博士論文

ギンツブルグ・ランダウ模型に基づいた反強磁性スピンゼーベック効果の理論研究

2023 年 3 月

岡山大学大学院
自然科学研究科

山本督

概要

スピンゼーベック効果は, 2008 年に内田等によって初めて実験報告された現象である [1]. この現象では, 磁性体中の熱エネルギーを駆動源として隣接する非磁性金属にスピン流が注入される. 注入されたスピン流は逆スピンホール効果を通して電流に変換されるため, スピンゼーベック効果は新しい熱発電現象として非常に注目を集めている [2]. 2008 年のスピンゼーベック効果発見時には磁性体として強磁性金属が用いられたが, 2010 年になり, 伝導電子の存在しない強磁性絶縁体においてもスピンゼーベック効果の観測が報告された [3]. それ以来, マグノンがスピンゼーベック効果の主役である事が確立し, 強磁性スピンゼーベック効果の理解は著しい発展を見せている [4]. 一方, 反強磁性スピンゼーベック効果は強磁性スピンゼーベック効果よりも研究の歴史が浅く, その理解が十分に進んでいない状況にある. 特に未解明とされているのは相転移近傍における次の 2 つの問題である.

(i) 2019 年に Li 等によって報告された, スピンフロップ磁場よりも低磁場領域における FeF_2 の反強磁性スピンゼーベック効果がネール温度にピークを持つ事実 [5]

(ii) 2020 年に Li 等によって報告された, Cr_2O_3 の反強磁性スピンゼーベック効果がスピンフロップ転移に伴って符号反転する事実 [6]

これらの実験報告に触発され, 本研究では, 反強磁性スピンゼーベック効果の理論研究を推進した. 特に, 上記 2 つの実験事実が相転移に付随する現象であることから, 相転移点近傍で有効なギンツブルグ・ランダウ模型に基づいた理論解析を行った. その結果, 上記 (i) に関しては, ネール温度における反強磁性スピンゼーベック効果のピーク構造が反強磁性スピン帯磁率のピーク構造に由来する事を明らかにした. また上記 (ii) に関しては, 界面でのみ発生する特殊な界面交換相互作用の有無が, スピンフロップ転移を伴う反強磁性スピンゼーベック効果の符号反転を決定する事を明らかとした.

目次

第 1 章

序論

1.1 スピントロニクスの歴史

1.1.1 分子線エピタキシャル技術の発展

スピントロニクスとは, 従来の電荷の自由度だけでなく, 量子力学におけるスピン角運動量の自由度も積極的に活用しようとする学理体系である. このスピントロニクス分野の誕生の背景に, 分子線エピタキシャル技術の発展が貢献している. 分子線エピタキシャル法とは, 超高真空環境下 (およそ 10^{-10}Torr) において, 熱エネルギーを持った分子線又は原子線を基板上に照射し, エピタキシャル成長させる技術である [7]. 真空技術の発展にも促進され, 分子線エピタキシャル法によって数 Å の厚みで薄膜を制御したり, 異種原子を交互に積層した人工超格子を作製できるようになった. こうした技術の発展により, 80 年代後半には薄膜における磁気の振る舞いと電子輸送の関わりが盛んに研究されている [8, 9]. この潮流の中で特に注目を浴びた研究成果が, フランスの A. Fert のグループによる巨大磁気抵抗効果の発見である [10]. 彼らは, $[\mathrm{Fe}(30\text{Å})/\mathrm{Cr}(9\text{Å})]_{40}$ という積層構造において電気抵抗を測定し, 2T の外部磁場を与えることで 45% 程度の巨大な電気抵抗変化を観測した. 従来知られていた異方性磁気抵抗効果 (電気抵抗が電流と自発磁化の相対角度に依存する効果) は数 % 程度の電気抵抗変化率に留まっていたため [11], 彼らの成果は大きな注目を集めた. 特に, スピン伝導の物理の重要性を世の中に認識させたことで, スピンを積極的に活用するスピントロニクス分野の興隆を大きく促進させた意義は大きい. なお, 同時期にドイツの Grunberg のグループも Fert 等と同様の現象を独立に見出したため [12], 巨大磁気抵抗効果の発見の意義から, 2007 年に Fert と Grunberg の両者に対してノーベル物理学賞が授与された.

巨大磁気抵抗効果はスピントロニクスの興隆に関わる重要な発見であったため, 次節では, Fert のグループの巨大磁気抵抗効果の発見について簡潔にレビューする.

1.1.2 巨大磁気抵抗効果の発見

分子線エピタキシャル技術の発展に伴い, 80 年代には人工超格子における物性を研究できるようになったことは先に述べた. この潮流の中で, Fert のグループは Cr と Fe の積層構造における電子輸送に着目した [10]. 彼らは, [Fe(30Å)/Cr(9Å)] を複数積層したサンプルを用意し, 電気抵抗を測定したのである. その結果, 面内に磁場を印加した場合 (a, b), 2T の磁場で 45% 程度の巨大な電気抵抗の変化を観測している. これは, 従来の異方性磁気抵抗効果の電気抵抗変化率 (数 %) と比較して巨大であるため, 巨大磁気抵抗効果と名付けられた. この磁気抵抗効果は, 磁場を面内において電

流と垂直に変更した場合も同様の振る舞いとなっているため, 等方的な振る舞いを示す現象である事が分かる. そのため, 異方性磁気抵抗効果とは本質的に異なる現象であると考えられる.

それではなぜ, このような巨大磁気抵抗効果が観測されるのだろうか. ここでは, Fert 等によるスピン依存伝導の物理を使って, 低磁場又は高磁場領域に分けて説明してみよう [10].

(1) 低磁場領域：実は, Fe 間の Cr が 30Å の時には鉄の磁化が反強磁性結合している事が知られている [10]. 従って, ある方向を持ったスピン偏極伝導電子は, 自身と反対方向のスピンを持つ電子との散乱頻度が高くなり, 電気抵抗が高い.

(2) 高磁場領域：磁場を大きくすると, 鉄間の反強磁性結合よりもゼーマンエネルギーによる利得が無視できなくなり, 最終的にはある飽和磁場を超えて強磁性結合となる. 従ってスピン偏極伝導電子の散乱頻度は低下 (平均自由行程が長くなる) し, 電気抵抗が下がる.

一方, 磁場を面内に垂直に印加した場合も (1) と同様な説明が可能であるが, 鉄間の反強磁性結合だけでなく面内異方性エネルギーを上回る必要があるため, 飽和磁場 H_s は大きくなっている.

巨大磁気抵抗効果の発見は, スピン依存伝導の重要性を世の中に認識させたと同時に磁気センサーへの応用を彷彿とさせるが, 大きな磁気抵抗比を得るためには 2T の磁場が必要とされるため, 実用化できない状況だった. この状況を打破したのが, IBM の研究員 Dieny 等である. 彼らは, 強磁性体と反強磁性体の間に働く交換バイアス [13] という現象を利用して [反強磁性層/強磁性体の磁化固定層/非磁性層/強磁性体の磁化フリー層] から成るサンドイッチ構造 (スピンバルブと呼ばれる) を考案し, 20Oe という弱い磁場の下で 10% の磁気抵抗率を得た [14]. スピンバルブは微小な微小な磁場を感じ取る事ができるナノスケール構造のセンサーであるため, 1998 年にはハードディスクドライブの磁気読み取りヘッドとして実用化された.

さらに, 巨大磁気抵抗効果の発見によってスピン依存伝導の物理が着目されるようになると, トンネル磁気抵抗効果 ([強磁性体/絶縁膜/強磁性体] における磁気抵抗効果) も盛んに研究されるようになった. このトンネル磁気抵抗効果は, 1975 年に Julliere によって発見された磁気抵抗効果で, 磁気抵抗比は低温でも 14% と小さな変化率であった [15]. しかし, その後の研究によって室温におけるトンネル磁気抵抗比は 2008 年時点で 600% まで伸びている [16]. この成果により, 現在のハードディスクドライブにおける磁気読み取りヘッドは, トンネル磁気抵抗効果に置き換わっている.

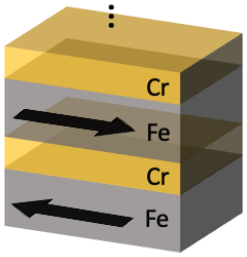

図 1.1　$[Fe(30Å)/Cr(9Å)]_{40}$ の積層構造の図. 電流は面内または面直に流される.

1.1.3　スピントランスファートルクの登場

巨大磁気抵抗効果の発見によって, 量子力学に基づいて磁気を読み取ることが可能となった. 一方, 量子力学に基づいた磁気の書き込みについてはどうだろうか.

1996 年, Berger[17] と Slonczewski[18] は, スピントランスファートルクによる磁化反転の理論を提案した. 彼らのアイデアは, 図 1.2 のようにスピン偏極した電子を反対方向を向いた磁化層に流し込めば, 自身が反対を向こうとする反作用を利用して磁化反転が実現できるというものである. スピンダイナミクスの観点で考えると, 図 1.2(右) のように平衡状態に向くダンピング作用と反対方向のダンピング補正が加わり, ある臨界電流より大きな電流を与えることで磁化を反転できるということである. このスピントランスファートルクは, 最初に Myers 等によって実証され [19], 情報の書き込みができるという観点でスピン伝導の物理の重要性を世の中に認識させた. こういった背景から, 如何にしてスピン流を作り出すかという方向で研究が盛んに行われるようになった. そこで次節では, このスピン流の生成方法について述べる.

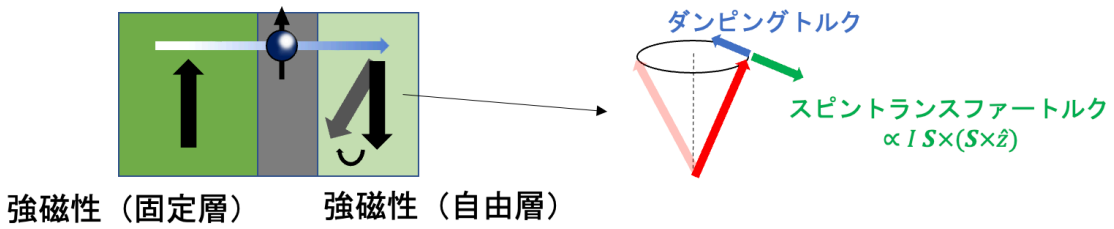

図 1.2　スピントランスファートルクの概念図.

1.2　スピン流の生成方法

スピン流を作り出す方法は大きく 3 つある. 順に紹介しよう.

1.2.1　伝導電子の拡散スピン流

金属中では, 磁性体や非磁性体に関わらず, 外場によるドリフトや拡散効果によってスピン流を駆動することができる. ここでは, 系に電場が印加されている状況を考えて 2 流体モデルにおけるスピン流を説明する [20].

まず, 伝導電子はアップスピンとダウンスピンを持つため, 電場 $\boldsymbol{E} = -\nabla\phi$ の下で次の電子流が駆動される:

$$\boldsymbol{J}_\sigma = \sigma_\sigma \boldsymbol{E} - eD_\sigma(-\nabla\delta n_\sigma) \tag{1.1}$$

ここで, σ_σ はスピン σ の電気伝導度, D_σ はスピン σ のスピン拡散係数, δn_σ は平衡状態からずれたスピン σ のキャリア濃度である. 第一項は電場による電子のドリフト, 第二項はスピンの拡散効果を記述している. 今, $\boldsymbol{E} = -\nabla\phi$ を用いて整理すると $\boldsymbol{J}_\sigma = \nabla(-\sigma_\sigma\phi + eD_\sigma\delta n_\sigma)$ となるが, Einstein の関係式 $\sigma_\sigma = e^2 N_\sigma D_\sigma$ を用いることで $\boldsymbol{J}_\sigma = (\sigma_\sigma/e)\nabla(-e\phi + \delta n_\sigma/N_\sigma)$ を得る. 第一項は電子の電位, 第二項はスピン σ の化学ポテンシャルであるため, これらをまとめてスピン依存の

電気化学ポテンシャル $\mu_\sigma := -e\phi + \delta n_\sigma / N_\sigma$ を定義する．これにより, $\boldsymbol{J}_\sigma = (\sigma_\sigma/e)\nabla\mu_\sigma$ という簡潔な表現となり, スピン σ の電子流が電気化学ポテンシャルの勾配で駆動されるという描像を得る．

電流は $\boldsymbol{J}_c := (\boldsymbol{J}_\uparrow + \boldsymbol{J}_\downarrow)$, スピン流は $\boldsymbol{J}_s := (-\hbar/2e)(\boldsymbol{J}_\uparrow - \boldsymbol{J}_\downarrow)$ で定義できる． これらに $\boldsymbol{J}_\sigma = (\sigma_\sigma/e)\nabla\mu_\sigma$ を代入することで, 各スピンチャンネルの物理量で流れを記述できる:

$$\boldsymbol{J}_c = (1/e)\nabla(\sigma_\uparrow\mu_\uparrow + \sigma_\downarrow\mu_\downarrow) \tag{1.2}$$

$$\boldsymbol{J}_s = (-\hbar/2e^2)\nabla(\sigma_\uparrow\mu_\uparrow - \sigma_\downarrow\mu_\downarrow) \tag{1.3}$$

特に非磁性金属においてはスピンチャンネルにおける電気伝導に差異はないため, $\sigma_\uparrow = \sigma_\downarrow = \sigma/2$ である．従って,

$$\boldsymbol{J}_s = (-\hbar\sigma/4e^2)\nabla(\mu_\uparrow - \mu_\downarrow) \tag{1.4}$$

となり, 電気化学ポテンシャルの差の空間勾配がスピン流を駆動する．この差はスピン圧と呼ばれ, スピン流を駆動するためのポテンシャルの役割を果たす．

次に, スピン輸送を記述する方程式を導出する．定常状態における電荷とスピンの連続の方程式は, $\nabla\cdot(\boldsymbol{J}_\uparrow + \boldsymbol{J}_\downarrow) = 0$, $\nabla\cdot(\boldsymbol{J}_\uparrow - \boldsymbol{J}_\downarrow) = -e\ \delta n_\uparrow/\tau_{\uparrow\downarrow} + e\ \delta n_\downarrow/\tau_{\downarrow\uparrow}$ で与えられる．ここで, $\tau_{\sigma\sigma'}$ はスピンが σ から σ' へ反転するのに必要な時間である．連続の方程式に $\boldsymbol{J}_\sigma = (\sigma_\sigma/e)\nabla\mu_\sigma$ を代入し, 詳細釣り合いの条件 $N_\uparrow/\tau_{\uparrow\downarrow} = N_\downarrow/\tau_{\downarrow\uparrow}$ を用いることでスピン拡散方程式を得る:

$$\nabla^2(\mu_\uparrow - \mu_\downarrow) = \frac{1}{\lambda^2}(\mu_\uparrow - \mu_\downarrow) \tag{1.5}$$

ここで, $\lambda := \sqrt{D\tau_{\mathrm{sf}}}$ はスピン拡散長 (スピンが情報を伝わる特徴的な長さ), $\tau_{\mathrm{sf}} := (\tau_{\uparrow\downarrow} + \tau_{\downarrow\uparrow})/2$ はスピンが反転するのに必要な緩和時間を表す．スピン拡散方程式は, 適当な境界条件の下でスピン圧の空間分布を与えるが, その分布はスピン拡散長程度で減衰してしまう事を意味している．すなわち, スピン流が λ の程度で減衰する．実験で得られたスピン拡散長は, スピン軌道相互作用の弱い Al や Cr において 1μm 程度のオーダーである [21, 22]．現在はナノスケールで薄膜を制御できるようになったため, こういった短いスケールで減衰するスピン流を観測できるようになってきた．

1.2.2 スピン波スピン流

スピン流は, 物質内のスピン間相互作用を用いて駆動することができる．実際にはエネルギースケールの低い磁気双極子相互作用による静磁波も存在するが, ここでは特に強磁性交換相互作用によるスピン波がスピン角運動量を伝搬することを確認しよう [24].

強磁性体におけるスピン波は, 次のランダウ・リフシッツ・ギルバート方程式に従う事が知られている (ここでの議論は後述の時間依存ギンツブルグ・ランダウ方程式でも可能である).

$$\frac{\partial}{\partial t}\boldsymbol{M}(\boldsymbol{r},t) = \gamma\boldsymbol{H}_{\mathrm{eff}}\times\boldsymbol{M}(\boldsymbol{r},t) + \frac{D}{M_{\mathrm{s}}}\nabla^2\boldsymbol{M}(\boldsymbol{r},t)\times\boldsymbol{M}(\boldsymbol{r},t) + \frac{\alpha}{M_{\mathrm{s}}}\boldsymbol{M}(\boldsymbol{r},t)\times\frac{\partial}{\partial t}\boldsymbol{M}(\boldsymbol{r},t) \tag{1.6}$$

$\boldsymbol{H}_{\mathrm{eff}} = (0,0,H_{\mathrm{eff}})$ は有効磁場, D は交換スティフネス係数, M_{s} は飽和磁化, α はギルバート・ダンピング定数である．第一項はゼーマンエネルギー由来の歳差運動, 第二項は交換相互作用由来の歳差運動, 第三項は有効磁場の方向への緩和を表現している．スピン波周波数 $\omega_{\boldsymbol{q}} := \gamma H_{\mathrm{eff}} + D\boldsymbol{q}^2$ を用いると, この解は $M_x + iM_y \propto \exp(i\boldsymbol{q}\cdot\boldsymbol{r} - i\omega_{\boldsymbol{q}}t)\exp(-\alpha\omega_{\boldsymbol{q}}t)$ という減衰振動解で与えられる．簡単のため, 緩和項を無視してスピン伝搬の様子を見ていくことにする．

ベクトル解析の公式 $\nabla^2 \boldsymbol{M} \times \boldsymbol{M} = \mathrm{div}(\nabla \boldsymbol{M} \times \boldsymbol{M})$ を用いると,

$$\frac{\partial}{\partial t}\boldsymbol{M}(\boldsymbol{r},t) = \gamma \boldsymbol{H}_{\mathrm{eff}} \times \boldsymbol{M}(\boldsymbol{r},t) - \frac{D}{M_{\mathrm{s}}}\mathrm{div}(\boldsymbol{M}(\boldsymbol{r},t) \times \nabla \boldsymbol{M}(\boldsymbol{r},t)) \tag{1.7}$$

今, $\boldsymbol{J}^M(\boldsymbol{r},t) = (D/M_{\mathrm{s}})\boldsymbol{M}(\boldsymbol{r},t) \times \nabla \boldsymbol{M}(\boldsymbol{r},t)$ を導入すると, これは交換相互作用に由来するため交換スピン流 (又はスピン波スピン流) と呼ばれる. この時, 磁化の z 方向の運動方程式は

$$\frac{\partial}{\partial t}M_z(\boldsymbol{r},t) + \nabla \cdot \boldsymbol{J}^{M_z}(\boldsymbol{r},t) = 0 \tag{1.8}$$

となり, 電荷に対する保存則と同様の表現となっている. ここで, $\phi(\boldsymbol{r},t) = M_x(\boldsymbol{r},t) + iM_y(\boldsymbol{r},t)$, $\phi^*(\boldsymbol{r},t) = M_x(\boldsymbol{r},t) - iM_y(\boldsymbol{r},t)$ を導入すると

$$\boldsymbol{J}^{M_z}(\boldsymbol{r},t) = \frac{D}{2iM_{\mathrm{s}}}[\phi^*(\boldsymbol{r},t)\nabla\phi(\boldsymbol{r},t) - \phi(\boldsymbol{r},t)\nabla\phi^*(\boldsymbol{r},t)] \tag{1.9}$$

これは, 量子力学における確率の流れと類似した表現となっているから, ϕ はスピン波の波動関数として捉えることができる. この波を準粒子描像で記述するために, ボゾンの生成消滅演算子 $b_{\boldsymbol{k}}$, $b_{\boldsymbol{k}}^\dagger$ を用いて $\phi(\boldsymbol{r},t) = \sqrt{2\gamma\hbar M_{\mathrm{s}}}\sum_{\boldsymbol{k}} b_{\boldsymbol{k}}\mathrm{e}^{i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}}$, $\phi^*(\boldsymbol{r},t) = \sqrt{2\gamma\hbar M_{\mathrm{s}}}\sum_{\boldsymbol{k}} b_{\boldsymbol{k}}^\dagger\mathrm{e}^{-i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}}$ を導入すると

$$\boldsymbol{J}^{M_z}(\boldsymbol{r},t) = \hbar\sum_{\boldsymbol{k}} \boldsymbol{v}_{\boldsymbol{k}} b_{\boldsymbol{k}}^\dagger b_{\boldsymbol{k}} \tag{1.10}$$

ここで, $\boldsymbol{v}_{\boldsymbol{k}} := 2D\boldsymbol{k}$ はスピン波の群速度である. 熱平均を取ると, マグノンの励起数 $n_{\boldsymbol{k}} := \left\langle b_{\boldsymbol{k}}^\dagger b_{\boldsymbol{k}} \right\rangle$ を用いて

$$\boldsymbol{J}^{\mathrm{magnon}} = \frac{\hbar}{2}\sum_{\boldsymbol{k}}(\boldsymbol{v}_{\boldsymbol{k}} n_{\boldsymbol{k}} - \boldsymbol{v}_{-\boldsymbol{k}} n_{-\boldsymbol{k}}) \tag{1.11}$$

を得る. 従って, マグノン数が $\boldsymbol{k}$ と $-\boldsymbol{k}$ で異なれば, 進行波の方向にスピン角運動量を伝搬できる.

