの理論設計と実験的検証は、自然な形で本研究の目的となる。論点を明確にするため、この電子-正孔対の増殖機構について少し掘り下げよう。その本質は、電子相関由来の電子励起ギャップの実時間ダイナミクスにある。1 電子近似がよく成り立つ系では、バンドギャップは固体を特徴づける不変量である。しかし、電子相関由来の電子励起ギャップは、電子状態と強く結びつき、時には消失することもある。絶縁体金属転移がその典型例である。このギャップが閉じる様子は、あるいは開く様子は、そしてこれにともない現れる電子状態の変化はどのようなものだろうか？この様子の実時間分解、つまりダイナミクスを我々は、理論的に調べた。相関電子系のギャップの実時間ダイナミクスは、単調とは限らない。そして、その活発なダイナミクスが時には電子励起を引き起こす。一見逆説的に思えるが、電子励起をとまなうことで、励起状態にある相関電子系は、その緩和を促進するのである。緩和過程に現れる電子励起は、自身の緩和のために他の電子励起を引き起こす。この玉突き現象こそが電子-正孔対の増殖機構のからくりである。この実証研究に、本計画の目的のひとつとして取り組んだ。

相関電子系の実時間ダイナミクスは、電子の電荷自由度と、電子相関由来のスピン自由度との競演の物理そのものである。我々が展開してきた理論はまた、自然な形で磁気テクスチャの外場応答とその実時間ダイナミクスまでも包含することになる。様々の磁性体における磁気モーメントの連なりがみせる磁気テクスチャ、すなわち、磁壁や磁気バブルそして磁気スキルミオンの物理はまた、本計画の重要課題となる。

### 3. 研究の方法

相関電子系の量子多体状態は、経路積分法を

用いることにより、複数の古典自由度の競合として表現することができる。こうして時間・空間分解された電荷・スピン結合系の運動方程式を、本研究は、数値的手法を用いて、これまで困難とされてきた相関電子系の動的緩和の素過程を実時間ダイナミクスとして明らかにするものである。この大規模数値計算に向けて、空間軸の分割に相当する並列化処理を用いた計算機プログラムを開発し、数値的に運動方程式を解析し時間発展を詳細に調べることが可能となった。本計画で導入された並列計算機は、研究を加速し、研究目的に掲げた、電子-正孔対の増殖機構の実証研究、そして磁気テクスチャの実時間ダイナミクスとその物理に成果をもたらした。

### 4. 研究成果

まず挙げられるのが、本計画が提唱してきた理論、光誘起絶縁体金属転移の実時間ダイナミクスの理論の発展と、実験的実証である。

「2. 研究の目的」で詳細を示したとおり、相関電子系における光電変換は、動的な電子励起ギャップにより、新たな機能を獲得する。光電変換効率の制御に目を向けたとき、これを掌る鍵を抽出するため、図に示したような理論模型の範囲で、相関電子系の光励起から電子-正孔分離に至るまでの実時間ダイナミ

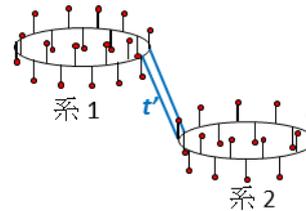


図. 二重交換模型による接合系の模式図。赤い点は、伝導電子と結合する局在磁気モーメントの終点を示している。

クスを調べた。すなわち、飛び移り積分  $t$  で架橋された二重交換模型を用意し、その一方で光励起により電子-正孔対を生成させる。2つの二重交換模型の間には電位差を与え、光電変換の様子を、まるごとシミュレートするのである。その結果、電子励起ギャップの不安定性、すなわち、その活発な胎動が、電子-正孔対の増殖機構の効果を大きくすることが明らかとなった。

電子励起ギャップの制御は、相関電子系の光電応答の鍵を握る。この実証のため、我々は、現実の構造物として強相関電子系の典型であるマンガンを含む酸化物を舞台に、その光電変換を調べた。特筆すべきは、この遷移金属酸化物に潜在するモット性とその外場による可制御性である。電子相関は磁性を導き、同じく電子相関由来の電子励起ギャップと結びつく。磁性は磁場に自然な形で応答する。これに着目し、光電変換の磁場応答を調べた。その結果、我々の理論からの予想通り、光電変換の磁場制御に成功したのである。これは光電効果に外部磁場印加のような形で能動的