スピン波がスピンキャリアの機能を有している事は, 実際に梶原等による非局所配置スピン輸送の実験で確認されている [24]. 彼らは, 図 1.3 のように非磁性金属 Pt → $Y_3Fe_5O_{12}$ → Pt の順にスピン角運動量を輸送することに成功した. そのプロセスを簡潔に辿ってみよう.

(1) Pt に電流を流すことで, スピンホール効果を介してスピン流を生成. 生成したスピン流は Pt と $Y_3Fe_5O_12$ の界面交換結合を通して強磁性体 $Y_3Fe_5O_{12}$ に注入される.

(2) 注入されたスピン流は, $Y_3Fe_5O_{12}$ 内を伝播し, 反対方向にある Pt に注入される.

(3) 界面交換結合を通して, その Pt にスピン流が注入され, 逆スピンホール効果 [式 (1.13)] を通して電気信号に変換される. このときの電圧 V を測定.

この実験は, $Y_3Fe_5O_{12}$ が絶縁体であるにも関わらず 1mm 離れた場所に信号を輸送できたため, スピン波がスピンキャリアとして機能する事を裏付けた重要な実験である.

1.2.3 スピンホール効果

スピンホール効果は, 1971 年に Dyakonov と Perel によって理論的に予測されたスピン依存伝導現象であり [25], 2000 年代に加藤と Wunderlich が半導体において初めて観測した [26, 27]. この現象では, 非磁性金属中に電流を流した時, 物質中のスピン軌道相互作用を介してアップスピン電子とダウンスピン電子が互いに逆方向に曲げられる [図 1.4(a)]. この時に生じるスピン流は次式で与えられる:

$$\boldsymbol{I}_s \propto \theta_{\mathrm{SH}}\boldsymbol{I} \times \boldsymbol{\sigma} \tag{1.12}$$

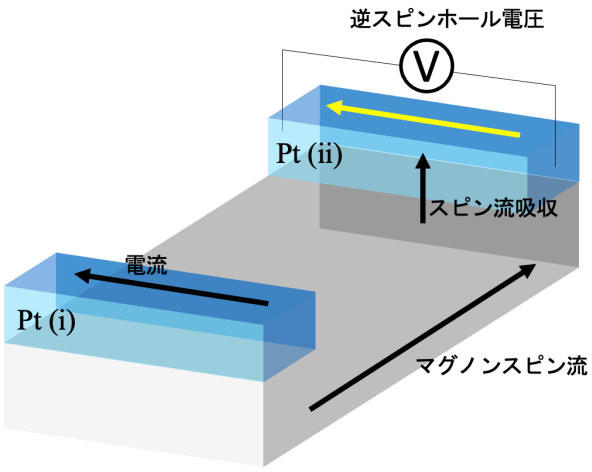

図 1.3　スピン波スピン流を用いたスピン輸送の概念図.

ここで, θ_{SH} はスピンホール角と呼ばれる量で, 電流-スピン流の相互変換効率を表す. その符号は物質によって異なる事に注意してほしい (例えば Pt と Ta は互いに逆符号のスピンホール角を持つ [28]). $\boldsymbol{\sigma}$ はスピン流のスピン偏極方向, $\boldsymbol{I}$ は電流である. この現象は外部磁場を必要としないため, 時間反転対称性を保った状態でスピン流を生成できるという特徴を持つ. スピンホール効果の機構については現在も議論が行われており, 物質中の不純物が作るスピン軌道相互作用を介したモット散乱 (外因性)[付録 H] や物質中のバンド構造に起因して生じるスピン依存伝導 (内因性) が提案されている [29, 30, 31].

一方, スピンホール効果の相反現象も存在する. これは逆スピンホール効果と呼ばれ, 齊藤, Valenzuela, 木村が初めて観測に成功した [32, 33, 34]. 逆スピンホール効果ではスピンの向きに関わらず電子が同方向に曲がるため, スピン流を電流に変換して観測できるのである [図 1.4(b)]. この現象は次の式で表現できる:

$$\boldsymbol{I} \propto \theta_{\mathrm{SH}} \boldsymbol{I}_s \times \boldsymbol{\sigma} \tag{1.13}$$

スピンホール効果と逆スピンホール効果は, スピン軌道相互作用が強いほどスピンホール角 θ_{SH} が大きくなるため, Pt や W, Ta などの非磁性重金属が主に用いられる.

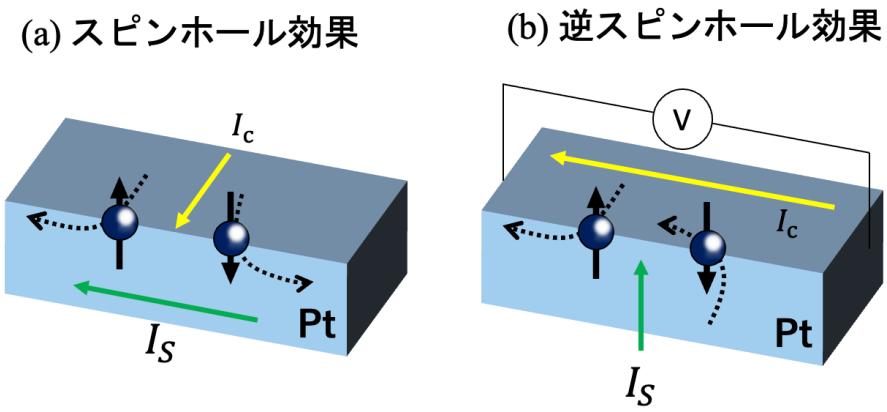

図 1.4　(a) スピンホール効果の概念図. (b) 逆スピンホール効果の概念図

1.2.4　スピンポンピング

スピンホール効果以外の手法を用いて純スピン流を生成する手法として, 強磁性金属/非磁性金属の接合系でスピン偏極電子を直接流し込む方法がある [図 1.5]. この手法では, スピン偏極電子によって界面にスピン圧が形成された後, 非磁性金属中のスピン拡散方程式に従ってスピンが拡散される. しかし, この手法では異種物質間における界面抵抗の違いからスピン注入効率が低下するインピーダンス・ミスマッチ問題が指摘されている [36]. 一方, ここで紹介するスピンポンピングという手法は異種物質間の界面交換結合を介してスピン注入を行うため, インピーダンス・ミスマッチ問題を回避することができる [36].

スピンポンピングは, Tserkovnyak 等によって理論的に提案されたスピン注入法であり [37], 水上等が観測に成功した [38]. 以下では, 強磁性体と非磁性金属の接合系を考えてスピンポンピングを説明する [図 1.5].

(1) まず, 外部から照射するマイクロ波の周波数を強磁性体の共鳴周波数に近づけ, 強磁性共鳴を起こす. これにより, 磁化の歳差運動を増大させる.
(2) 強磁性共鳴で生じたマグノンはスピンをもっているため, 強磁性体の磁化と非磁性金属の界面交換結合を通してスピンが輸送される. つまり非磁性金属のスピン密度を変調してスピン圧が形成される [式 (1.4)].
(3) 界面でスピン圧が形成されると, スピンは非磁性金属内のスピン拡散方程式に従って拡散する [式 (1.4) 及び式 (1.5) 参照].

それでは, このスピン流をどのようにして観測したら良いだろうか. スピンポンピングにおけるスピン流を観測する方法として, 主に次の 2 つが用いられる.
(1) 磁気共鳴のピーク幅を見る方法 [38, 32]. 強磁性体の非平衡スピンは界面の交換結合を通して非磁性金属スピンに渡されるため, 磁化の平衡状態に向かう作用 (ギルバート・ダンピング α_0) は $\delta\alpha$ だけ強まる. 理論によると磁気共鳴のピーク幅 $\Delta H \propto \delta\alpha$ なので, ΔH を見ることで界面から流れ込んだスピン流の振る舞いを調査できる.
(2) 逆スピンホール効果. 前節で述べた通り, スピン流は非磁性金属中のスピン軌道相互作用を介して電流に変換される [式 (1.13)]. この電気信号 (ホール電圧) を観測する.

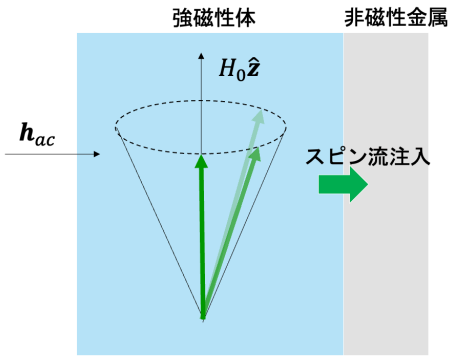

図 1.5　スピンポンピングの概念図. $\boldsymbol{h}_{\mathrm{ac}}$ は強磁性共鳴における交流磁場である.

1.3　スピンゼーベック効果の発見

これまで, 電磁場を駆動源としたスピンポンピング, スピン偏極伝導電子を用いたスピン注入, スピンホール効果といったスピン流生成方法を紹介した. 2008 年, 内田等は, スピンゼーベック効果という新しいスピン流生成現象を発見した [1]. この現象では, 強磁性体中の熱エネルギーを駆動源として隣接する非磁性金属側にスピン流が注入される. 注入されたスピン流は非磁性金属中の逆スピンホール効果を通して電気信号に変換される. この一連の現象がスピンゼーベック効果であり, 磁性体を舞台とした新しい熱発電現象として非常に注目を集めている. 以降では, 最初にスピンゼーベック効果の最初の実験報告 [1] について簡潔に述べる.

1.3.1　強磁性金属におけるスピンゼーベック効果

2008 年, 内田等は, 強磁性金属のパーマロイと非磁性金属の Pt を接合した系を舞台に, スピンゼーベック効果という新しいスピン流生成現象を発見した. 彼らのアイデアは次の通りである. まず, 古くから知られているゼーベック効果とは, 異種金属 A, B で閉回路を構成し (熱電対), 両端に温度差を付けるとゼーベック係数の差 $S_A - S_B$ に比例した電圧が得られる現象である [図 1.6a]. この時, ゼーベック係数が金属毎のキャリア密度やキャリアの散乱頻度に依存する事を活用している. このゼーベック効果における異種金属 A, B の熱電対に対応して, スピン版の熱電対を構成できないかというのが彼らのアイデアである. 即ち, 2 流体モデルで見れば強磁性金属はアップスピンとダウンスピンで状態密度が大きく異なるため, まるでスピンの熱電対のように機能するのではないかということである [図 1.6b]. ゼーベック係数の観点で見れば, 強磁性金属を $S_\uparrow$ と $S_\downarrow$ で構成される熱電対と見なすのである. 従って, 温度差を付けることで一方のスピンが支配的に流れることになり, スピン角運動量の流れであるスピン流を生成できる. これは, スピン依存電気化学ポテンシャルの差であるスピン圧 $\mu_\uparrow - \mu_\downarrow$[式 (1.4)] が温度勾配によって形成されたために生じたと考えることができる.

実際の実験では, 温度勾配と垂直な方向に非磁性金属である Pt を塗布し, 生成されたスピン流を検出している [図 1.7]. 具体的には, 温度勾配で生成されたスピン流を Pt に流し込み, Pt 内の逆スピンホール効果 [式 (1.13)] を通してスピン流を電気信号として観測している. 図 1.8b,c は, パーマロイの長手方向に与えた温度差 ΔT に対する逆スピンホール効果 [式 (1.13)] の測定結果を示している. まず, b では低温側 [300K] に Pt が存在するように温度勾配を設定し, Pt 内の逆スピンホール電圧を測定している. 今の温度領域の場合, スピン流が温度差に対して線形応答の範囲にある事, 温度差が無ければスピン流が生成されない事が確認できる. 一方 c では, Pt を高温側

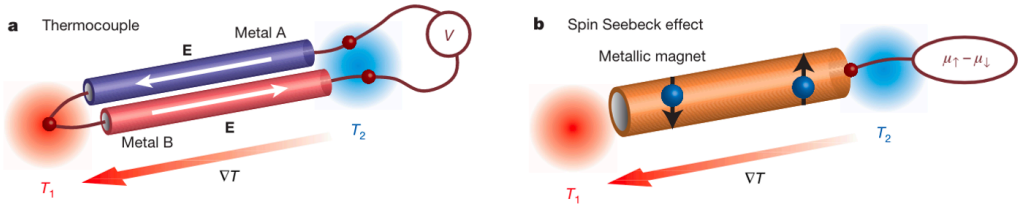

図 1.6　a: ゼーベック効果の概念図. b: スピンゼーベック効果の概念図. 図は文献 [1] より転載. Reproduced with permission from Springer Nature.

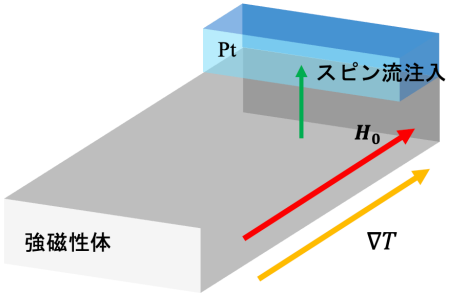

図 1.7　スピンゼーベック効果実験の概念図．$\boldsymbol{H}_0$ は磁化を揃えるための外部印加磁場である．

[300K+ΔT] なるよう温度勾配を設定している．この際, 逆スピンホール効果の電圧の符号は逆転している．これは, Pt 界面におけるスピン圧 $\mu_\uparrow - \mu_\downarrow$ の符号が逆転してスピン流も逆符号になったためと考えられていたが, 現在のマグノン描像ではマグノンスピン流 $I_{\mathrm{mag}} \propto \nabla T$ が温度勾配方向の反転によって符号を変えたためと解釈されている [4]．d では, Pt を塗布せずに強磁性体のみの場合で同方向の電圧を測定している．b, c と比較して有意な信号が観測されていないため, b,c の電気信号が Pt 内の逆スピンホール効果に由来することを裏付けている．スピンゼーベック効果が逆スピンホール効果で測定された事をより裏付けるため, 図 1.9e,f では様々な温度差 ΔT の下で逆スピンホール電圧の磁場依存性が測定されている．e は高温側に Pt, f は低温側に Pt が来るように設定されている．いずれも逆スピンホール電圧がパーマロイ磁化のヒステリシス (ヒステリシスは $-15\mathrm{Oe} < H < +15\mathrm{Oe}$ にある) を反映した振る舞いを示しており, 観測された電圧が強磁性体のスピン偏極方向 $\boldsymbol{\sigma}$[式 (1.13) 参照] を反映している事が裏付けられた．g は, Pt を塗布しない場合で e,f と同方向の電圧を測定した結果である．e,f に比べて有意な電気信号は得られていないため, e,f

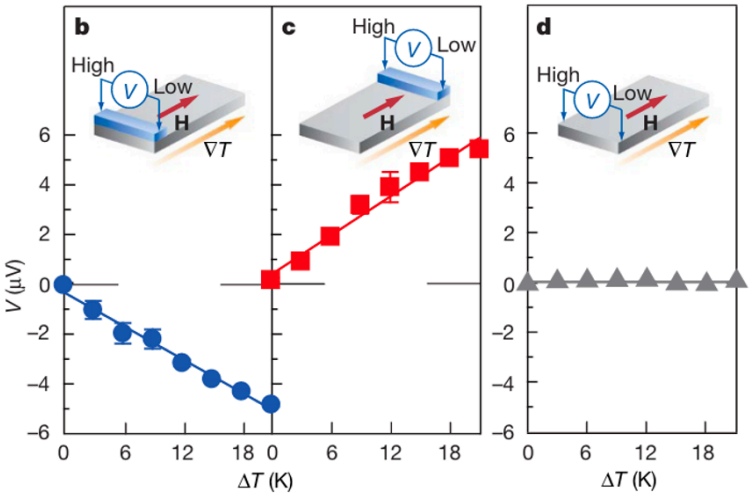

図 1.8　スピンゼーベック効果の温度差に対する応答．実験では, 強磁性金属のパーマロイ [膜圧 20nm, 長さ 6mm] の上に非磁性金属の Pt[膜圧 10nm] を塗布している．b,c: 強磁性体の両端の温度差 ΔT に対する逆スピンホール電圧の応答．b では低温側 [300K], c では高温側 [300K+ΔT] に Pt が存在するように温度勾配を与え, 逆スピンホール電圧を測定している．d: Pt を装着していない場合の電圧測定．パーマロイは 300K で 15Oe の保磁力を持つ軟質磁性体であるため, いずれも外部磁場 [100Oe] を温度勾配の方向に印加してドメインを揃えている．これにより, スピン偏極方向 $\boldsymbol{\sigma}$ も設定することができる [式 (1.13) 参照]．図は文献 [1] より転載．Reproduced with permission from Springer Nature.

で観測された電圧が Pt 内の逆スピンホール電圧を由来する事を裏付けている.

この実験事実によると, 強磁性金属のパーマロイ中を 6mm というマクロなスケールでスピン角運動量が伝搬している事になる. しかし, 実際には金属におけるスピン拡散長 (スピンが向きをを保持できる長さ) は高々 nm 程度である [21, 22]. 特にパーマロイの場合は 5nm 程度であるため [1], この実験における mm スケールという長距離スピン伝搬は伝導電子スピン流では説明できない [39]. そこで着目されたのが, マグノンである. マグノンは, 磁性体中の揺らぎを多数の局在スピンに分担することで低エネルギー励起状態を実現している. そのため, スピン角運動量の長距離輸送が期待できる. 実際, 図 1.3 に示したように, イットリウム鉄ガーネットというフェリ磁性絶縁体においてマグノンによる長距離スピン輸送が報告されている [24]. 従って, ここで紹介した内田等の実験では, マグノンが長距離に渡ってスピン角運動量を輸送したと考えられる.

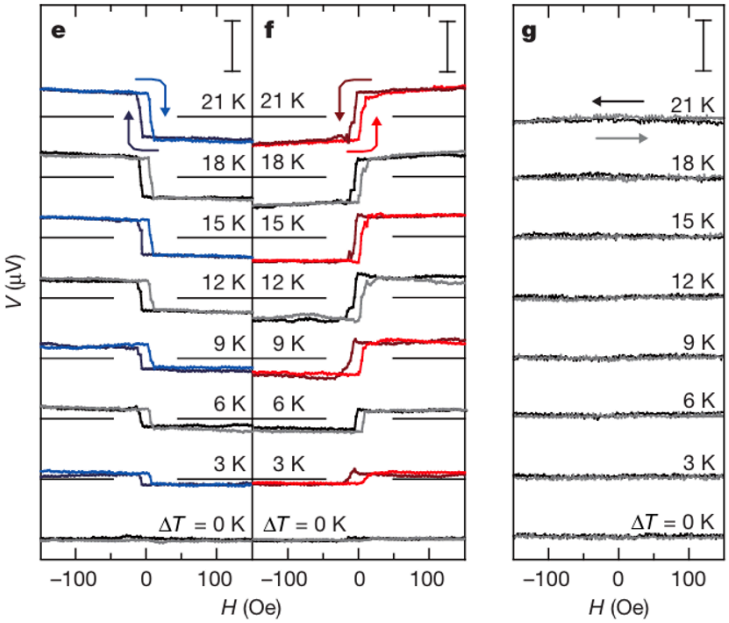

図 1.9　スピンゼーベック効果の磁場依存性の測定結果. e: Pt が低温側 (300K), f: Pt が高温側 ($300 + \Delta T[K]$) に位置する時の測定結果. g: Pt を塗布せずに電圧を測定した結果. 図は文献 [1] より転載. Reproduced with permission from Springer Nature.

1.3.2　磁性絶縁体におけるスピンゼーベック効果

2010 年, 内田等は $LaY_2Fe_5O_{12}$ というフェリ磁性絶縁体 (以降では簡単のために強磁性体として近似して議論する事にする) を用いたスピンゼーベック効果の観測を報告した [3]. 絶縁体では伝導電子は存在しないため, マグノンによってスピンゼーベック効果が駆動された事を示した重要な実験結果である.

彼らは, 図 1.10a に示すように $LaY_2Fe_5O_{12}$ の上に Pt を塗布し, 図 1.7 と同様のセットアップでスピンゼーベック効果の実験を行った. この際, 強磁性金属ではなく, 強磁性絶縁体を用いている事が重要である. a の場合, Pt 間の距離は 6mm 程度である. まず, 温度差に対するスピンゼーベック効果の応答が図 1.10b,c に示されている. 前節で紹介したパーマロイと Pt の接合系と同様に, 今の温度領域ではスピンゼーベック効果は温度差に対して線形応答であることが確認できる. 次に, スピンゼーベック効果の磁場依存性が図 1.10d,e に示されている. スピンゼーベック効果が, 磁化 [図 1.11f] を反映した振る舞いをしている事が確認できる. 次に, 図 1.11g は, 磁場方向を変えた時のスピンゼーベック効果の磁場依存性を測定している. $\theta = 90°$ では, 式 (1.13) により温度勾配方向に電圧が発生する. 従って, 図の方向の電圧測定ではスピンゼーベック効果は観測されない. 図 1.11h では, Pt を Cu に置換してスピンゼーベック効果を測定している. Cu は Pt に比べてスピン軌道相互作用が弱いため, 逆スピンホール角 θ_{SH} が小さくなる [式 (1.13)]. 従って, 観測される逆スピンホール電圧は Pt に比べて小さくなる. 図 1.11i は, $LaY_2Fe_5O_{12}$ を等温にして逆スピンホール電圧の測定した結果である. この場合, スピンゼーベック効果は観測されていないため, 図 1.10d,e が温度勾配を駆動源として発生した逆スピンホール電圧である事を裏付けている.

温度勾配方向の長さは mm スケールであるため, この実験結果は磁性絶縁体における長距離スピン伝導を示している. 絶縁体ではもはや伝導電子によるスピン流は存在しないため, マグノンがスピンキャリアの役割を果たしている事を裏付けた重要な実験である. 現在では, 理論的にもマグノン駆動のスピンゼーベック効果によってこれらの実験結果が説明されている [40].

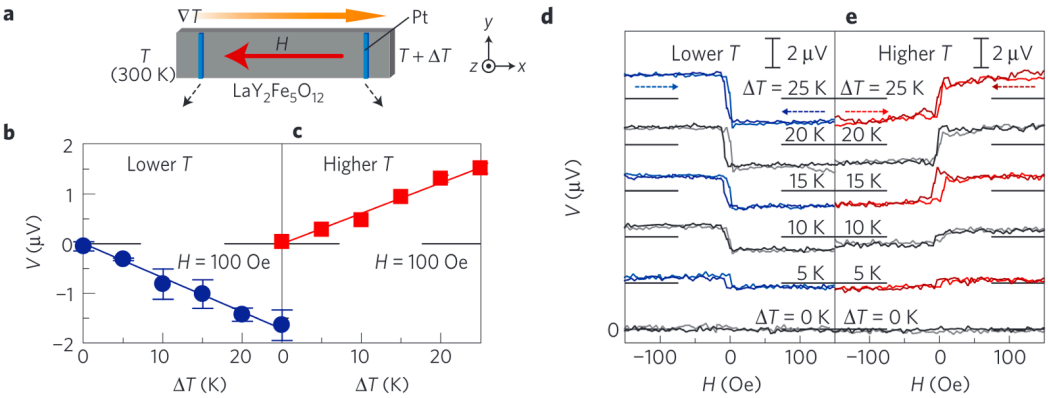

図 1.10　a: スピンゼーベック効果の実験セットアップ. b,c: スピンゼーベック効果の温度差応答. b(c) は低温 (高温) 側における Pt の逆スピンホール電圧を測定している. d,e: スピンゼーベック効果の磁場依存性. d(e) は低温 (高温) 側における Pt の逆スピンホール電圧を測定している. 低温側が 300K, 高温側が $300K + \Delta T$ に設定されている. 図は文献 [3] より転載. Reproduced with permission from Springer Nature.

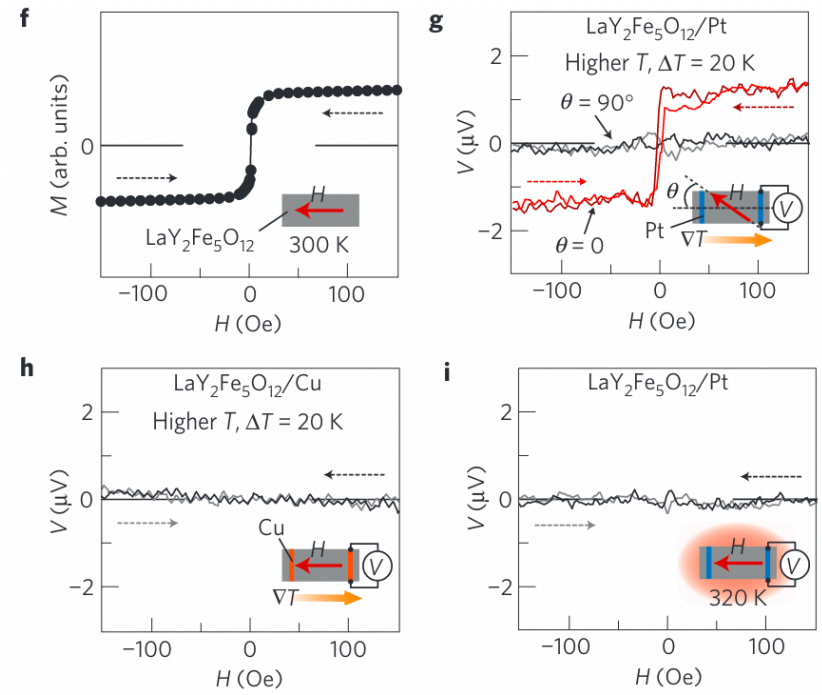

図 1.11　f: $LaY_2Fe_5O_{12}$ における磁化の磁場依存性．g: 磁場方向を変えた時のスピンゼーベック効果の磁場依存性．$\theta = 90^\circ$ の時には，式 (1.13) により温度勾配方向に電圧が発生する．従って，図の方向の電圧測定ではスピンゼーベック効果は観測されない．h: $LaY_2Fe_5O_{12}$/Cu におけるスピンゼーベック効果の磁場依存性．Cu は Pt よりもスピン軌道相互作用が弱いため，Pt 内の逆スピンホール電圧が小さくなる．i: $LaY_2Fe_5O_{12}$/Pt において，等温環境にした時のスピンゼーベック効果の測定結果．温度勾配が無いため，逆スピンホール電圧は観測されない．図は文献 [3] より転載．Reproduced with permission from Springer Nature.

1.3.3　縦型スピンゼーベック効果の発見

1.3.2 と 1.3.1 では，非磁性金属に注入されるスピン流の流れる方向と温度勾配の方向が垂直となる ($\boldsymbol{J}_s \perp \boldsymbol{\nabla} T$)，いわゆる横型スピンゼーベック効果を紹介してきた．2010 年，内田等は，スピン流の流れる方向と温度勾配が平行な場合 ($\boldsymbol{J}_s \parallel \boldsymbol{\nabla} T$) のスピンゼーベック効果，いわゆる縦型スピンゼーベック効果を発見した [42]．縦型スピンゼーベック効果においても，温度差が無いときには逆スピンホール電圧が生じないことを報告している．

横型スピンゼーベック効果よりもセットアップが簡易で応用しやすいため，この発見以降，主に縦型スピンゼーベック効果が研究されるようになった．そのため，現在ではスピンゼーベック効果というと縦型スピンゼーベック効果を指す事が多い．本研究でも，特に誤解を招かない限り縦型スピンゼーベック効果を単にスピンゼーベック効果と呼ぶことにする．

最後に，スピンゼーベック効果における他の電気信号の重畳について述べる．スピンゼーベック効果では，磁性体内部の異常ネルンスト効果 $\boldsymbol{V}_{\mathrm{ANE}} \propto \boldsymbol{M} \times \boldsymbol{\nabla} T$[$\boldsymbol{M}$ は自発磁化] が逆スピンホール電圧に影響する事が知られている．しかし，最近では主に磁性絶縁体がスピン注入源として用いられるため，少なくとも磁性体内部の異常ネルンスト効果は回避できる．一方，磁性体に隣接する非磁性金属においてもこの効果が重畳する可能性がある．なぜなら，界面の交換結合によって非磁性金属に大きな磁化が発生する恐れがあるからである．例えば，スピン流の検出物質としてよく用い

られる Pt は帯磁率が大きいので [41], 異常ネルンスト効果の重畳について常に注意を払うべきである.

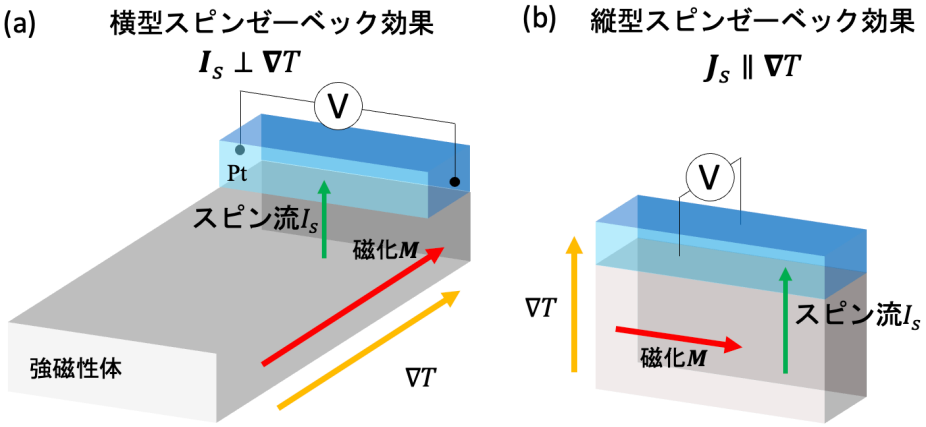

図 1.12　(a): 横型スピンゼーベック効果の概念図. 非磁性金属に流れるスピン流の方向と温度勾配方向が垂直である. (b): 縦型スピンゼーベック効果の概念図. スピン流の流れる方向と温度勾配の方向が平行である. 図中の V は逆スピンホール効果によって発生した電圧を意味する.

1.4　反強磁性スピントロニクスへの展開

磁性体のスピン間交換相互作用を記述するハイゼンベルク・ハミルトニアンは回転対称性を持っているが, 現実の磁性体は異方性などの影響でこの対称性は破れている. 例えば強磁性体においてはこの回転対称性の破れによって自発磁化が生じるため, これを活用することで磁気抵抗効果 [12], 異常ホール効果 [43], エネルギーアシスト磁気記録 [44, 45], マグノンによる長距離スピン輸送 [24] など学理的に多彩なフィールドが展開されてきた. 生活の面では, 強磁性体の保磁力を活用することで永久磁石や電子レンジにおけるマグネトロン, データ記録デバイスのハードディスクドライブなどが作られて来たため, 強磁性体が我々の生活を支えてきた事は明らかである.

一方, 反強磁性体も強磁性体と同様にスピン空間の回転対称性を破っているが, ゼロ磁場ではマクロな磁化が存在しないため応用の観点では着目されてこなかった. しかし, 1956 年に発見された交換バイアスがスピンバルブとしての付加価値を得ると [14], 1998 年には反強磁性体はハードディスクの磁気読み取りヘッドに応用された. それ以来, 反強磁性体を用いた研究が盛んに行われている [46, 47, 48]. その例として, 最近では反強磁性体中のスピン輸送現象 [49, 50, 51, 52], Néel スピン軌道トルク [53, 54] やスピンホールスピン軌道トルク [55, 56, 57] を用いたネールベクトルのスイッチングが実験報告されており, 反強磁性体のデバイスへの親和性は一層増してきている. 従って, デバイスへの応用を下支えするためにも反強磁性スピンダイナミクスや反強磁性体を用いたスピン伝導の物理を理論的に研究する必要がある.

本研究では, この反強磁性スピントロニクスの潮流の中でもスピンゼーベック効果の観点からスピン伝導の物理を研究する. 具体的には, 『ネール温度近傍における反強磁性スピンゼーベック効果』, 『スピンフロップ転移を伴う反強磁性スピンゼーベック効果の符号反転現象』の 2 点について理論的に研究する. この研究は, スピン注入の逆過程であるスピントランスファートルクやスピントルク振動子を用いたデバイス作製に向けて理論的な指針を提示できる.

1.5　研究背景

本研究では, ギンツブルグ・ランダウ模型に基づき, **(i)** スピンフロップ磁場よりも十分低磁場下の反強磁性スピンゼーベック効果, **(ii)** スピンフロップ転移を伴う反強磁性スピンゼーベック効果の符号反転現象, を理論的に研究する. 以下では, それぞれの研究背景を順に述べる.

1.5.1　(i) スピンフロップ磁場より十分低磁場下の反強磁性スピンゼーベック効果

2019 年, Li 等は一軸異方性の反強磁性絶縁体 FeF_2 において十分低磁場下の反強磁性スピンゼーベック効果の温度依存性を測定し, スピンゼーベック効果がネール温度にピーク構造を持つ事を報告した [図 1.13]. 一方, これまでの反強磁性スピンゼーベック効果の理論研究は, 低温領域で正当化される Holstein-Primakoff 理論に立脚しているため [58, 61], ネール温度近傍の振る舞いを議論する事ができない. そこで本研究では, ネール温度近傍で有効なギンツブルグ・ランダウ模型に基づき, 十分低磁場下の反強磁性スピンゼーベック効果を理論的に研究する. 本研究により, ネール温度近傍を議論できる反強磁性スピンゼーベック効果の理論が初めて開拓される.

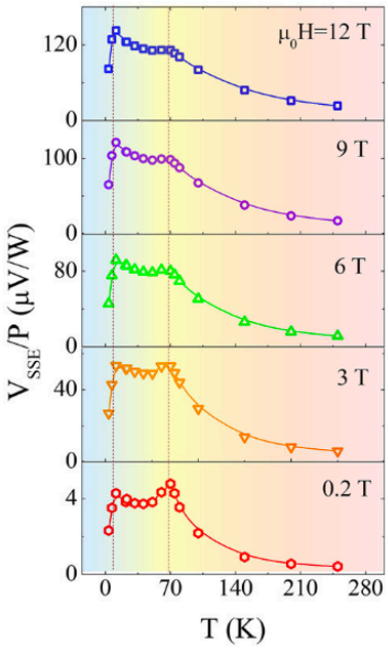

図 1.13　一軸異方性の反強磁性絶縁体 FeF_2(スピンフロップ磁場は 40T) を用いた反強磁性スピンゼーベック効果の温度依存性 [5]. ネール温度 $T_N = 70$K にピーク構造が現れている. Reprinted with permission from Ref [5]. Copyright (2019) by the American Physical Society.

1.5.2 (ii) スピンフロップ転移を伴う反強磁性スピンゼーベック効果の符号反転現象

スピンフロップ転移とは, 反強磁性体において強い磁場を印加した際に起こる一次相転移である. 具体的には, 一軸異方性エネルギーによるエネルギー利得がゼーマンエネルギーによるエネルギー利得を上回った時, スピンが補償した状態からスピンが傾いた状態に変化する相転移である. より詳しくは付録 A に与えているため, 適宜参照されたい.

スピンフロップ転移を跨いだ反強磁性スピンゼーベック効果の実験

2020 年, Li 等は, 一軸異方性を持つ反強磁性絶縁体 Cr_2O_3 においてスピンフロップ転移を跨いで反強磁性スピンゼーベック効果の測定を行った [6]. その結果をまとめると以下のようになる.

(1) 電極が Ta[図 1.14a]: スピンフロップ転移を跨いだ際にスピンゼーベック効果の符号が反転する [図 1.14c].
(2) 電極が Pt[図 1.14b]: 低温においては Ta の場合と同様の符号反転現象が見られたが, Cr_2O_3 のネール温度近傍まで温度を上昇させるとこの符号反転現象は消失している [図 1.14d].
(3) 界面処理を行うと, 反強磁性スピンゼーベック効果の符号反転現象が消失する [図 1.15]. この結果は, 界面の情報が符号反転現象において重要であることを示唆している.

この符号反転現象は, Yuan 等による α-Fe_2O_3(電極は Pt) を用いた実験でも観測されている [65]. 一方, 2015 年に関等によって行われた Cr_2O_3/Pt 系の反強磁性スピンゼーベック効果の実験では, そのような符号反転現象は観測されていない [66]. また, 2016 年に Wu 等によって一軸異方性の反強磁性絶縁体 MnF_2(電極は Pt) を用いた実験が行われたが, 反強磁性スピンゼーベック効果の符号反転現象は観測されていない [67].

以上の実験報告から, 「反強磁性スピンゼーベック効果における符号反転現象の有無が, 反強磁性体に普遍的に存在する現象であるか否か」という問題が提起される.

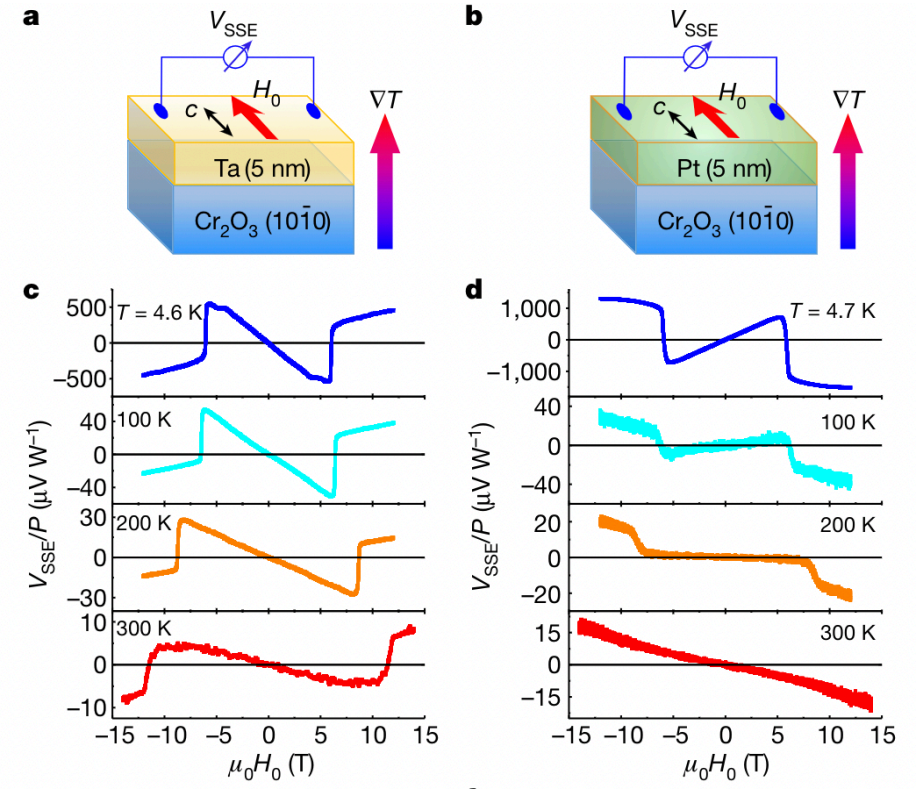

図 1.14　a: Cr_2O_3/Ta における実験概念図．b: Cr_2O_3/Pt における実験概念図．c: Cr_2O_3/Ta における反強磁性スピンゼーベック効果の磁場依存性．d: Cr_2O_3/Pt における反強磁性スピンゼーベック効果の磁場依存性．c,d ではネール温度 (およそ 308K) 近傍まで測定されている．電圧の符号が c,d で異なっているのは, Pt と Ta が逆符号のスピンホール角を持つためである [1.2.3 参照]．図は [6] から転載．Reproduced with permission from Springer Nature.

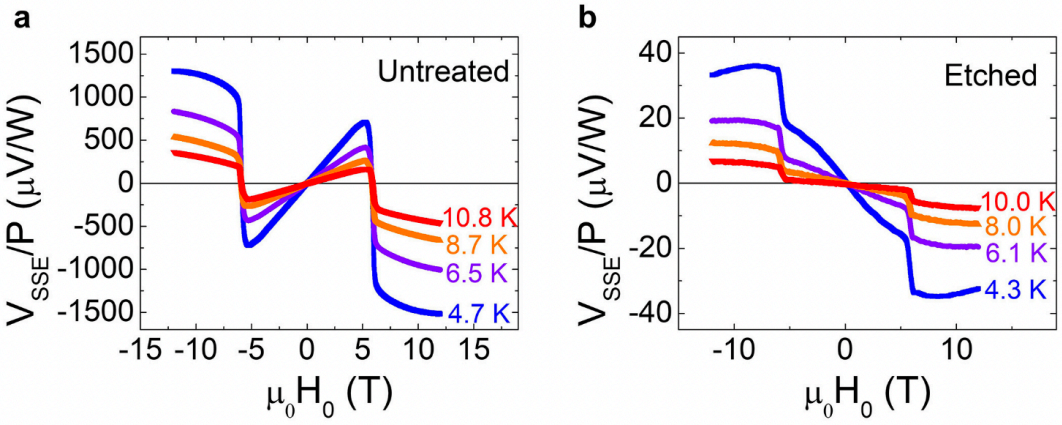

図 1.15　a: 界面処理をしなかった場合 (untreated) の Cr_2O_3/Pt におけるスピンゼーベック効果の測定結果．b: 界面処理した場合 (etched) の Cr_2O_3/Pt におけるスピンゼーベック効果の測定結果．untreated: 600 度の炉の中で 2 時間アニール処理した後, Pt を塗布している．etched: プラズマ中のアルゴンイオンを Cr_2O_3 に衝突させ, 600 度の炉の中で 2 時間アニール処理している．その後, Pt を塗布している．図は文献 [6] から転載．Reproduced with permission from Springer Nature.

反強磁性体のダイナミクスのみに着目した先行理論研究

先述した Li 等による反強磁性スピンゼーベック効果の符号反転現象の観測 [6] を受けて, カリフォルニア大学の Reitz 等は, 反強磁性スピン波を記述するオイラー・ラグランジュ方程式を用いた理論研究を行った. その際, 反強磁性体/電極における界面のスピンコンダクタンス (界面におけるスピン流の伝わりやすさ) G_n, G_m を用いて次の 2 種類のスピン流を評価している:

$$J_z^{(n)} = G_n \left\langle \left(\boldsymbol{n} \times \frac{\partial \boldsymbol{n}}{\partial t} \right) \cdot \hat{\boldsymbol{z}} \right\rangle, \quad J_z^{(m)} = G_n \left\langle \left(\boldsymbol{m} \times \frac{\partial \boldsymbol{m}}{\partial t} \right) \cdot \hat{\boldsymbol{z}} \right\rangle \tag{1.14}$$

ここで, $\boldsymbol{n}, \boldsymbol{m}$ はぞれぞれ反強磁性体のネールベクトルと正味の磁化ベクトルを表している. $J_z^{(n)}, J_z^{(m)}$ はこれらのスピン自由度から生成されるスピン流である. 以下に彼らの研究結果をまとめる.