な制御法があるという学術的な新規性とどまらず、高効率太陽光発電法に新たな道を切り拓くものである。

次に挙げられるのは、磁気モーメントの長距離構造が織り成す非自明なトポロジータクソンをともなう実体、磁気テクスチャの外場応答とその実時間ダイナミクスである。これは、言い換えれば、磁気テクスチャの制御法そのものであり、応用面では、新たな磁気記録技術の開発に直結する。磁区を分かち磁壁は、磁価の発生を抑制するように形成される傾向を持ち、いわゆる Bloch 磁壁が安定化される。これが構成する円柱磁区構造は、かつて（正常）磁気バブルと呼ばれていた。時を経て、近年盛んに研究されている、らせん磁性体に見出される磁気スキルミオンは、前述の磁気バブルに、実は位相幾何学的（トポロジカル）に同相の磁気テクスチャである。このトポロジカルな特長こそがスキルミオンの安定性を与える。翻せば、スキルミオンの生成および消滅の鍵は、トポロジカル転移の物理に結び付く。我々は、本研究で開発されてきた理論的手法を駆使することにより、スキルミオンの生成と消滅、さらには磁性体中での空間的移動、すなわち駆動の物理を調べた。そして、熱、磁場、電場によるスキルミオンの生成と消滅の実時間ダイナミクスを明らかにすることにより、効率的な制御法を整理することに成功した。また、スキルミオンの電流駆動と、これにスキルミオンの生成・消滅法を組み合わせたデバイスの理論設計を示した。これらは、スキルミオンを用いた情報デバイスの設計指針となり得るものである。

また、本計画で推し進めてきた磁性体と超伝導体からなるジョセフソン接合における磁気ダイナミクスと伝導の理論は、十分な発展とともに、論文として研究発表された。そして、関連電子系の励起と緩和の理論を展開してきた本計画では、非弾性 X 線散乱による強相関電子系の電子構造および磁気構造の観測に関する理論も進展をみせ、銅酸化物を代表例として、様々の遷移金属化合物の観測に関する研究に道を与えた。

#### 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 15 件)

- ① W. Koshibae and N. Nagaosa, Theory of antiskyrmions in magnets, *Nature Communications* **7**, 10542 (2016), 査読あり, DOI:10.1038/ncomms10542
- ② N. Ogawa, W. Koshibae, A. J. Beekman, N. Nagaosa, M. Kubota, M. Kawasaki, and Y. Tokura, Photodrive of magnetic bubbles via magnetoelastic waves, *PNAS* **112**, 8977 (2015). 査読あり, DOI: 10.1073/pnas.1504064112
- ③ W. Koshibae, Y. Kaneko, J. Iwasaki M. Kawasaki, Y. Tokura, and N. Nagaosa, Memory functions of magnetic skyrmions, *Japanese Journal of Applied Physics* **54**, 053001 (2015). 査読あり, DOI: 10.7567/JJAP.54.053001
- ④ K. Tsutsui, E. Kaneshita, and T. Tohyama, *Physical Review B* **92**, 195103 (2015). 査読あり, DOI: 10.1103/PhysRevB.92.195103
- ⑤ M. Mori, A. Spencer-Smith, O. P. Sushkov, and S. Maekawa, Origin of the Phonon Hall Effect in Rare-Earth Garnets, *Phys. Rev. Lett.* **113**, 265901 (2014). 査読あり, DOI: 10.1103/PhysRevLett.113.265901
- ⑥ W. Koshibae and N. Nagaosa, Creation of skyrmions and antiskyrmions by local heating, *Nature Communications* **5**, 5148 (2014). 査読あり, DOI: 10.1038/ncomms6148
- ⑦ Z.G. Sheng, M. Nakamura, W. Koshibae, T. Makino, Y. Tokura and M. Kawasaki, Magneto-tunable photocurrent in manganite-based heterojunctions, *Nature Communications* **5**, 4584 (2014). 査読あり, DOI: 10.1038/ncomms5584
- ⑧ J. Iwasaki, W. Koshibae and N. Nagaosa, Colossal Spin Transfer Torque Effect on Skyrmion along the Edge, *Nano Letters* **14**, 4432 (2014). 査読あり, DOI: 10.1021/nl501379k
- ⑨ M. Mori, W. Koshibae, S. Hikino, and S. Maekawa, Possible method to observe the breathing mode of a magnetic domain wall in the Josephson junction, *Journal of Physics: Condensed Matter* **26**, 255702 (2014). 査読あり, DOI: 10.1088/0953-8984/26/25/255702
- ⑩ M. Mochizuki, X. Z. Yu, S. Seki, N. Kanazawa, W. Koshibae, J. Zang, M. Mostovoy, Y. Tokura, and N. Nagaosa, Thermally driven ratchet motion of a skyrmion microcrystal and topological magnon Hall effect, *Nature Materials* **13**, 241-246 (2014). 査読あり, DOI: 10.1038/nmat3862
- ⑪ W. Koshibae, N. Furukawa, and N. Nagaosa, Carrier multiplication and separation in systems with strong electron interaction: Photoinduced dynamics of a junction solar cell, *Physical Review B* **87**, 165126 (2013). 査読あり, DOI:10.1103/PhysRevB.87.165126
- ⑫ K. Sugimoto, Z. Li, E. Kaneshita, K. Tsutsui, and T. Tohyama, Spin dynamics and resonant inelastic x-ray scattering in chromium with commensurate spin-density wave order, *Physical Review B* **87**, 134418 (2013). 査読あり, DOI: 10.1103/PhysRevB.87.134418
- ⑬ O. P. Sushkov, A. I. Milstein, M. Mori, and S. Maekawa, Relativistic effects in scattering of