(1) スピンフロップ転移磁場より低磁場側 (反強磁性相): $J_z^{(m)} \propto (K_0\chi)^2 J_z^{(n)}$ であるため, 反強磁性相では Néel spin current が支配的である. ここで, K_0, χ はぞれぞれ一軸異方性定数と反強磁性スピン帯磁率である ($K_0\chi \ll 1$). この際, 反強磁性相に存在する β マグノンの方が低エネルギーのため, β マグノン数の方が多数である [図 1.16]. 従って, スピン流の符号は正である.

(2) スピンフロップ転移磁場より高磁場側 (スピンフロップ相): $\langle \boldsymbol{m} \times \partial_t \boldsymbol{m} \rangle_z \sim \langle \boldsymbol{n} \times \partial_t \boldsymbol{n} \rangle_z$ であるが, $G_m \gg G_n$ であるから, magnetic spin current が支配的である. この際, スピンフロップ相には負のスピン角運動量を運ぶ QFMR(Quasi-Ferromagnetic-Resonance-Mode) モードのみ存在するため [図 1.16], スピン流の符号は負となる.

以上の (1), (2) より, Retiz 等の理論によれば常に符号反転現象が存在するという結果が得られる. 従って, Li 等による界面処理後の Cr_2O_3[6] や, Wu 等による MnF_2 を用いた実験 [67], そして関等による Cr_2O_3 を用いた実験 [66] において符号反転現象が存在しない理由を説明できない. 即ち, Reitz 等の理論では反強磁性体における符号反転現象の有無を普遍的に説明することができない.

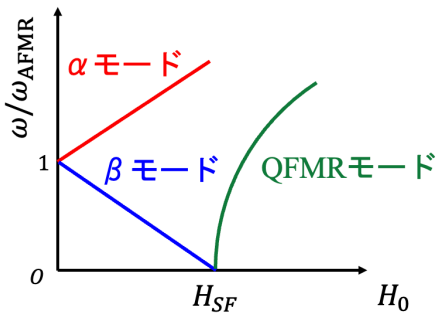

図 1.16　反強磁性体におけるマグノン周波数の磁場依存性の概念図. 反強磁性相では α, β の 2 つのマグノン, スピンフロップ相では QFMR(Quasi-Ferromagnetic-resonance) モードのマグノンが存在.

1.6 研究目的

研究背景として, これまでに以下の 2 つの実験事実を紹介した.

(i) Li 等による FeF_2 を用いた実験 [5] によると, 十分低磁場下における反強磁性スピンゼーベック効果の温度依存性はネール温度にピーク構造を持つ,

(ii) Li 等による Cr_2O_3 を用いた実験 [6] によると, スピンフロップ転移に伴って反強磁性スピンゼーベック効果の符号が反転するが, 界面状態を変化させると符号反転は消失する.

本研究の目的は, 一見異なる上記 2 つの実験事実を統一的に理解することにある. その目的のため, 本研究では, 上記 2 つの実験がともに相転移に関連している点に着目し, 相転移現象の記述に有効なギンツブルグ・ランダウ模型を出発点とする. しかし, 良く知られている静的なギンツブルグ・ランダウ模型では, スピン歳差による動的なスピン注入現象であるスピンゼーベック効果を記述することができない. そこで本研究では, ギンツブルグ・ランダウ模型の動的拡張版である時間依存ギンツブルグ・ランダウ方程式に基づき, 相転移点近傍での反強磁性スピンゼーベック効果の理論解析を行う.

第 2 章

モデルと定式化

スピンゼーベック効果は, 磁性体と非磁性金属の接合系に与えた温度差からスピン流が生成される現象である. この際, 磁性体/非磁性金属の間で働く界面交換結合を介してスピンが輸送されるため, 接合系のスピンダイナミクスを直接解くことでスピン流を評価する必要がある. この接合系を考えることで, 界面状態がスピン流の振る舞いに及ぼす影響を調査できる.

以上を考慮し, これから考える反強磁性スピンゼーベック効果のモデルは反強磁性絶縁体 (AFI) と非磁性金属 (M) の接合系とする [図 2.1]. 左図は反強磁性相, 右図はスピンフロップ相における反強磁性スピンゼーベック効果の概念図である. 非磁性金属スピンと反強磁性スピンが界面の交換結合 J_{sd} を介して互いに引きずり合ったブラウン運動をすることで, 反強磁性体で励起された熱マグノンのスピン角運動量が非磁性金属に輸送される. この際, 温度差 ΔT を与えれば非磁性金属で観測されるスピン流は有限となる事が期待できる.

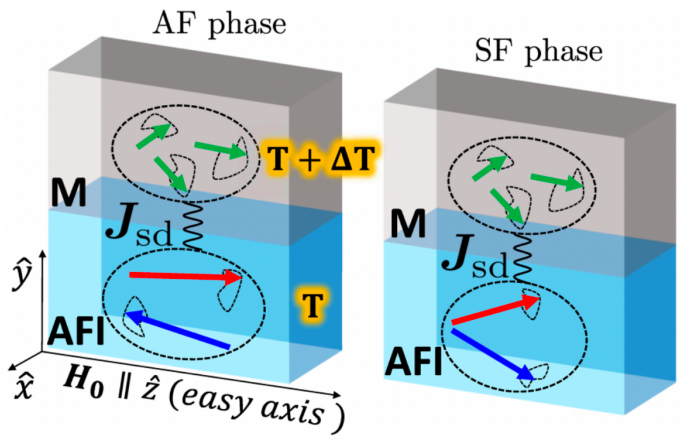

図 2.1　本研究で考える反強磁性スピンゼーベック効果の概念図. 左図は反強磁性相, 右図はスピンフロップ相における反強磁性スピンゼーベック効果の概念図である. 赤 (青) 色の矢印は反強磁性体 (AFI) の副格子のスピン. 緑色の矢印は非磁性金属 (M) における電子スピンを表す. 反強磁性体で熱マグノンが励起され, 界面交換結合 J_{sd} を通してスピンが輸送される. Reprinted with permission from Ref [68]. Copyright (2022) by the American Physical Society.

2.1 モデル

反強磁性スピン波の熱励起 (反強磁性スピンのブラウン運動) を記述する方程式として, 式 (2.1), 式 (2.2) の時間依存ギンツブルグ・ランダウ方程式 [69, 68, 70, 71] を採用する. この方程式は, 森等によって導かれた一般化 Langevin 方程式 [72] に対し, 変数を反強磁性体のネールベクトルと磁化ベクトルに特定する事で導かれる [70]. その際, 相転移近傍では熱揺らぎに比べてスピンの緩やかな運動が起きる事に留意し, 緩和項に含まれる記憶項がマルコフ近似されている. 一方, 非磁性金属側の電子スピンが従う運動方程式には, Bloch 方程式 [4, 73, 69, 68] を採用する [これも時間依存ギンツブルグ・ランダウ方程から導くことができる]. 以下ではこれらを順に説明したい.

(1) 反強磁性絶縁体 (AFI): 反強磁性スピン波を記述する時間依存ギンツブルグ・ランダウ方程式

$$\frac{\partial}{\partial t}\boldsymbol{m} = \gamma \boldsymbol{H}_m \times \boldsymbol{m} + \gamma \boldsymbol{H}_n \times \boldsymbol{n} + \Gamma_m \boldsymbol{H}_m + \boldsymbol{\xi}(t) \tag{2.1}$$

$$\frac{\partial}{\partial t}\boldsymbol{n} = \gamma \boldsymbol{H}_n \times \boldsymbol{m} + \gamma \boldsymbol{H}_m \times \boldsymbol{n} + \Gamma_n \boldsymbol{H}_n + \boldsymbol{\eta}(t) \tag{2.2}$$

ここで, $\boldsymbol{m}, \boldsymbol{n}$ はそれぞれ磁化ベクトルとネールベクトルである. 敢えて反強磁性体の副格子 A 及び B の古典スピンで書けば $\boldsymbol{m} = (\boldsymbol{S}_{\mathrm{A}} + \boldsymbol{S}_{\mathrm{B}})/2$, $\boldsymbol{n} = (\boldsymbol{S}_{\mathrm{A}} - \boldsymbol{S}_{\mathrm{B}})/2$ であるが, ギンツブルグ・ランダウ模型では原子半径の物理ではなく, セミマクロなスケール内でスピンを粗視化して得られる代表スピンを取り扱う. 従って, その粗視化空間内で反強磁性体の秩序を定義するためにはネール秩序 $\boldsymbol{n}$ を導入して自由エネルギーを展開すると見通しが良い. γ は磁気回転比, Γ_m, Γ_n はスピン波の緩和を記述するスピン緩和率である. $\boldsymbol{H}_m, \boldsymbol{H}_n$ は自由エネルギーから計算される有効磁場であり, 次式で定義される:

$$\boldsymbol{H}_m = -\frac{1}{\gamma\hbar}\frac{\delta}{\delta \boldsymbol{m}}\big(F_{\mathrm{AFI}} + F_{\mathrm{AFI\text{-}M}}\big),\ \boldsymbol{H}_n = -\frac{1}{\gamma\hbar}\frac{\delta}{\delta \boldsymbol{n}}\big(F_{\mathrm{AFI}} + F_{\mathrm{AFI\text{-}M}}\big) \tag{2.3}$$

この式中の界面交換結合エネルギー $F_{\mathrm{AFI\text{-}M}}$ は次節で与える. ギンツブルグ・ランダウの自由エネルギー F_{AFI} は反強磁性体のネール秩序 $\boldsymbol{n}$ と磁化ベクトル $\boldsymbol{m}$ を用いて次式で展開される [81]：

$$\begin{aligned} F_{\mathrm{AFI}} = \epsilon_0 v_0 \Bigg\{ & \frac{u_2}{2}\boldsymbol{n}^2 + \frac{u_4}{4}(\boldsymbol{n}^2)^2 + \frac{K_0}{2}(\boldsymbol{n}\times\hat{\boldsymbol{z}})^2 + \frac{K_1}{2}(\boldsymbol{n}\cdot\hat{\boldsymbol{x}})^2 \\ & + \frac{D}{2}(\boldsymbol{n}\cdot\boldsymbol{m})^2 + \frac{D'}{2}\boldsymbol{m}^2\boldsymbol{n}^2 + \frac{r_0}{2}\boldsymbol{m}^2 - \frac{\boldsymbol{H}_0}{\mathfrak{h}_0}\cdot\boldsymbol{m} \Bigg\} \end{aligned} \tag{2.4}$$

ここで, $\epsilon_0[\mathrm{J/m^3}]$ は反強磁性体の磁気エネルギー密度, $v_0[\mathrm{m^3}]$ は粗視化空間の体積, $u_2 = (T - T_{\mathrm{N}})/T_{\mathrm{N}}$ はネール温度からの温度のずれ, u_4 は正定数, K_0 は一軸異方性定数 (反強磁性体の量子化軸を決定. 今の場合, 界面に平行な z 方向), K_1 はスピンフロップ相におけるネール秩序を安定化させる面内異方性定数, D の項はスピンフロップ転移に伴って反強磁性体の秩序方向を回転させる効果を記述, D' は反強磁性体の平衡スピン帯磁率の振る舞いを表現するために必要な項, $r_0^{-1} = A/(T+\Theta)$ は常磁性状態におけるキュリーワイス則, $\boldsymbol{H}_0 = H_0\hat{\boldsymbol{z}}[\mathrm{T}]$ は一軸異方性の方向 (容易軸) に印加される磁場, $\mathfrak{h}_0 := \epsilon_0 v_0/(\gamma\hbar)[\mathrm{T}]$ は粗視化空間において定義される磁場の単位である.

上記の自由エネルギーは, 反強磁性体の副格子の等価性 (つまり, 自由エネルギーが $\boldsymbol{n} \leftrightarrow -\boldsymbol{n}$ の変換によって不変であること) を仮定して展開している [この自由エネルギーはイジングモデルに

対する平均場近似から導出できる．E を参照されたい.]．そのため $\boldsymbol{n}$ に関する展開は偶数冪であり, 一次の項は存在しない．仮に副格子の非等価性故にこの一次の項が存在すれば, それはフェリ磁性体の最も簡易なモデルになると考えられる．対応する自由エネルギーを $-K\boldsymbol{n}\cdot\boldsymbol{m}$ と書けば, $K\to 0$ の極限で副格子の等価性が回復し, フェリ磁性体は自然に two 副格子が等価な反強磁性体へと移り変わるだろう．

式 (2.2) と式 (2.1) における最後の項 $\boldsymbol{\xi}(t), \boldsymbol{\eta}(t)$ は, それぞれ磁化ベクトルとネールベクトルの感じる熱ノイズであり, ガウス分布に従うとする:

$$\langle \xi^i(t)\rangle = 0, \quad \langle \xi^i(t)\xi^j(t')\rangle = \frac{2k_B T\Gamma_m}{\epsilon_0 v_0}\delta_{i,j}\delta(t-t') \tag{2.5}$$

$$\langle \eta^i(t)\rangle = 0, \quad \langle \eta^i(t)\eta^j(t')\rangle = \frac{2k_B T\Gamma_n}{\epsilon_0 v_0}\delta_{i,j}\delta(t-t') \tag{2.6}$$

i, j は x, y, z を表し, $\delta_{i,j}$ は $i=j$ の時のみ 1 を返し, それ以外は 0 を返す.

(2) 非磁性金属 (M): 伝導電子スピンのブラウン運動を記述する Bloch 方程式

$$\frac{\partial}{\partial t}\boldsymbol{s} = \gamma \boldsymbol{H}_s \times \boldsymbol{s} + \frac{\chi_{\mathrm{M}}\gamma\hbar}{\tau_{\mathrm{M}}}\boldsymbol{H}_s + \boldsymbol{\zeta}(t) \tag{2.7}$$

ここで, τ_{M} はスピン緩和時間を表しており, Pt や Ta においては温度依存性はほとんど無いため定数とする [74]．H_s は

$$\boldsymbol{H}_s = -\frac{1}{\gamma\hbar}\frac{\delta}{\delta \boldsymbol{s}}(F_{\mathrm{M}} + F_{\text{AFI-M}}) \tag{2.8}$$

で定義される有効磁場である．非磁性金属の自由エネルギー F_{M} はスピン帯磁率 χ_{M} を用いて次式で与えられる:

$$F_{\mathrm{M}} = \frac{1}{2\chi_{\mathrm{M}}}\boldsymbol{s}^2$$

ただし, その温度依存性は無視して定数とする．実際, 電極としてよく用いられる Pt ではその温度依存性は無視できる [75]．式 (2.7) の最後の項 $\boldsymbol{\zeta}(t)$ は熱白色ノイズであり, 次のガウス分布に従う:

$$\langle \zeta^i(t)\rangle = 0, \quad \langle \zeta^i(t)\zeta^j(t')\rangle = \frac{2k_B(T+\Delta T)\chi_M}{\tau_M}\delta_{i,j}\delta(t-t') \tag{2.9}$$

次に, 後のシミュレーションのために方程式の差分化を行う．まずは方程式を無次元化しておこう．スピンの運動に関する物理量のうち, 最もタイムスケールが短いのは非磁性金属のスピン緩和時間 τ_{M} である．従って, $\widetilde{t} = t/\tau_{\mathrm{M}}$ を導入して時間を無次元化するのが良い．式 (2.2), 式 (2.1), 式 (2.7) に τ_{M} を掛けると次式を得る:

$$\frac{\partial}{\partial \widetilde{t}}\boldsymbol{m} = \widetilde{\omega}_0\widetilde{\boldsymbol{H}}_m \times \boldsymbol{m} + \widetilde{\omega}_0\widetilde{\boldsymbol{H}}_n \times \boldsymbol{n} + \widetilde{\Gamma}_m\widetilde{\boldsymbol{H}}_m + \widetilde{\boldsymbol{\xi}}(\widetilde{t}) \tag{2.10}$$

$$\frac{\partial}{\partial \widetilde{t}}\boldsymbol{n} = \widetilde{\omega}_0\widetilde{\boldsymbol{H}}_n \times \boldsymbol{m} + \widetilde{\omega}_0\widetilde{\boldsymbol{H}}_m \times \boldsymbol{n} + \widetilde{\Gamma}_n\widetilde{\boldsymbol{H}}_n + \widetilde{\boldsymbol{\eta}}(\widetilde{t}) \tag{2.11}$$

$$\frac{\partial}{\partial \widetilde{t}}\boldsymbol{s} = \widetilde{\omega}_0\widetilde{\boldsymbol{H}}_s \times \boldsymbol{s} + \widetilde{\chi}_M\widetilde{\boldsymbol{H}}_s + \widetilde{\boldsymbol{\zeta}}(\widetilde{t}) \tag{2.12}$$

ここで, $\widetilde{\omega}_0 = \gamma\mathfrak{h}_0\tau_M$, $\widetilde{\boldsymbol{H}}_m = \boldsymbol{H}_m/\mathfrak{h}_0$, $\widetilde{\boldsymbol{H}}_n = \boldsymbol{H}_n/\mathfrak{h}_0$, $\widetilde{\boldsymbol{H}}_s = \boldsymbol{H}_s/\mathfrak{h}_0$, $\widetilde{\Gamma}_m = \Gamma_m\tau_M$, $\widetilde{\Gamma}_n = \Gamma_n\tau_M$, $\widetilde{\chi}_M = \chi_M\epsilon_0 v_0$ を定義した．$\widetilde{J}_{\mathrm{sd}} = J_{\mathrm{sd}}\tau_{\mathrm{M}}/\hbar$ は無次元化された界面交換結合であり, 式中で自然に定義される.

無次元化された熱白色ノイズ $\widetilde{\boldsymbol{\xi}} = \boldsymbol{\xi}\tau_M$, $\widetilde{\boldsymbol{\eta}} = \boldsymbol{\eta}\tau_M$, $\widetilde{\boldsymbol{\zeta}} = \boldsymbol{\zeta}\tau_M$ は, 次の形となる.

$$\left\langle \widetilde{\xi}^i(\widetilde{t}) \right\rangle = \left\langle \widetilde{\eta}^i(\widetilde{t}) \right\rangle = \left\langle \widetilde{\zeta}^i(\widetilde{t}) \right\rangle = 0 \tag{2.13}$$

$$\left\langle \widetilde{\xi}^i(\widetilde{t})\widetilde{\xi}^j(\widetilde{t}') \right\rangle = \widetilde{W}_\xi \widetilde{T}\delta(\widetilde{t}-\widetilde{t}')\delta_{i,j} \tag{2.14}$$

$$\left\langle \widetilde{\eta}^i(\widetilde{t})\widetilde{\eta}^j(\widetilde{t}') \right\rangle = \widetilde{W}_\eta \widetilde{T}\delta(\widetilde{t}-\widetilde{t}')\delta_{i,j} \tag{2.15}$$

$$\left\langle \widetilde{\zeta}^i(\widetilde{t})\widetilde{\zeta}^j(\widetilde{t}') \right\rangle = \widetilde{W}_\zeta (\widetilde{T}+\widetilde{\Delta T})\delta(\widetilde{t}-\widetilde{t}')\delta_{i,j} \tag{2.16}$$

ここで, $\widetilde{W}_\xi = 2\widetilde{\Gamma}_m k_B T_{\mathrm{N}}/(\epsilon_0 v_0)$, $\widetilde{W}_\eta = 2\widetilde{\Gamma}_n k_B T_N/(\epsilon_0 v_0)$, $\widetilde{W}_\zeta = 2\widetilde{\chi}_M k_B T_{\mathrm{N}}/(\epsilon_0 v_0)$ であり, $\widetilde{T} = T/T_N$, $\widetilde{\Delta T} = \Delta T/T_{\mathrm{N}}$ である. i, j は x, y, z のいずれかを意味する.

以上で無次元化した方程式を数値的にシミュレートするためには, 方程式を差分化する必要がある. そのために, まず無次元化された時間を $\widetilde{t}_p = p\Delta\widetilde{t}$ のように差分化し [76], 1step で $\Delta\widetilde{t}$ だけ時間発展するとする. 次に, Heun 法を用いて式 (2.10), 式 (2.11), 式 (2.12) を $\widetilde{t}_p$, $\widetilde{t}_{p+1}$ の間で積分する [77]. この際, ノイズは $\widehat{\boldsymbol{\xi}}(\widetilde{t}_p) = \int_{\widetilde{t}_p}^{\widetilde{t}_{p+1}} \widehat{\boldsymbol{\xi}}(\widetilde{t})d\widetilde{t}/\sqrt{\Delta\widetilde{t}}$, $\widehat{\boldsymbol{\eta}}(\widetilde{t}_p) = \int_{\widetilde{t}_p}^{\widetilde{t}_{p+1}} \widehat{\boldsymbol{\eta}}(\widetilde{t})d\widetilde{t}/\sqrt{\Delta\widetilde{t}}$, $\widehat{\boldsymbol{\zeta}}(\widetilde{t}_p) = \int_{\widetilde{t}_p}^{\widetilde{t}_{p+1}} \widehat{\boldsymbol{\zeta}}(\widetilde{t})d\widetilde{t}/\sqrt{\Delta\widetilde{t}}$ のように差分化される. 差分化した際のノイズの相関は次のように与えられる.

$$\left\langle \widehat{\xi}(\widetilde{t}_p)\widehat{\xi}(\widetilde{t}_{p'}) \right\rangle = \widetilde{W}_\xi \widetilde{T}\delta_{p,p'} \tag{2.17}$$

$$\left\langle \widehat{\eta}(\widetilde{t}_p)\widehat{\eta}(\widetilde{t}_{p'}) \right\rangle = \widetilde{W}_\eta \widetilde{T}\delta_{p,p'} \tag{2.18}$$

$$\left\langle \widehat{\zeta}(\widetilde{t}_p)\widehat{\zeta}(\widetilde{t}_{p'}) \right\rangle = \widetilde{W}_\zeta (\widetilde{T}+\widetilde{\Delta T})\delta_{p,p'} \tag{2.19}$$

以上より, Heun 法では次の順で TDGL 方程式と Bloch 方程式をシミュレートすれば良い.

[反強磁性スピンゼーベック効果の数値シミュレーションの手順]

1. 現在時刻の値を使って, 次時刻のスピン変数を予測する

$$\begin{aligned}
m_x^{\mathrm{pred}}(\widetilde{t}_{p+1}) &= m_x(\widetilde{t}_p) + \Delta\widetilde{t} \times f_{m_x}(\boldsymbol{m}(\widetilde{t}_p), \boldsymbol{n}(\widetilde{t}_p), \boldsymbol{s}(\widetilde{t}_p)) + \sqrt{\Delta\widetilde{t}}\,\widehat{\xi}_x(\widetilde{t}_p) \\
m_y^{\mathrm{pred}}(\widetilde{t}_{p+1}) &= m_y(\widetilde{t}_p) + \Delta\widetilde{t} \times f_{m_y}(\boldsymbol{m}(\widetilde{t}_p), \boldsymbol{n}(\widetilde{t}_p), \boldsymbol{s}(\widetilde{t}_p)) + \sqrt{\Delta\widetilde{t}}\,\widehat{\xi}_y(\widetilde{t}_p) \\
m_z^{\mathrm{pred}}(\widetilde{t}_{p+1}) &= m_z(\widetilde{t}_p) + \Delta\widetilde{t} \times f_{m_z}(\boldsymbol{m}(\widetilde{t}_p), \boldsymbol{n}(\widetilde{t}_p), \boldsymbol{s}(\widetilde{t}_p)) + \sqrt{\Delta\widetilde{t}}\,\widehat{\xi}_z(\widetilde{t}_p) \\
n_x^{\mathrm{pred}}(\widetilde{t}_{p+1}) &= n_x(\widetilde{t}_p) + \Delta\widetilde{t} \times f_{n_x}(\boldsymbol{m}(\widetilde{t}_p), \boldsymbol{n}(\widetilde{t}_p), \boldsymbol{s}(\widetilde{t}_p)) + \sqrt{\Delta\widetilde{t}}\,\widehat{\eta}_x(\widetilde{t}_p) \\
n_y^{\mathrm{pred}}(\widetilde{t}_{p+1}) &= n_y(\widetilde{t}_p) + \Delta\widetilde{t} \times f_{n_y}(\boldsymbol{m}(\widetilde{t}_p), \boldsymbol{n}(\widetilde{t}_p), \boldsymbol{s}(\widetilde{t}_p)) + \sqrt{\Delta\widetilde{t}}\,\widehat{\eta}_y(\widetilde{t}_p) \\
n_z^{\mathrm{pred}}(\widetilde{t}_{p+1}) &= n_z(\widetilde{t}_p) + \Delta\widetilde{t} \times f_{n_z}(\boldsymbol{m}(\widetilde{t}_p), \boldsymbol{n}(\widetilde{t}_p), \boldsymbol{s}(\widetilde{t}_p)) + \sqrt{\Delta\widetilde{t}}\,\widehat{\eta}_z(\widetilde{t}_p) \\
s_x^{\mathrm{pred}}(\widetilde{t}_{p+1}) &= s_x(\widetilde{t}_p) + \Delta\widetilde{t} \times f_{s_x}(\boldsymbol{m}(\widetilde{t}_p), \boldsymbol{n}(\widetilde{t}_p), \boldsymbol{s}(\widetilde{t}_p)) + \sqrt{\Delta\widetilde{t}}\,\widehat{\zeta}_x(\widetilde{t}_p) \\
s_y^{\mathrm{pred}}(\widetilde{t}_{p+1}) &= s_y(\widetilde{t}_p) + \Delta\widetilde{t} \times f_{s_y}(\boldsymbol{m}(\widetilde{t}_p), \boldsymbol{n}(\widetilde{t}_p), \boldsymbol{s}(\widetilde{t}_p)) + \sqrt{\Delta\widetilde{t}}\,\widehat{\zeta}_y(\widetilde{t}_p) \\
s_z^{\mathrm{pred}}(\widetilde{t}_{p+1}) &= s_z(\widetilde{t}_p) + \Delta\widetilde{t} \times f_{s_z}(\boldsymbol{m}(\widetilde{t}_p), \boldsymbol{n}(\widetilde{t}_p), \boldsymbol{s}(\widetilde{t}_p)) + \sqrt{\Delta\widetilde{t}}\,\widehat{\zeta}_z(\widetilde{t}_p)
\end{aligned}$$

ここで,

$$f_{m_i}(\boldsymbol{m}(\widetilde{t}_p), \boldsymbol{n}(\widetilde{t}_p), \boldsymbol{s}(\widetilde{t}_p)) = \left(\widetilde{\omega}_0 \widetilde{\boldsymbol{H}}_m \times \boldsymbol{m} + \widetilde{\omega}_0 \widetilde{\boldsymbol{H}}_n \times \boldsymbol{n} + \widetilde{\Gamma}_m \widetilde{\boldsymbol{H}}_m\right)_i$$

$$f_{n_i}(\boldsymbol{m}(\widetilde{t}_p), \boldsymbol{n}(\widetilde{t}_p), \boldsymbol{s}(\widetilde{t}_p)) = \left(\widetilde{\omega}_0 \widetilde{\boldsymbol{H}}_n \times \boldsymbol{m} + \widetilde{\omega}_0 \widetilde{\boldsymbol{H}}_m \times \boldsymbol{n} + \widetilde{\Gamma}_n \widetilde{\boldsymbol{H}}_n\right)_i$$
$$f_{s_i}(\boldsymbol{m}(\widetilde{t}_p), \boldsymbol{n}(\widetilde{t}_p), \boldsymbol{s}(\widetilde{t}_p)) = \left(\widetilde{\omega}_0 \widetilde{\boldsymbol{H}}_s \times \boldsymbol{s} + \widetilde{\chi}_M \widetilde{\boldsymbol{H}}_s\right)_i$$

は現在時刻 $\widetilde{t}_p$ における傾きで, $i = x, y, z$ である.

2. 現在時刻における $o(\widetilde{t}_p)$ の傾きと次時刻における $o(\widetilde{t}_{p+1})$ の傾きを平均する

$$\bar{f}_{o_i} = \left(f_{o_i}(\boldsymbol{m}(\widetilde{t}_p), \boldsymbol{n}(\widetilde{t}_p), \boldsymbol{s}(\widetilde{t}_p)) + f_{o_i}^{\mathrm{pred}}(\boldsymbol{m}(\widetilde{t}_{p+1}), \boldsymbol{n}(\widetilde{t}_{p+1}), \boldsymbol{s}(\widetilde{t}_{p+1}))\right)/2$$

ここで, o_i は m_i, n_i, s_i $(i = x, y, z)$ を指す.

3. 得られた平均の傾きを使って, 改めて次時刻のスピン変数を計算する

$$\begin{aligned}
m_x(\widetilde{t}_{p+1}) &= m_x(\widetilde{t}_p) + \Delta\widetilde{t} \times \bar{f}_{m_x} + \sqrt{\Delta\widetilde{t}}\, \widehat{\xi}_x(\widetilde{t}_p) \\
m_y(\widetilde{t}_{p+1}) &= m_y(\widetilde{t}_p) + \Delta\widetilde{t} \times \bar{f}_{m_y} + \sqrt{\Delta\widetilde{t}}\, \widehat{\xi}_y(\widetilde{t}_p) \\
m_z(\widetilde{t}_{p+1}) &= m_z(\widetilde{t}_p) + \Delta\widetilde{t} \times \bar{f}_{m_z} + \sqrt{\Delta\widetilde{t}}\, \widehat{\xi}_z(\widetilde{t}_p) \\
n_x(\widetilde{t}_{p+1}) &= n_x(\widetilde{t}_p) + \Delta\widetilde{t} \times \bar{f}_{n_x} + \sqrt{\Delta\widetilde{t}}\, \widehat{\eta}_x(\widetilde{t}_p) \\
n_y(\widetilde{t}_{p+1}) &= n_y(\widetilde{t}_p) + \Delta\widetilde{t} \times \bar{f}_{n_y} + \sqrt{\Delta\widetilde{t}}\, \widehat{\eta}_y(\widetilde{t}_p) \\
n_z(\widetilde{t}_{p+1}) &= n_z(\widetilde{t}_p) + \Delta\widetilde{t} \times \bar{f}_{n_z} + \sqrt{\Delta\widetilde{t}}\, \widehat{\eta}_z(\widetilde{t}_p) \\
s_x(\widetilde{t}_{p+1}) &= s_x(\widetilde{t}_p) + \Delta\widetilde{t} \times \bar{f}_{s_x} + \sqrt{\Delta\widetilde{t}}\, \widehat{\zeta}_x(\widetilde{t}_p) \\
s_y(\widetilde{t}_{p+1}) &= s_y(\widetilde{t}_p) + \Delta\widetilde{t} \times \bar{f}_{s_y} + \sqrt{\Delta\widetilde{t}}\, \widehat{\zeta}_y(\widetilde{t}_p) \\
s_z(\widetilde{t}_{p+1}) &= s_z(\widetilde{t}_p) + \Delta\widetilde{t} \times \bar{f}_{s_z} + \sqrt{\Delta\widetilde{t}}\, \widehat{\zeta}_z(\widetilde{t}_p)
\end{aligned}$$

4. 欲しい物理量に関して長時間平均を算出する

得られたスピンベクトル $\boldsymbol{m}$, $\boldsymbol{n}$, $\boldsymbol{s}$ を用いて, 欲しい物理量 O の長時間に渡る平均を算出する:

$$\langle O \rangle = \frac{1}{N_{\mathrm{step}}} \sum_{p=1}^{\mathrm{N_{step}}} O(\widetilde{t}_p) \tag{2.20}$$

ここで, N_{step} はスピンダイナミクスの時間軸に沿った測定回数である.

2.2 界面交換結合の種類

前節でスピンのブラウン運動を記述する方程式は整った．今は接合系を考えているから, 各層のスピンは界面交換結合を通して互いに引きずり合いながらブラウン運動することで, スピン輸送が起きている．それでは, この界面交換結合としてどのようなモデルが考えられるだろうか．そのヒントとなるのは, 反強磁性体界面のスピン状態である．具体的には図 2.2(a), (b) のように, 磁化補償されている界面と磁化補償されていない界面である [78, 79]．2014 年, R. Cheng 等はこれらの界面の場合でスピン伝導度 (接合界面におけるスピンの伝わりやすさ) を理論計算し, 両者が同等であることを示した．しかし, Li 等による Cr_2O_3 を用いた実験 [6] によると, 界面をエッチング処理した場合には反強磁性スピンゼーベック効果の符号反転現象が消失する [図 1.15(b)]．一方, Reitz 等の理論結果によると, 界面状態に依らず常に符号反転現象が起きる [89]．以上の背景から, スピン輸送現象における界面の役割について再考する必要がある．そこで本研究では, 反強磁性体/非磁性金属の接合界面に現れる交換結合に着目し, 反強磁性スピンゼーベック効果の理論解析を行う．

以下では具体的な界面交換結合について考察する．本研究では, 反強磁性体の副格子スピンの交換に関する対称性に着目し, 次の 2 種類のタイプを考える．1 つ目は反強磁性体のネール秩序 $\boldsymbol{n}$ と非磁性金属の電子スピン $\boldsymbol{s}$ が直接交換結合するタイプ (Néel coupling と名付ける), 2 つ目は反強磁性体の正味の磁化 $\boldsymbol{m}$ と非磁性金属の電子スピン $\boldsymbol{s}$ が直接交換結合するタイプ (magnetic coupling と名付ける) である [80]．自由エネルギーで書くと次の形となる:

$$F_{\text{AFI-M}} = \begin{cases} -J_{\text{sd}}\boldsymbol{s}\cdot\boldsymbol{m} & \text{for magnetic coupling} \\ -J_{\text{sd}}\boldsymbol{s}\cdot\boldsymbol{n} & \text{for Néel coupling} \end{cases} \tag{2.21}$$

それぞれのタイプにおいて, 副格子の交換に対する対称性は次のようになる．

(1) magnetic coupling の場合
$\boldsymbol{m} = (\boldsymbol{S}_{\text{A}} + \boldsymbol{S}_{\text{B}})/2$ であるから, 副格子のスピンの交換 $\boldsymbol{S}_{\text{A}} \leftrightarrow \boldsymbol{S}_{\text{B}}$ に対して $\boldsymbol{m} \to \boldsymbol{m}$ となり磁化ベクトルは不変である．従って, 非磁性金属のスピン $\boldsymbol{s}$ が感じる界面の交換磁場 $\boldsymbol{H}_{\text{ex}} := -(1/\gamma\hbar)\delta F_{\text{AFI-M}}/\delta\boldsymbol{s} = (J_{\text{sd}}/\gamma\hbar)\boldsymbol{m}$ もこの変換の下で不変となる．

(2) Néel coupling の場合
$\boldsymbol{n} = (\boldsymbol{S}_{\text{A}} - \boldsymbol{S}_{\text{B}})/2$ であるから, 副格子のスピンの交換 $\boldsymbol{S}_{\text{A}} \leftrightarrow \boldsymbol{S}_{\text{B}}$ に対して $\boldsymbol{n} \to -\boldsymbol{n}$ のようにネールベクトルは反転される．従って, 非磁性金属のスピン $\boldsymbol{s}$ が感じる界面の交換磁場 $\boldsymbol{H}_{\text{ex}} := -(1/\gamma\hbar)\delta F_{\text{AFI-M}}/\delta\boldsymbol{s} = (J_{\text{sd}}/\gamma\hbar)\boldsymbol{n}$ の方向はこの変換の下で反転する．今, $\boldsymbol{s}$ を強磁性体のスピンと読み替えれば, この副格子スピンの交換に対する対称性は, 強磁性体/反強磁性体の接合系における交換バイアスと同じである．なぜなら, 反強磁性体のスピンの方向を変えれば交換バイアスにおけるヒステリシスのループ中心は逆方向にシフトすると考えられるからである [48]．

以上の対称性の考察から, Néel coupling が交換バイアスの傾向に関連していることが分かる．次に, これらの界面交換結合がどのような界面状況に相当するか考察してみる．

正味の磁化ベクトル $\boldsymbol{m}$ は十分に低磁場において $\boldsymbol{m} = 0$ であるから, 界面の磁気モーメントは補償された状態になっていると考えられる (図 2.2(a))．しかし, 実際にはドメイン構造の出現が想定

されるため, 図 2.2(c) のように各ドメインで『磁化補償されていない界面』が形成されているケースも想定される．この時, 界面近傍における正味の磁化は $\boldsymbol{m} = 0$ である．ギンツブルグ・ランダウ模型は粗視化されたスケールで物理を記述する事を考慮すれば, magnetic coupling は (a), (c) どちらのケースにも相当する．一方, $\boldsymbol{n}$ は秩序変数であるからゼロ磁場でも有限の値を取る．この時, Néel coupling はゼロ磁場でも有限な値を取るため, 界面で一方の副格子スピンが支配的な『磁化補償されていない界面』(図 2.2(b)) を記述している．なお, magnetic coupling 及び Néel coupling の場合の交換結合 J_{sd} の大きさに関しては定量的な議論は存在しないが, 式 (2.21) から, 低磁場においては Néel coupling の方が強いと予想される．

次に, ドメイン制御について述べる．反強磁性体のドメイン制御は強磁性体に比べて難しい．なぜなら, 強磁性体の場合には弱い外部印加磁場によってドメインを揃える事ができるが, 反強磁性体は交換相互作用によって副格子スピンが補償した状態になっており, 外場に対する応答が非常に弱いからである．一方で最近, CuMnAs という反強磁性体において, 電流誘起のネールスピン軌道トルクを用いたネール秩序のスイッチングが報告された [53]．これは, 副格子毎に逆方向のスピン軌道トルク (磁化の向きを動かす作用) が働くことで可能になっている．しかし, このスピントルクを生じさせるためには前提条件として伝導性が必要である．従って, 絶縁体では適用する事ができず, 反強磁性絶縁体でのドメイン制御の問題は残されている．以上から, 界面状況に十分に注意を払った反強磁性スピンゼーベック効果の実験が今後必要とされる．

以上でスピンフロップ転移を考慮した反強磁性スピンゼーベック効果のモデルが構築されたため, すぐにスピン流の計算に移ることができる．その前に, 本研究で構築した反強磁性体のギンツブルグ・ランダウ模型が平衡状態とマグノンのバンドを適切に記述することを示しておくことで, モデルの信頼性を確保しておきたい．

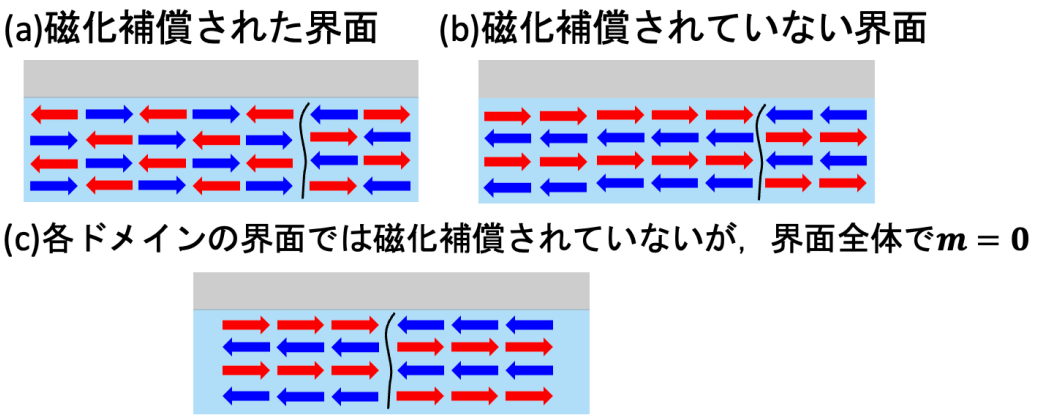

図 2.2　原子スケールで見た際の界面における磁気モーメントの配置図．(a): 磁化が補償された界面．(b): 一方の副格子のスピンが界面を支配した『磁化補償されていない界面』．(c): 各ドメインで『磁化補償されていない界面』であるが, ドメインサイズが同等のため界面で $\boldsymbol{m} \sim 0$ の状態．図は, Gray 等の文献 [79] を参考にしている．

2.3 反強磁性体における物理量の平衡状態

本研究で構築した反強磁性体のギンツブルグ・ランダウ模型が, 適切に反強磁性体の平衡状態を記述するかを確認する. そのために, (1) まずは反強磁性体の温度・磁場相図の導出, (2) ネール秩序の温度・磁場依存性, (3) 磁化の温度・磁場依存性, の順に議論する.

2.3.1 反強磁性体の温度・磁場相図の導出

反強磁性体の温度・磁場相図は, ギンツブルグ・ランダウの自由エネルギー (式 (2.4)) を最小化することで得られる. 今, 磁化ベクトル $\boldsymbol{m} = m\hat{\boldsymbol{z}}$ とネールベクトル $\boldsymbol{n}$ の成す角を θ, $\boldsymbol{n}$ と $\hat{\boldsymbol{x}}$ の成す角を ϕ とすると, 次の形で書くことができる:

$$\begin{aligned} F_{\mathrm{AFI}} = & \frac{u_2}{2}n^2 + \frac{u_4}{4}n^4 + \frac{1}{2}(D+D')m^2n^2 + \frac{1}{2}(K_0 + K_1\cos^2\phi - Dm^2)n^2\sin^2\theta \\ & + \frac{r_0}{2}m^2 - \frac{H_0}{\mathfrak{h}_0}m, \end{aligned} \tag{2.22}$$

これを $m, n, \cos\phi, \sin\theta$ について最小化したい. まず, 面内異方性 K_1 の存在から, $\cos\phi = 0$ つまり $\phi = \pi/2$ である. この時, 自由エネルギーにおける $\sin^2\theta$ の項に現れる $K_0 - Dm^2$ の符号が, 反強磁性相 ($\theta = 0$) とスピンフロップ相 ($\theta = \pi/2$) を決定する. 具体的には, $K_0 - Dm^2 > 0$ の時 $\theta = 0$(反強磁性相) で自由エネルギーが低くなり, $K_0 - Dm^2 < 0$ の時 $\theta = \pi/2$(スピンフロップ相) で自由エネルギーが低くなる. $\cos\phi = 0$ の下で m, n について自由エネルギーの変分を行うと次の式を得る:

$$m = \left\{r_0 + (D\cos^2\theta + D')n^2\right\}^{-1}\frac{H_0}{\mathfrak{h}_0}, \tag{2.23}$$

$$u_2 + u_4n^2 + (K_0 - Dm^2)\sin^2\theta + (D+D')m^2 = 0. \tag{2.24}$$

この式を用いて, (1) 反強磁性相からスピンフロップ相への臨界磁場 $H_{\mathrm{SF}}^{(\mathrm{upper})}$, (2) スピンフロップ相から反強磁性相への臨界磁場 $H_{\mathrm{SF}}^{(\mathrm{lower})}$, (3) 臨界磁場の差とその符号, (4) 秩序相と常磁性相の臨界磁場, について順に議論する.