polarized electrons, EPL (Europhysics Letters) **103**, 47003 (2013). 査読あり,  
DOI: 10.1209/0295-5075/103/47003

[学会発表] (計 13 件)

- ① W. Koshibae, Dynamics of magnetic skyrmions: Theoretical design of skyrmion devices, International Workshop on Topological Structures in Ferromagnetic Materials, 2015 年 5 月 20 日, University of New South Wales, Sydney, Australia
- ② W. Koshibae, Skyrmionics - Theoretical Design of Skyrmion Memory Device -, The Third RIKEN-NCTU Symposium on Physical and Chemical Science, 2015 年 11 月 13 日, National Chiao Tung University, 1001 University Road, Hsinchu, Taiwan 300, ROC
- ③ M. Mori, Sign change of spin Hall effect in Cu alloys by electrons correlation, 2015 Gordon Godfrey Workshop on Spins and Strong Correlations, 2015 年 11 月 5 日, Sydney, Australia
- ④ M. Mori, Spin Hall effect in Cu alloys and phonon Hall effect: Skew scattering of electrons and phonons, The Mainz-Tohoku-JAEA-Kaiserslautern joint workshop on "Spin-orbit Coupling and Spin Mechanics" 2015 年 10 月 23 日, Mainz Univ. Germany
- ⑤ 筒井 健二, Theoretical Study of L-edge Resonant Inelastic X-ray Scattering on High-Tc Cuprate Superconductors, JAEA 放射光科学シンポジウム, 2015 年 03 月 16 日, SPring-8, 兵庫県佐用郡佐用町
- ⑥ M. Mori, Phonon Hall effect in the terbium-gallium-garnet: Skew scattering of phonon, 39th ANNUAL CONDENSED MATTER and MATERIALS MEETING, 2015 年 02 月 05 日, Wagga Wagga, Australia
- ⑦ W. Koshibae, Dynamics of magnetic skyrmions: Theoretical design of skyrmion devices, 39th ANNUAL CONDENSED MATTER and MATERIALS MEETING, 2015 年 02 月 05 日, Wagga Wagga, Australia
- ⑧ W. Koshibae, A theoretical design of skyrmion device, IMR International Workshop "Research frontier of transition-metal compounds opened by advanced spectroscopies", 2014 年 10 月 02 日, Institute for Materials Research, Tohoku University, Japan
- ⑨ W. Koshibae, Creation and Annihilation of Skyrmion: Theoretical Design of Skyrmion Device, JSPS Symposium on Nanoscale Physics of Quantum Materials, 2014 年 08 月 11 日, Weetwood Hall, Leeds, UK
- ⑩ M. Mori, A possible way to observe the breathing mode of magnetic domain wall, The International Conference on Strongly

Correlated Electron Systems (SCES), 2014 年 07 月 08 日, Grenoble, France

- ⑪ W. Koshibae, Magnetization process of chiral magnet: creation and annihilation of skyrmions and anti-skyrmions, APS March Meeting 2014, March 4, 2014, Denver, Colorado, 米国
- ⑫ M. Mori, Spin-phonon coupling and phonon Hall effect, 2013 Gordon Godfrey Workshop on Spins and Strong Correlations, 2013 年 11 月 28 日, Sydney, Australia
- ⑬ K. Tsutsui, Theoretical Study of Electronic states and Excitation Spectra in Ni-substituted Cuprates, The international conference on strongly correlated electron systems SCES2013, 2013 年 8 月 6 日, Tokyo, Japan

## 6. 研究組織

### (1)研究代表者

小椎八重 航 (KOSHIBAE WATARU)

国立研究開発法人理化学研究所・創発物性科学研究センター・上級研究員

研究者番号：20273253

### (2)研究分担者

森 道康 (MORI MICHIIYASU)

国立研究開発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)

国立研究開発法人放射線医学総合研究所・関西光科学研究所放射光科学研究センター・上席研究員

研究者番号：80291011