反強磁性相からスピンフロップ相への臨界磁場の導出

まず, 反強磁性相からスピンフロップ相へ近づく時は $\theta = 0$ であるから, 式 (2.23) より $m = \left\{r_0 + (D+D')n^2\right\}^{-1}H_0/\mathfrak{h}_0$ である. これに $Dm^2 = K_0$ を代入して m を消去し, n^2 について解くと次式を得る:

$$n^2 = \frac{1}{D+D'}\left(\sqrt{\frac{D}{K_0}}\frac{H_0}{\mathfrak{h}_0} - r_0\right). \tag{2.25}$$

一方, $Dm^2 = K_0$ を式 (2.24) に代入し, m を消去すると次式を得る:

$$u_2 + u_4n^2 + \frac{D+D'}{D}K_0 = 0. \tag{2.26}$$

式 (2.25) と式 (2.26) を用いて n^2 を消去し, H_0 について求めると臨界磁場 $H_{\mathrm{SF}}^{(\mathrm{upper})}$ を得る:

$$H_{\mathrm{SF}}^{(\mathrm{upper})} = \sqrt{\frac{K_0}{D}}\left[r_0 - \frac{D+D'}{u_4}\left(u_2 + \frac{D+D'}{D}K_0\right)\right]\mathfrak{h}_0. \tag{2.27}$$

スピンフロップ相から反強磁性相への臨界磁場の導出

まず, スピンフロップ相から反強磁性相へ近づく時は $\theta = \pi/2$ であるから, 式 (2.23) より $m = \left\{r_0 + D'n^2\right\}^{-1} H_0/\mathfrak{h}_0$ である. これに $Dm^2 = K_0$ を代入して m を消去し, n^2 について解くと次式を得る:

$$n^2 = \frac{1}{D'}\left(\sqrt{\frac{D}{K_0}}\frac{H_0}{\mathfrak{h}_0} - r_0\right). \tag{2.28}$$

一方, $Dm^2 = K_0$ を式 (2.24) に代入し, m を消去すると次式を得る:

$$u_2 + K_0 + u_4 n^2 + \frac{D'}{D}K_0 = 0. \tag{2.29}$$

式 (2.28) と式 (2.29) を用いて n^2 を消去し, H_0 について求めると臨界磁場 $H_{\mathrm{SF}}^{(\mathrm{lower})}$ を得る:

$$H_{\mathrm{SF}}^{(\mathrm{lower})} = \sqrt{\frac{K_0}{D}}\left[r_0 - \frac{D'}{u_4}\left(u_2 + \frac{D+D'}{D}K_0\right)\right]\mathfrak{h}_0. \tag{2.30}$$

本研究では, スピンフロップ磁場として $H_{\mathrm{SF}}^{(\mathrm{upper})}$ と $H_{\mathrm{SF}}^{(\mathrm{lower})}$ の平均値を採用する:

$$H_{\mathrm{SF}} = \sqrt{\frac{K_0}{D}}\left[r_0 - \frac{D+2D'}{2u_4}\left(u_2 + \frac{D+D'}{D}K_0\right)\right]\mathfrak{h}_0. \tag{2.31}$$

この理由については 2.3.1 で説明している.

臨界磁場の差とその符号について

上で求めた臨界磁場の差は次のようになる:

$$H_{\mathrm{SF}}^{(\mathrm{upper})} - H_{\mathrm{SF}}^{(\mathrm{lower})} = \frac{D'}{u_4}\sqrt{\frac{K_0}{D}}\left(-u_2 - \frac{D+D'}{D}K_0\right)\mathfrak{h}_0 \tag{2.32}$$

異方性定数 K_0 は非常に小さいため, このギャップは非常に小さくなる. 従って, ヒステリシスを観測することは難しい. これは十分に低温におけるヒステリシスの議論 (A.2) と定性的に整合している.

次に $H_{\mathrm{SF}}^{(\mathrm{upper})} > H_{\mathrm{SF}}^{(\mathrm{lower})}$ である理由を述べる. スピンフロップ相 (SF phase) と常磁性相 (Paramagnetic phase) の臨界磁場 $H_{\mathrm{SF/PM}}$ は, 反強磁性相 (AF pahse) と常磁性相の臨界磁場 $H_{\mathrm{AF/PM}}$ よりも大きい. 具体的な臨界磁場の導出は後で行うが, この関係 ($H_{\mathrm{SF}}^{(\mathrm{upper})} > H_{\mathrm{SF}}^{(\mathrm{lower})}$) から $-u_2 - K_0(D+D')/D$ は正である事が分かる. 実は, $H_{\mathrm{SF}}^{(\mathrm{upper})} = H_{\mathrm{SF}}^{(\mathrm{lower})}$ により得られる点は三重臨界点を与える事が後に分かるため, 三重臨界点より低温では常に $H_{\mathrm{SF}}^{(\mathrm{upper})} > H_{\mathrm{SF}}^{(\mathrm{lower})}$ となる.

秩序相と常磁性相の臨界磁場の導出

秩序相と常磁性相を分ける臨界磁場を求めるためには, Landau 展開を行って安定性の議論を行えば良い. その準備として, 式 (2.4) の自由エネルギーを m について整理しておこう:

$$F_{\mathrm{AFI}} = \left(\frac{u_2}{2} + \frac{1}{2}K_0\sin^2\theta\right)n^2 + \frac{u_4}{4}n^4 + \left[\frac{1}{2}(D+D')n^2 - \frac{1}{2}D\sin^2\theta + \frac{r_0}{2}\right]m^2 - m\frac{H_0}{\mathfrak{h}_0}$$

この式に式 (2.23) を代入するが, そのために次のように磁化を展開しておく:

$$m \approx \frac{1}{r_0} - \frac{1}{r_0^2}(D\cos^2\theta + D')n^2 + \frac{1}{r_0^3}(D\cos^2\theta + D')^2 n^4$$

よって m^2 は

$$m^2 \approx \frac{1}{r_0^2} - \frac{2}{r_0^3}(D\cos^2\theta + D')n^2 + \frac{3}{r_0^4}(D\cos^2\theta + D')^2 n^4$$

これらを自由エネルギーに代入すると,

$$\begin{aligned} F_{\mathrm{AFI}} = \frac{1}{2r_0}&\left[(u_2 + K_0\sin^2\theta)r_0 + \frac{D\cos^2\theta + D'}{r_0}\left(\frac{H_0}{\mathfrak{h}_0}\right)^2\right]n^2 \\ &+ \frac{1}{4r_0}\left[u_4 r_0 - 2\left(\frac{D\cos^2\theta + D'}{r_0}\right)^2\left(\frac{H_0}{\mathfrak{h}_0}\right)^2\right]n^4 + \cdots \end{aligned} \tag{2.33}$$

という n に関するランダウ展開が得られる. 秩序相が安定に存在するためには n^2 の係数は負でなければならない事を用いて, 以下では具体的に反強磁性相 ($\theta = 0$) から常磁性相への転移磁場, スピンフロップ相 ($\theta = \pi/2$) から常磁性相への転移磁場を求める.

(1) 反強磁性相 ($\theta = 0$) と常磁性相の臨界磁場

反強磁性相と常磁性相を分ける 2 次相転移の境界は, 式 (2.33) において $\theta = 0$ とし, n^2 の係数をゼロと置くことで得られる:

$$H_{\mathrm{AF/PM}} = r_0\sqrt{\frac{-u_2}{D + D'}}\mathfrak{h}_0 \tag{2.34}$$

(2) スピンフロップ相 ($\theta = \pi/2$) と常磁性相の臨界磁場

スピンフロップ相と常磁性相を分ける 2 次相転移の境界は, 式 (2.33) において $\theta = \pi/2$ とし, n^2 の係数をゼロと置くことで得られる:

$$H_{\mathrm{SF/PM}} = r_0\sqrt{\frac{-(u_2 + K_0)}{D'}}\mathfrak{h}_0 \tag{2.35}$$

二次相転移の境界を与える $H_{\mathrm{AF/PM}}, H_{\mathrm{SF/PM}}$ が, 一次相転移を与える H_{SF} と交わる点は三重臨界点 (tricritical point) となっており, 反強磁性相・スピンフロップ相・常磁性相が共存する状態となっている (水で言えば液体・氷・水蒸気が共存しており区別できない状態). その温度 T_{t} は $H_{\mathrm{AF/PM}} = H_{\mathrm{SF/PM}}$ 又は $H_{\mathrm{AF/PM}} = H_{\mathrm{SF}}$, $H_{\mathrm{SF/PM}} = H_{\mathrm{SF}}$ のいずれの等式からでも求められる:

$$T_{\mathrm{t}} = \left(1 - \frac{D + D'}{D}K_0\right)T_{\mathrm{N}} \tag{2.36}$$

これを式 (2.34) 又は式 (2.35) に代入することで三重臨界点の磁場 H_{t} を得る:

$$H_{\mathrm{t}} = r_0\sqrt{\frac{K_0}{D}}\mathfrak{h}_0 \tag{2.37}$$

この結果は, 磁場とネール秩序による Landau 展開の結果 [81] と整合する.

反強磁性体の温度・磁場相図

以上で, 反強磁性相とスピンフロップ相の境界, 秩序相と無秩序相の境界をプロットする準備ができた. プロットした結果が図 2.3 に示されている. 赤色の点線が式 (2.30), 青色の点線が式 (2.27), 赤色の太線が $H_{\mathrm{SF}} := (H_{\mathrm{SF}}^{(\mathrm{upper})} + H_{\mathrm{SF}}^{(\mathrm{upper})})/2$, 黒色の太線が 式 (2.35), 緑色の太線が式

(2.34) のプロットである．この相図は, バルクの MnF_2[63], FeF_2[82] の実験で得られた相図, 及び, 分子場近似による自己無撞着の理論計算結果で得られた相図 [83] と整合している．ただし, スピンフロップ臨界磁場の温度依存性については注意が必要である．通常, 熱エネルギーが高いほど相転移に必要な磁場は小さいと推測されるが, MnF_2[63], FeF_2[82], Cr_2O_3[64, 66] においては温度上昇に伴ってスピンフロップ磁場も上昇する傾向にある．この原因として, 実際の物質ではドメインが形成されていることが考えられる．スピンフロップ転移直前においては, 温度上昇に伴って様々な方向を向いたネールベクトルの大きなドメインが形成され, これらを真の熱力学的な安定状態にするためには大きな磁場が必要だと考えられる．

以降では, $H_{\mathrm{SF}}^{(\mathrm{upper})}$ 及び $H_{\mathrm{SF}}^{(\mathrm{lower})}$ については相図に記載せず, その平均値である $H_{\mathrm{SF}} := (H_{\mathrm{SF}}^{(\mathrm{upper})} + H_{\mathrm{SF}}^{(\mathrm{upper})})/2$ をスピンフロップ磁場として採用する．これは, 以降で計算する磁化が解析計算で求めた H_{SF} において明瞭に変化しているからである．もし磁化のヒステリシスを計算したければ, 過去のスピン状態 (履歴) を引きずるようにして磁化を評価すればよい．しかし, これは本筋から外れるため本研究ではこれ以上踏み込まないことにする．

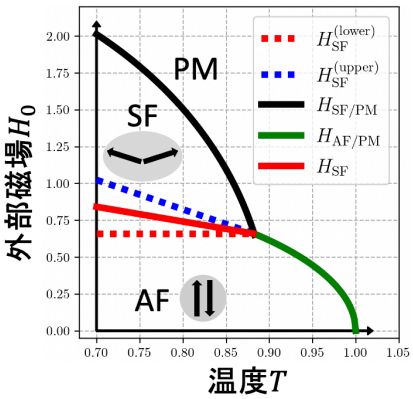

図 2.3　ギンツブルグ・ランダウ模型から求めた反強磁性体の温度・磁場相図．反強磁性 (AF) 相とスピンフロップ (SF) 相にスピンの概念図を記載している．パラメータ: $u_4 = 0.1$, $K_0 = 0.1$, $K_1 = 0.01$, $D = 0.4$, $D' = 0.07$, $\Theta/T_{\mathrm{N}} = 1.0$, $A/T_{\mathrm{N}} = 1.43$.

2.3.2　ネール秩序の温度・磁場依存性

次に, この相図に従って反強磁性スピン変数であるネールベクトル $\boldsymbol{n}$ や磁化 $\boldsymbol{m}$ が適切に振る舞っているか様子を確認する．その際, ネールベクトル成分の絶対値をプロットしている．なぜなら, 以下のシミュレーションでは熱エネルギーが異方性エネルギーに対して有意な大きさを持っているため, ポテンシャルバリアを越えてネールベクトルの向きが反転するからである [84, 85]．従って, $\langle \boldsymbol{n} \rangle$ の絶対値を取る必要がある．もし熱ノイズを入れなければ, 初期条件によって方向を決定できるが, 今回は適切にボルツマン分布が達成されていることも確認する意味で熱ノイズを取り入れている．

ネール秩序の磁場依存性

図 2.4 は, ネールベクトルの磁場依存性の計算結果である．例えば, 図 2.4(b) では温度を $T = 0.7$ に固定し, スピンフロップ磁場を跨いで $H_{\mathrm{SF/PM}}$ までのラインでネールベクトルを計算している．その結果, H_{SF} までは容易軸方向の成分 $\langle n_z \rangle$ が有限値を取るが, H_{SF} を越えるとゼロになってい

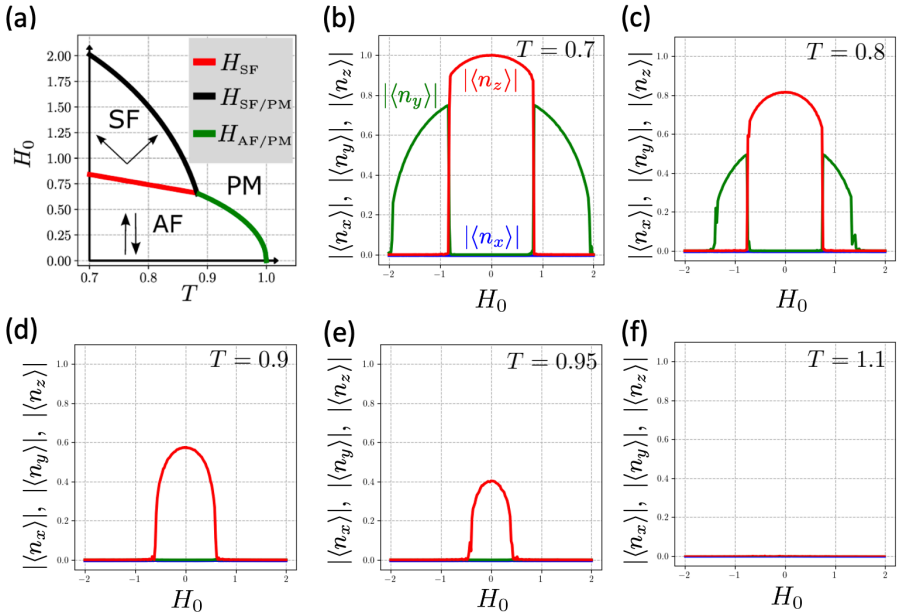

図 2.4　(a) 反強磁性体の温度・磁場相図, (b)∼(f): 各温度におけるネールベクトルの磁場依存性. 温度はネール温度 T_{N} で規格化, 磁場は $\mathfrak{h}_0$ で規格化されている. (b)∼(f) では, (b) の $|n_z|$ の最大値を用いて規格化されている. パラメータ: $u_4 = 0.1$, $K_0 = 0.1$, $K_1 = 0.01$, $D = 0.4$, $D' = 0.07$, $\Theta/T_{\mathrm{N}} = 1.0$, $A/T_{\mathrm{N}} = 1.43$, $\widetilde{\omega}_0 = 0.04$, $\widetilde{\Gamma}_m = 8 \times 10^{-4}$, $\widetilde{\Gamma}_n = 1.6 \times 10^{-3}$, $\Delta t = 0.1$, $T = 0.8$, $h_{\mathrm{ac}} = 10^{-3}$, $k_{\mathrm{B}}T_{\mathrm{N}}/(\epsilon_0 v_0) = 1.4 \times 10^{-4}$, $N_{\mathrm{step}} = 5 \times 10^3$, $J_{\mathrm{sd}} = 0$. (a):Reprinted with permission from Ref [68]. In (c), the data of Fig. 2(d) in Ref [68] is reused. Copyright (2022) by the American Physical Society.

る. その代わり, H_{SF} 以下の磁場でゼロであった $\langle n_y \rangle$ が, H_{SF} 以降で有限値を取っている. これは, 反強磁性相では容易軸方向の秩序が存在したが, H_{SF} を越えると秩序方向が変わったために生じている. これについて図 2.5 を用いて説明してみよう. 図 2.5(a) は, yz 面内で面内異方性 K_1 がある様子を示している. 自由エネルギーで言えば, 式 (2.4) の $K_1(\boldsymbol{n} \cdot \hat{\boldsymbol{x}})^2$ の項である. 磁場がスピンフロップ磁場より小さい場合, 図 2.5(a) のように一軸異方性 K_0 のために反強磁性スピンは z 軸に平行に並んでいるため, $\boldsymbol{n} = (\boldsymbol{S}_{\mathrm{A}} - \boldsymbol{S}_{\mathrm{B}})/2$ から $\boldsymbol{n}$ は z 方向のみ有限値となる. 一方, スピンフロップ磁場を越えると面内異方性 K_1 のためにスピンは yz 面内でキャントした状態を取る. 従って, $\boldsymbol{n} = (\boldsymbol{S}_{\mathrm{A}} - \boldsymbol{S}_{\mathrm{B}})/2$ よりネール秩序は y 方向のみ有限となる. もし全く面内異方性がないとすれば, 図 2.4(a) 又は図 2.4(b) のようなスピン配置でキャントする可能性があるため (z 方向には一軸異方性があるため, スピンフロップ相ではスピンは z 方向を向くことはできないことに注意), 秩序方向が定まらずネールベクトルは不安定となる. これを回避するため, 本研究では面内異方性 K_1 を取り入れている.

$T = 0.8$[図 2.4(c)] では, より低いスピンフロップ磁場でネール秩序の方向が変わっていることが分かる. これは, 相図 (a) と整合している. 次に $T = 0.9$[図 2.4(d)] まで温度を上昇させると, もはやスピンフロップ転移は存在せず, 容易軸 (z) 方向の秩序 $\langle n_z \rangle$ が $H_{\mathrm{AF/PM}}$ で消失するのみである. 同様の振る舞いが $T = 0.95$[図 2.4(e)] でも見られる. 最後に, ゼロ磁場でのネール温度 $T = 1.0$ を越えた $T = 1.1$[図 2.4(f)] では, 反強磁性体が常磁性相に位置するため, どの方向の秩序も存在しない.

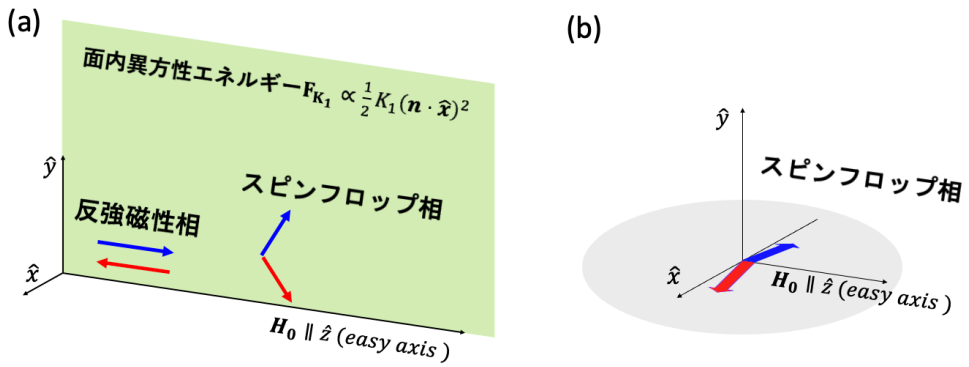

図 2.5　(a)yz 面内に面内異方性がある時のスピン配置．(b)xz 面内に面内異方性がある場合に，スピンフロップ相において安定なスピン配置．こちらを面内異方性として設定することもできるが，本研究では (a) の yz 面内の異方性を設定している．

ネール秩序の温度依存性

この節では, ネールベクトル $\boldsymbol{n}$ の温度依存性の計算結果を示す. 図 2.6(b) は, 磁場を $H_0 = 0.2$ に固定した際のネールベクトルの温度依存性を示している. この場合, 相図 (a) を見ると常磁性相との相境界 $H_{\mathrm{AF/PM}}$ を跨いで計算するため, $T \sim 0.98$ 程度で容易軸方向のネール秩序 $\langle n_z \rangle$ が連続的に消失している. 一方, 磁場を $H_0 = 1.2$ にした時にはスピンフロップ相と常磁性相の相境界を跨ぐため, $T \sim 0.85$ 程度でスピンフロップ相のネール秩序 $\langle n_y \rangle$ が連続的に消失している. 以上のネールベクトルの振る舞いは, 解析的に導出された相図と整合している. また, 以上の秩序変数の連続的変化から, $H_{\mathrm{AF/PM}}, H_{\mathrm{SF/PM}}$ を跨ぐ相転移は二次相転移である事が分かる.

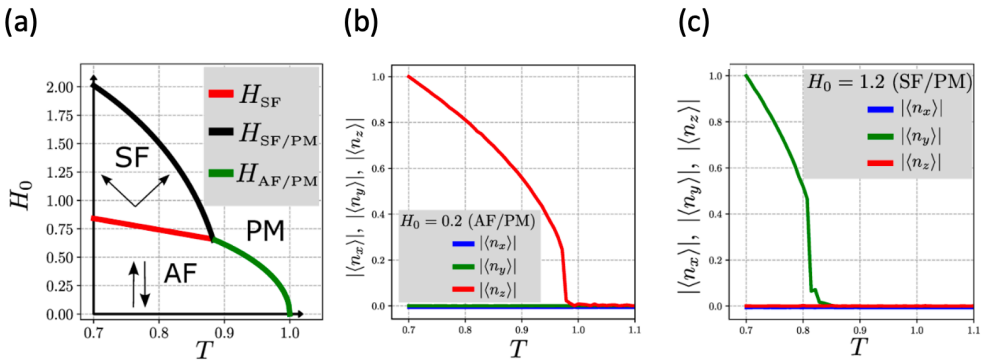

図 2.6 (a) 反強磁性体の温度・磁場相図. (b)$H_0 = 0.2$ におけるネールベクトル成分の温度依存性. (c)$H_0 = 1.2$ におけるネールベクトル成分の温度依存性. パラメータ: $\widetilde{\omega}_0 = 0.04$, $\widetilde{\Gamma}_m = 8 \times 10^{-4}$, $\widetilde{\Gamma}_n = 1.6 \times 10^{-3}$, $\Delta t = 0.1$, $T = 0.8$, $h_{\mathrm{ac}} = 10^{-3}$, $k_{\mathrm{B}} T_{\mathrm{N}}/(\epsilon_0 v_0) = 1.4 \times 10^{-4}$, $N_{\mathrm{step}} = 5 \times 10^3$, $J_{\mathrm{sd}} = 0$. 他のパラメータは図 2.4(a) と同じ. Reprinted with permission from Ref [68]. Copyright (2022) by the American Physical Society.

2.3.3 磁化の温度・磁場依存性

この節では, 磁化の磁場・温度依存性を評価する.

磁化の磁場依存性

各温度で磁場方向 (z) の磁化 $\langle m_z \rangle$ の磁場依存性を評価した結果が図 2.7 に示されている. $T = 0.7$(青色のライン) においては, $H_0 \sim 0.8$ 程度で磁化が大きく増大しているため, 相図通りにスピンフロップ転移が起きたと考えられる. 次に $T = 0.7$(赤色のライン) においては, 磁化が増大する位置は低磁場側にシフトしている. これは, 相図からも分かるように温度上昇とともにスピンフロップ転移磁場が低下したためである. より温度を上昇させて $T = 0.9$(赤色のライン) に達すると, もはやスピンフロップ転移は起きないため磁化の著しい増大は現れない. これらの振る舞いは, MnF_2[86] 及び Cr_2O_3[66] における磁化の測定結果と整合している.

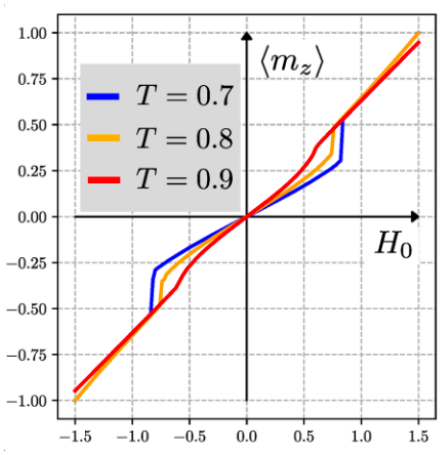

図 2.7　磁化の磁場依存性 [68]. Reprinted with permission from Ref [68]. Copyright (2022) by the American Physical Society.

磁化の温度依存性

この節では, 反強磁性相における反強磁性スピン帯磁率の温度依存性の計算結果を示す. まず, 反強磁性スピン帯磁率は次式で定義される:

$$\chi_{\parallel} = \langle m_z \rangle / (H_0/\mathfrak{h}_0) \tag{2.38}$$

$$\chi_{\perp} = \langle m_x \rangle / (H_0\mathfrak{h}_0) \tag{2.39}$$

ただし, $\chi_{\parallel}$ は容易軸に平行な方向に磁場を印加した時 ($H_0\hat{\boldsymbol{z}} \parallel K_0\boldsymbol{z}$) のスピン帯磁率, $\chi_{\perp}$ は容易軸に垂直な方向に磁場を印加した時 ($H_0\hat{\boldsymbol{x}} \perp K_0\boldsymbol{z}$) のスピン帯磁率である. これらを評価した結果を図 2.8(a) に示した. この結果は, 実際の MnF_2 におけるスピン帯磁率の振る舞い図 2.8(b) と整合している.

最後に, 帯磁率にこのような差異が観測される理由について述べておこう. $\chi_{\parallel}$ の場合, 温度上昇とともにネール秩序は弱くなるため帯磁率は増大する. 一方, $\chi_{\perp}$ の場合, スピンは磁場に比例して磁場方向に傾くだけであるから, 帯磁率は一定となる. ネール温度を越えて常磁性相に達すると, もはや秩序は存在しないため, 磁場方向に関わらず帯磁率はキュリーワイス則に従って減衰する.

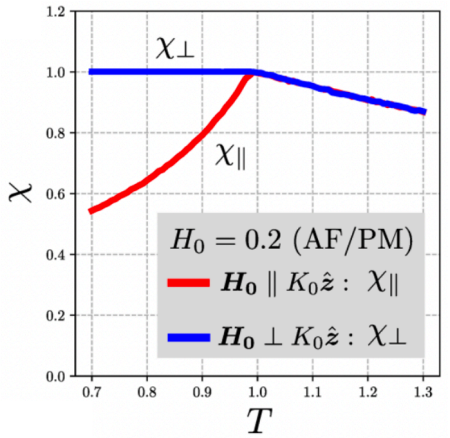

図 2.8　スピン帯磁率の温度依存性. Reprinted with permission from Ref [68]. Copyright (2022) by the American Physical Society.

2.4 反強磁性マグノンのバンド図とマグノンの極性

この節では, 反強磁性マグノンのマグノン周波数を解析的に計算し, バンド図を作成する. その後, 交流磁場を用いた反強磁性共鳴実験のシミュレーションを実施し, 時間依存ギンツブルグ・ランダウ方程式がマグノン極性を適切に記述しているかを確認する.

2.4.1 反強磁性マグノンのバンド図

一軸異方性の反強磁性体には, 右巻きと左巻きのヘリシティを持つマグノンが存在する. この極性を活用したスピン流の生成は既にスピンポンピングの実験 (つまり反強磁性共鳴を利用した実験) で実証されている [6, 88]. 当然, 本研究で取り扱うスピンゼーベック効果の符号反転現象においてもマグノンが主役であるから, その極性が適切に記述されるかを確認しておく必要がある. 具体的には, 時間依存ギンツブルグ・ランダウ方程式を用いた反強磁性共鳴のシミュレーションを行う. その準備として, まずは時間依存ギンツブルグ・ランダウ方程式における固有振動数 (即ちマグノン周波数) を求め, バンド図を作成する.

反強磁性スピンダイナミクスが時間依存ギンツブルグ・ランダウ方程式 [式 (2.2) と式 (2.1)] で記述される事は既に確認したが, ここでは歳差運動を記述する項のみ着目し, 再掲しよう:

$$\frac{\partial}{\partial t}\boldsymbol{m} = \gamma \boldsymbol{H}_m \times \boldsymbol{m} + \gamma \boldsymbol{H}_n \times \boldsymbol{n} \tag{2.40}$$

$$\frac{\partial}{\partial t}\boldsymbol{n} = \gamma \boldsymbol{H}_n \times \boldsymbol{m} + \gamma \boldsymbol{H}_m \times \boldsymbol{n} \tag{2.41}$$

この方程式から得られる固有振動数 (マグノン周波数) について, それぞれ反強磁性相及びスピンフロップ相に分けて計算する. ただし, 面内異方性 K_1 は非常に弱いため, 反強磁性相においては無視する.

反強磁性相のマグノン周波数

反強磁性相では $\theta = 0$ つまり $\boldsymbol{n}_{\mathrm{eq}} = n_{\mathrm{eq}}\hat{\boldsymbol{z}}$, $\boldsymbol{m}_{\mathrm{eq}} = m_{\mathrm{eq}}\hat{\boldsymbol{z}}$ である. これに注意し, $\delta\boldsymbol{m} = \boldsymbol{m} - \boldsymbol{m}_{\mathrm{eq}}$, $\delta\boldsymbol{n} = \boldsymbol{n} - \boldsymbol{n}_{\mathrm{eq}}$ という平衡状態周りの揺らぎを考える. この際, $m_{\mathrm{eq}}, n_{\mathrm{eq}}$ は式 (2.23) と式 (2.24) において $\theta = 0$ と置くことで計算される. 揺らぎ $\delta\boldsymbol{m}, \delta\boldsymbol{n}$ について上記の運動方程式を線形化すると次式を得る:

$$\frac{\partial}{\partial t}\begin{bmatrix}\delta m_x \\ \delta m_y\end{bmatrix} = \gamma H_0 \begin{bmatrix}-\delta m_y \\ \delta m_x\end{bmatrix} + \gamma \mathfrak{h}_0 n_{\mathrm{eq}} K_0 \begin{bmatrix}-\delta n_y \\ \delta n_x\end{bmatrix} \tag{2.42}$$

$$\frac{\partial}{\partial t}\begin{bmatrix}\delta n_x \\ \delta n_y\end{bmatrix} = \gamma \mathfrak{h}_0 n_{\mathrm{eq}}(r_0 + D' n_{\mathrm{eq}}^2 + D m_{\mathrm{eq}}^2) \begin{bmatrix}-\delta m_y \\ \delta m_x\end{bmatrix} + \gamma \mathfrak{h}_0 m_{\mathrm{eq}} \left(K_0 - D(m_{\mathrm{eq}}^2 - n_{\mathrm{eq}}^2)\right) \begin{bmatrix}-\delta n_y \\ \delta n_x\end{bmatrix} \tag{2.43}$$

一軸異方性周りの回転対称性に注目して回転座標表示 $\delta O^-(t) := \delta O_x - i\delta O_y$ を導入すると, 見通しが良い. さらに, 振動解 $\delta O(t) = \delta O(\omega)\exp(-i\omega t)$ を仮定すると, 次の式に変形される:

$$(\omega - \hat{\mathcal{A}}_{\mathrm{AF}}) \begin{bmatrix}\delta m^-(\omega) \\ \delta n^-(\omega)\end{bmatrix} = \begin{bmatrix}0 \\ 0\end{bmatrix} \tag{2.44}$$

ここで, 行列 $\hat{\mathcal{A}}_{\mathrm{AF}}$ は次式で与えられる:

$$\hat{\mathcal{A}}_{\mathrm{AF}} = \begin{bmatrix} \gamma H_0 & \gamma \mathfrak{h}_0 n_{\mathrm{eq}} K_0 \\ \gamma \mathfrak{h}_0 n_{\mathrm{eq}}(r_0 + D' n_{\mathrm{eq}}^2 + D m_{\mathrm{eq}}^2) & \gamma \mathfrak{h}_0 m_{\mathrm{eq}} \left(K_0 - D(m_{\mathrm{eq}}^2 - n_{\mathrm{eq}}^2)\right) \end{bmatrix} \tag{2.45}$$

行列式 $|\omega - \hat{\mathcal{A}}_{\mathrm{AF}}| = 0$ と置くことで, 反強磁性相のマグノン周波数を得る:

$$\begin{aligned} \omega_{\pm} = &\frac{1}{2}\left[\gamma H_0 + \gamma \mathfrak{h}_0 m_{\mathrm{eq}} \left(K_0 - D(m_{\mathrm{eq}}^2 - n_{\mathrm{eq}}^2)\right)\right] \\ &\pm \frac{1}{2}\sqrt{\left\{\gamma H_0 - \gamma \mathfrak{h}_0 m_{\mathrm{eq}} \left(K_0 - D(m_{\mathrm{eq}}^2 - n_{\mathrm{eq}}^2)\right)\right\}^2 + 4(\gamma \mathfrak{h}_0 n_{\mathrm{eq}})^2 K_0 (r_0 + D m_{\mathrm{eq}}^2 + D' n_{\mathrm{eq}}^2)} \end{aligned} \tag{2.46}$$

ω_+(α マグノンと呼ばれる事がある) は磁場増加とともに周波数が増大するが, ω_-(β マグノンと呼ばれる事がある) は磁場増加に伴って周波数が低下するモードである. 極性の観点では, 後の反強磁性共鳴実験で示すとおり, ω_+ が右巻きの極性 (Right Hand mode) と定義すると, ω_- は左巻きの極性 (Left Hand mode) となる. この極性と歳差運動の振幅の関係は付録で議論している.

スピンフロップ相のマグノン周波数

反強磁性相と同様の計算を行ってスピンフロップ相のマグノン周波数を計算できる. ただし, 反強磁性相とは異なり, スピンフロップ相では容易軸周りの回転対称性は失われるため, 容易軸周りの回転座標表示の導入は物理的に意味がない. その代わり, スピンフロップ相ではキャントしたスピン方向を量子化軸に取り直し, その周りの揺らぎを扱うことができる. しかし, 時間依存ギンツブルグ・ランダウ方程式は古典スピンを取り扱っているため, わざわざ形式美を追い求める必要はない. 従って, この節の計算では通常の座標表示で計算する.

スピンフロップ相では $\theta = \pi/2$ つまり $\boldsymbol{n}_{\mathrm{eq}} = n_{\mathrm{eq}}\hat{\boldsymbol{y}}$, $\boldsymbol{m}_{\mathrm{eq}} = m_{\mathrm{eq}}\hat{\boldsymbol{z}}$ である. これに注意し, 先程と同じように $\delta\boldsymbol{m} = \boldsymbol{m} - \boldsymbol{m}_{\mathrm{eq}}$, $\delta\boldsymbol{n} = \boldsymbol{n} - \boldsymbol{n}_{\mathrm{eq}}$ という平衡状態周りの揺らぎを考える. この際, $m_{\mathrm{eq}}, n_{\mathrm{eq}}$ は式 (2.23) と式 (2.24) において $\theta = \pi/2$ と置くことで計算される. 揺らぎ $\delta\boldsymbol{m}, \delta\boldsymbol{n}$ について時間依存ギンツブルグ・ランダウ方程式を線形化し, 振動解 $\delta O(t) = \delta O(\omega)\exp(-i\omega t)$ を仮定すると次式を得る:

$$(\omega - \hat{\mathcal{A}}_{\mathrm{QFMR}}) \begin{bmatrix} \delta m_x \\ \delta m_y \\ \delta n_z \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix}, \quad (\omega - \hat{\mathcal{A}}_{\mathrm{flat}}) \begin{bmatrix} \delta m_z \\ \delta n_x \\ \delta n_y \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix} \tag{2.47}$$

ここで, $\hat{\mathcal{A}}_{\mathrm{QFMR}}$, $\hat{\mathcal{A}}_{\mathrm{flat}}$ はそれぞれ quasi-ferromagnetic-resonace(QFMR), flat-mode の行列であり, 次式で定義する:

$$\hat{\mathcal{A}}_{\mathrm{QFMR}} = \begin{bmatrix} 0 & -i\gamma H_0 & -i\gamma \mathfrak{h}_0 n_{\mathrm{eq}} K_0 \\ i\gamma H_0 & 0 & 0 \\ -i\gamma \mathfrak{h}_0 n_{\mathrm{eq}} \chi_{\mathrm{SF}}^{-1} & 0 & 0 \end{bmatrix} \tag{2.48}$$

$$\hat{\mathcal{A}}_{\mathrm{flat}} = \begin{bmatrix} 0 & -i\gamma \mathfrak{h}_0 n_{\mathrm{eq}} K_1 & 0 \\ i\gamma \mathfrak{h}_0 n_{\mathrm{eq}}(\chi_{\mathrm{SF}}^{-1} - 2D' m_{\mathrm{eq}}^2) & 0 & 2i\gamma \mathfrak{h}_0 n_{\mathrm{eq}}^2 m_{\mathrm{eq}}(D' - b) \\ 0 & i\gamma \mathfrak{h}_0 m_{\mathrm{eq}} K_1 & 0 \end{bmatrix} \tag{2.49}$$

行列式 $|\omega - \hat{\mathcal{A}}_{\mathrm{QFMR}}| = 0$, 行列式 $|\omega - \hat{\mathcal{A}}_{\mathrm{flat}}| = 0$ と置くことで次のマグノン周波数を得る:

$$\omega_{\mathrm{QFMR}} = \sqrt{(\gamma H_0)^2 - (\gamma \mathfrak{h}_0 n_{\mathrm{eq}})^2 K_0/\chi_{\mathrm{SF}}} \tag{2.50}$$

$$\omega_{\mathrm{flat}} = \sqrt{K_1(\gamma \mathfrak{h}_0 n_{\mathrm{eq}})^2 \left\{1/\chi_{\mathrm{SF}} + 2m_{\mathrm{eq}}^2(u_4 - 2D')\right\}} \tag{2.51}$$

後の反強磁性共鳴実験で示すが, QFMR は強磁性マグノンと同じ極性を持っている．一方, flat モードは直線偏光に対応する．

以上でマグノン周波数の導出が完了した．図 2.9(a) は, 式 (2.46), 式 (2.50), 式 (2.51) をプロットした結果である．これは磁気共鳴による実験結果と整合している [88].

2.4.2 反強磁性共鳴実験によるマグノン極性の調査

前節では, 時間依存ギンツブルグ・ランダウ方程式を用いて解析的にマグノン周波数を導出した．ここでは, マグノンの極性を調査するために反強磁性共鳴実験のシミュレーションを実施する．このシミュレーションにより, (1) 反強磁性相の ω_+(いわゆる α マグノン) を右巻きの極性と定義すれば, ω_-(いわゆる β マグノン) は左巻きの極性, (2) スピンフロップ相の QFMR モードは ω_+(α マグノン) と同じ極性を持つ, ということが示される．

極性を利用した反強磁性共鳴実験を行うためには, 次の一軸異方性周りの回転磁場を用いれば良い:

$$\boldsymbol{h}_{\mathrm{ac}}(t) = h_{\mathrm{ac}}(\cos\omega_{\mathrm{ac}}t, \sin\omega_{\mathrm{ac}}t, 0) \tag{2.52}$$

磁気共鳴実験では非常に弱い振動磁場で系の応答を見ることが肝要であるから, 振幅 h_{ac} は十分に弱いとする．ω_{ac} は交流磁場の周波数であり, このシミュレーションでは $\omega_{\mathrm{ac}} > 0$ を右巻きの極性と定義する．反強磁性共鳴実験では, 吸収したエネルギーと等しい量のエネルギーが散逸されることで定常状態を実現する．この時, 反強磁性体に吸収された単位時間あたりの平均エネルギーは次式で計算される:

$$Q = -\left[\langle \boldsymbol{m}\rangle \cdot \frac{d\boldsymbol{h}_{\mathrm{ac}}(t)}{dt}\right]_{T_{\mathrm{ac}}} \tag{2.53}$$

ここで, $\langle \boldsymbol{m}\rangle$ は定常状態における磁化ベクトル, $T_{\mathrm{ac}} = |2\pi/\omega_{\mathrm{ac}}|$ は交流磁場 $\boldsymbol{h}_{\mathrm{ac}}(t)$ の振動周期である．Q を計算するために, 以下では時間依存ギンツブルグ・ランダウ方程式 [式 (2.2), 式 (2.1)] においてノイズと界面交換結合を無視してシミュレートする．この際, 自由エネルギーで $\boldsymbol{H}_0 \to \boldsymbol{H}_0 + \boldsymbol{h}_{\mathrm{ac}}$ として振動磁場を導入している．

吸収エネルギー Q の周波数依存性を計算した結果が図 2.9(c) に示されている．今, 反強磁性相において外部磁場を $H_0 = 0.4$ に固定する．この時, バンド図 (a) によると右巻きの極性を持つマグノン ω_+ は $\omega_{\mathrm{ac}}/\omega_{\mathrm{AFMR}} \sim 1.5$, 左巻きの極性を持つマグノン ω_- は $\omega_{\mathrm{ac}}/\omega_{\mathrm{AFMR}} \sim -0.5$ で共鳴ピークが現れる事が期待できる．実際, この振る舞いが図 2.9(c) の黄色のラインで確認できる．従って, ω_+ は右巻きの極性 (Right Hand の極性), ω_- は左巻きの極性 (Left Hand の極性) であることが示された．次に, スピンフロップ相において磁場を $H_0 = 1.0$ に固定する．この時, バンド図 (a) によると右巻きの極性を持つマグノン ω_{QFMR} は $\omega_{\mathrm{ac}}/\omega_{\mathrm{AFMR}} \sim 1.75$ で共鳴ピークが現れるはずである．この振る舞いは右巻きの極性を持つ振動磁場 ($\omega_{\mathrm{ac}} > 0$) でのみ現れているから, QFMR は ω_+ と同様に右巻きの極性を持つマグノンモードであることが分かる．

最後に, スピンフロップ相で存在する flat mode の極性について述べる．図 2.9(c) では, flat mode が図 (a) の対応する箇所で共鳴していないことが分かる．実は, flat モードは一軸異方性方向 (z 方向) の直線偏光に対応するため [89], 次の一方向の振動磁場で共鳴実験を行う必要がある:

$$\boldsymbol{h}_{\mathrm{ac}}(t) = h_{\mathrm{ac}}(\cos\omega_{\mathrm{ac}}t, 0, 0) \tag{2.54}$$

吸収エネルギー Q の周波数依存性を計算した結果が図 2.9(d) に示されている．この結果から, 非常に弱くブロードなピークがバンド図 (a) に対応した箇所で現れている事が分かる．この弱い共鳴

吸収の原因は, 式 (2.51) で表される flat mode が非常に弱い面内異方性 K_1 の平方根に比例しているためである.

以上の反強磁性共鳴のシミュレーションから, 反強磁性相に存在するマグノン ω_+, ω_- はそれぞれ右巻き及び左巻きの極性を持つことが示された. 一方, スピンフロップ相においては QFMR モードが ω_+ と同じ極性即ち右巻きの極性を持つこと, flat モードは直線偏光に対応した極性を持っていることが示された. これらの結果は, 反強磁性スピンゼーベック効果を論じる際に必要なマグノンの極性が, 時間依存ギンツブルグ・ランダウで適切に記述される事を表している.

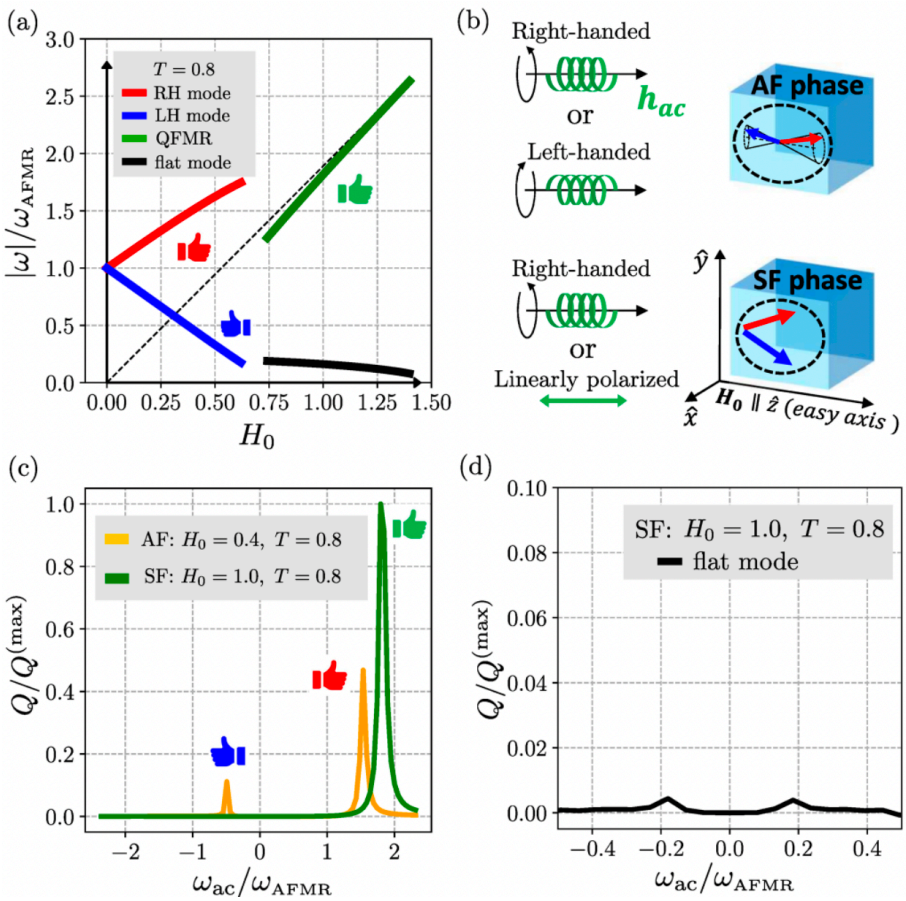

図 2.9 (a) 反強磁性マグノン周波数の磁場依存性. $\omega_- < 0$ のため, 絶対値をプロットしていることに注意してほしい. RH mode(赤色) は式 (2.46) の ω_+, LH mode(青色) は式 (2.46) の ω_-, QFMR(緑色) は式 (2.50), flat mode(黒色) は式 (2.51) をプロットした結果である. 縦軸はゼロ磁場におけるマグノン周波数 $\omega_{\mathrm{AFMR}} = \gamma\hbar_0 n_{\mathrm{eq}}\sqrt{K_0/\chi_\perp}$ で規格化されている. (b) 反強磁性共鳴の概念図. 右巻き ($\omega_{\mathrm{ac}} > 0$) 又は左巻き ($\omega_{\mathrm{ac}} < 0$) の振動磁場を与えてマグノンの極性を調べる. 極性が一致すれば, 大きな応答 (共鳴吸収) があると期待できる. flat モードは極性を持たないため, 直線偏光に対応する振動磁場で応答する. (c) 共鳴吸収エネルギーの周波数依存性. 反強磁性 (AF) 相では $H_0 = 0.4$, スピンフロップ (SF) 相では $H_0 = 1.0$ に設定して周波数を左巻き ($\omega_{\mathrm{ac}} < 0$) から右巻き ($\omega_{\mathrm{ac}} > 0$) まで調査している. 温度は $T = 0.8$ で固定している. (d)flat モードに対する振動磁場の共鳴吸収を拡大した図. Reprinted with permission from Ref [68]. Copyright (2022) by the American Physical Society.

第 3 章

スピンフロップ磁場より低磁場領域での反強磁性スピンゼーベック効果：解析計算

2019 年, Li 等は一軸異方性の反強磁性絶縁体 FeF_2 において反強磁性スピンゼーベック効果の測定を行った [5]. その結果, スピンゼーベック効果の温度依存性にはネール温度にピーク構造が存在する事を報告した. 一方で, ネール温度近傍に適用できる理論はこれまで存在せず, ピーク構造の由来は未解明とされている. そこで本研究では, 相転移近傍で有効なギンツブルグ・ランダウ模型に基づいて十分低磁場下の反強磁性スピンゼーベック効果の理論研究を行った. 研究の結果, ネール温度近傍における反強磁性スピンゼーベック効果は反強磁性スピン帯磁率に比例し, 温度依存性はこの因子に由来する事が示された. 反強磁性スピン帯磁率はネール温度にピーク構造を持つため, 反強磁性スピンゼーベック効果にもネール温度においてスピン帯磁率由来のピーク構造が現れる事が明らかとなった [69, 68]. この結果は, 上述の FeF_2 における実験結果 [5] と整合する. さらに, 本研究は反強磁性スピンゼーベック効果が磁場に比例する事を示した. これは, 反強磁性スピンゼーベック効果を観測するためには反強磁性体の時間反転対称性を破る必要がある事を示しており, これまでの一軸異方性の反強磁性絶縁体 MnF_2[67], FeF_2[5], Cr_2O_3[66, 6], α-Fe_2O_3[65] における実験結果と整合する. ゼロ磁場では有限な反強磁性スピンゼーベックが観測されない理由は, ゼロ磁場では α マグノンと β マグノンが縮退しており, 正味のスピン流がゼロとなってしまうからである.

モデルについては既に紹介しているが [式 (2.2), 式 (2.1), 式 (2.7)], 再掲しておく. 反強磁性スピン波を記述する時間依存ギンツブルグ・ランダウ方程式は次式で与えられる:

$$\frac{\partial}{\partial t}\boldsymbol{m} = \gamma \boldsymbol{H}_m \times \boldsymbol{m} + \gamma \boldsymbol{H}_n \times \boldsymbol{n} + \Gamma_m \boldsymbol{H}_m + \boldsymbol{\xi}(t) \tag{3.1}$$

$$\frac{\partial}{\partial t}\boldsymbol{n} = \gamma \boldsymbol{H}_n \times \boldsymbol{m} + \gamma \boldsymbol{H}_m \times \boldsymbol{n} + \Gamma_n \boldsymbol{H}_n + \boldsymbol{\eta}(t) \tag{3.2}$$

非磁性金属側の電子スピンの運動は次の Bloch 方程式で記述できる:

$$\frac{\partial}{\partial t}\boldsymbol{s} = \gamma \boldsymbol{H}_s \times \boldsymbol{s} + \frac{\chi_{\mathrm{M}}\gamma\hbar}{\tau_{\mathrm{M}}}\boldsymbol{H}_s + \boldsymbol{\zeta}(t) \tag{3.3}$$

ここで, $\boldsymbol{H}_m$, $\boldsymbol{H}_n$, $\boldsymbol{H}_s$ は自由エネルギーから計算される有効磁場である:

$$\boldsymbol{H}_m = -\frac{1}{\gamma\hbar}\frac{\delta}{\delta \boldsymbol{m}}\big(F_{\mathrm{AFI}} + F_{\mathrm{AFI\text{-}M}}\big),\ \boldsymbol{H}_n = -\frac{1}{\gamma\hbar}\frac{\delta}{\delta \boldsymbol{n}}\big(F_{\mathrm{AFI}} + F_{\mathrm{AFI\text{-}M}}\big) \tag{3.4}$$

$$\boldsymbol{H}_s = -\frac{1}{\gamma\hbar}\frac{\delta}{\delta\boldsymbol{n}}\left(F_{\mathrm{M}} + F_{\text{AFI-M}}\right) \tag{3.5}$$

反強磁性体と非磁性金属の自由エネルギーは, ぞれぞれ次式で与えられる:

$$F_{\mathrm{AFI}} = \epsilon_0 v_0 \left\{ \frac{u_2}{2}\boldsymbol{n}^2 + \frac{u_4}{4}(\boldsymbol{n}^2)^2 + \frac{K_0}{2}(\boldsymbol{n}\times\hat{\boldsymbol{z}})^2 + \frac{D'}{2}\boldsymbol{m}^2\boldsymbol{n}^2 + \frac{r_0}{2}\boldsymbol{m}^2 - \frac{\boldsymbol{H}_0}{\mathfrak{h}_0}\cdot\boldsymbol{m} \right\} \tag{3.6}$$

$$F_{\mathrm{M}} = \frac{1}{2\chi_{\mathrm{M}}}\boldsymbol{s}^2$$

ここではスピンフロップ転移を考慮しないので, 反強磁性体の自由エネルギーにおいて $D = 0$, $K_1 = 0$ とした. 界面の自由エネルギーは次式で与えられる:

$$F_{\text{AFI-M}} = \begin{cases} -J_{\mathrm{sd}}\boldsymbol{s}\cdot\boldsymbol{m} & \text{for magnetic coupling} \\ -J_{\mathrm{sd}}\boldsymbol{s}\cdot\boldsymbol{n} & \text{for Néel coupling} \end{cases} \tag{3.7}$$

最後に, 2.1 でも紹介したように, 式 (3.1), 式 (3.2), 式 (3.3) の最後の項にある熱ノイズ $\xi(t), \eta(t), \zeta(t)$ の統計的性質について再掲しておく.

$$\langle\xi^i(t)\rangle = 0, \quad \langle\xi^i(t)\xi^j(t')\rangle = \frac{2k_B T\Gamma_m}{\epsilon_0 v_0}\delta_{i,j}\delta(t-t') \tag{3.8}$$

$$\langle\eta^i(t)\rangle = 0, \quad \langle\eta^i(t)\eta^j(t')\rangle = \frac{2k_B T\Gamma_n}{\epsilon_0 v_0}\delta_{i,j}\delta(t-t') \tag{3.9}$$

$$\langle\zeta^i(t)\rangle = 0, \quad \langle\zeta^i(t)\zeta^j(t')\rangle = \frac{2k_B(T+\Delta T)\chi_{\mathrm{M}}}{\tau_{\mathrm{M}}}\delta_{i,j}\delta(t-t') \tag{3.10}$$

次節では, 最初にスピン流の定義を述べる. その語, magnetic coupling 及び Néel coupling それぞれの場合についてスピン変数を解く.

3.1 スピン流の定義

まずはスピンゼーベック効果において実際に観測される量について述べる．スピンゼーベック効果では, 非磁性金属に注入されたスピン流 I_s は逆スピンホール効果 (Inverse spin Hall effect) を通して電気信号に変換して観測される [32, 1]．この時に観測される (図 3.1 の x 方向の) ホール電圧 V_{ISHE} は, 式 (1.13) を書き直して次式で与えられる (ただし, V_{ISHE} は V_{SSE} と書かれる事もある):

$$V_{\mathrm{ISHE}} = \theta_{\mathrm{SH}}(|e|I_s)\frac{\rho}{w} \tag{3.11}$$

ここで, e[C] は電子の素電荷, $\rho[\Omega\cdot\mathrm{m}]$, w[m] はそれぞれ非磁性金属 (M) の電気抵抗率と試料の幅である [図 3.1]．本研究では, 上の表式に現れるスピン流 I_s を評価する．

次にスピン流 I_s を定義する．スピンゼーベック効果では, 磁性スピンのブラウン運動を使って非磁性金属にスピン蓄積を生成するため, 非磁性金属のスピン s を使って定義するのが自然である．具体的には, 非磁性金属スピンの時間変化率の統計平均とする:

$$I_s = \left\langle \frac{\partial s_z}{\partial t} \right\rangle \tag{3.12}$$

統計平均を取るのは, 熱揺動が入っているからである．さらに, マグノンの運ぶスピン偏極方向が z 方向であるから, z 方向のスピン密度 s_z を使って定義した．上記のスピン流の定義は, 電流が $I \propto \partial\rho/\partial t$ で与えられることのアナロジーで理解できる．しかし, スピン角運動量は主にスピン軌道相互作用を通してスピンフリップを起こすため保存量ではない．この点で, 電流とは本質的に異なる物理量であることに注意しなければならない．特に, 接合系では非磁性金属内だけでなく接合界面で働くスピン軌道相互作用を通してスピン流が散逸する事が知られている [90, 91]．これはスピンメモリーロスと呼ばれているが, 本研究ではこれは十分に小さいと仮定する．

次に, 式 (3.12) で定義したスピン流をより具体的な形に書き直す．式 (2.7)(Bloch 方程式) の z 成分において, スピン輸送を介する界面交換結合に着目すると

$$I_s \approx \begin{cases} \frac{J_{\mathrm{sd}}}{\hbar}\langle m_x(t)s_y(t) - s_x(t)m_y(t)\rangle & \text{for magnetic coupling} \\ \frac{J_{\mathrm{sd}}}{\hbar}\langle n_x(t)s_y(t) - s_x(t)n_y(t)\rangle & \text{for Néel coupling} \end{cases} \tag{3.13}$$

つまり, スピン流を計算するには反強磁性スピンと非磁性金属スピンの相関関数を計算すれば良い．

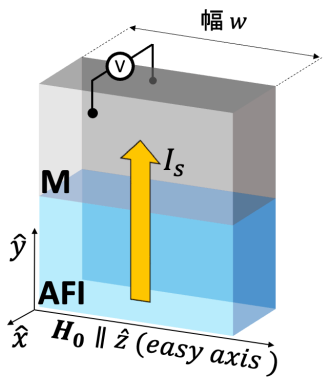

図 3.1　反強磁性体と非磁性金属の接合系で流れるスピン流.

3.2 スピン変数の計算

スピン流を計算するためには式 (3.13) に現れるスピン変数を求める必要がある．そこで，この節では実際にスピン変数を求める．

スピン変数 $\boldsymbol{m}, \boldsymbol{n}, \boldsymbol{s}$ が $\boldsymbol{m} = \boldsymbol{m}_{\mathrm{eq}} + \delta\boldsymbol{m}, \boldsymbol{n} = \boldsymbol{n}_{\mathrm{eq}} + \delta\boldsymbol{n}, \boldsymbol{s} = \boldsymbol{s}_{\mathrm{eq}} + \delta\boldsymbol{s}$ のように平衡状態から微小に揺らいでいる状況を考える．この時，有効磁場 $\boldsymbol{H}_m, \boldsymbol{H}_n, \boldsymbol{H}_s$ は，揺らぎに関する一次の摂動まで考慮すると次式で与えられる:

$$\begin{aligned}
\boldsymbol{H}_m &= -\mathfrak{h}_0(r_0\boldsymbol{m} - \boldsymbol{H}_0/\mathfrak{h}_0 + D'\boldsymbol{n}^2\boldsymbol{m}) + \frac{J_m}{\gamma\hbar}\boldsymbol{s} \\
&\approx -\mathfrak{h}_0(r_0 + D'n_{\mathrm{eq}}^2)\delta\boldsymbol{m} + \frac{J_m}{\gamma\hbar}\delta\boldsymbol{s} \qquad (3.14)\\
\boldsymbol{H}_n &= -\mathfrak{h}_0(u_2\boldsymbol{n} + u_4\boldsymbol{n}^3 + K_0 n_x\hat{\boldsymbol{x}} + K_0 n_y\hat{\boldsymbol{y}} + D'\boldsymbol{m}^2\boldsymbol{n}) + \frac{J_n}{\gamma\hbar}\boldsymbol{s} \\
&= -\mathfrak{h}_0(K_0\delta n_x\hat{\boldsymbol{x}} + K_0\delta n_y\hat{\boldsymbol{y}}) + \frac{J_n}{\gamma\hbar}\delta\boldsymbol{s} \qquad (3.15)\\
\boldsymbol{H}_s &= \frac{1}{\gamma\hbar}\left(\chi_{\mathrm{M}}^{-1}\delta\boldsymbol{s} - J_m\delta\boldsymbol{m} - J_n\delta\boldsymbol{n}\right) \qquad (3.16)
\end{aligned}$$

ここで，非磁性金属スピンの平衡状態は，Néel coupling の場合には $\boldsymbol{s}_{\mathrm{eq}} = \chi_{\mathrm{M}}J_n\boldsymbol{n}_{\mathrm{eq}}$, magnetic coupling の場合には $\boldsymbol{s}_{\mathrm{eq}} = \chi_{\mathrm{M}}J_m\boldsymbol{m}_{\mathrm{eq}}$ となる事を用いた．また，反強磁性体の平衡状態を決定する式 (2.23) 及び式 (2.24) において $D = 0, \theta = 0$ とおいた式を用いた．界面交換結合については，Néel coupling の場合には $J_{\mathrm{sd}} = J_n$, magnetic coupling の場合には $J_{\mathrm{sd}} = J_m$ と書いて区別できるようにし，まとめて計算していることに注意されたい．式 (3.14), 式 (3.15), 式 (3.16) を式 (3.1), 式 (3.2), 式 (3.3) に代入すると次式を得る:

$$\begin{aligned}
\frac{\partial}{\partial t}\begin{bmatrix}\delta m_x\\ \delta m_y\end{bmatrix} &= \frac{J_m}{\hbar}m_{\mathrm{eq}}\begin{bmatrix}\delta s_y\\ -\delta s_x\end{bmatrix} + \frac{J_n}{\hbar}n_{\mathrm{eq}}\begin{bmatrix}\delta s_y\\ -\delta s_x\end{bmatrix} + \gamma H_0\begin{bmatrix}-\delta m_y\\ \delta m_x\end{bmatrix} + \gamma\mathfrak{h}_0 n_{\mathrm{eq}}K_0\begin{bmatrix}-\delta n_y\\ \delta n_x\end{bmatrix} \\
&\quad - \Gamma_m\chi_{\parallel}^{-1}\begin{bmatrix}\delta m_x\\ \delta m_y\end{bmatrix} + \frac{\Gamma_m J_m}{\gamma\hbar\mathfrak{h}_0}\begin{bmatrix}\delta s_x\\ \delta s_y\end{bmatrix} + \begin{bmatrix}\xi_x\\ \xi_y\end{bmatrix} \qquad (3.17)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\frac{\partial}{\partial t}\begin{bmatrix}\delta n_x\\ \delta n_y\end{bmatrix} &= \frac{J_m}{\hbar}n_{\mathrm{eq}}\begin{bmatrix}\delta s_y\\ -\delta s_x\end{bmatrix} + \frac{J_n}{\hbar}m_{\mathrm{eq}}\begin{bmatrix}\delta s_y\\ -\delta s_x\end{bmatrix} + \gamma\mathfrak{h}_0 n_{\mathrm{eq}}\chi_{\parallel}^{-1}\begin{bmatrix}-\delta m_y\\ \delta m_x\end{bmatrix} + \gamma\mathfrak{h}_0 m_{\mathrm{eq}}K_0\begin{bmatrix}-\delta n_y\\ \delta n_x\end{bmatrix} \\
&\quad - \Gamma_n K_0\begin{bmatrix}\delta n_x\\ \delta n_y\end{bmatrix} + \frac{\Gamma_n J_n}{\gamma\hbar\mathfrak{h}_0}\begin{bmatrix}\delta s_x\\ \delta s_y\end{bmatrix} + \begin{bmatrix}\eta_x\\ \eta_y\end{bmatrix} \qquad (3.18)
\end{aligned}$$

$$\frac{\partial}{\partial t}\begin{bmatrix}\delta s_x\\ \delta s_y\end{bmatrix} = -\frac{1}{\tau_{\mathrm{M}}}\begin{bmatrix}\delta s_x - \chi_{\mathrm{M}}J_m\delta m_x - \chi_{\mathrm{M}}J_n\delta n_x\\ \delta s_y - \chi_{\mathrm{M}}J_m\delta m_y - \chi_{\mathrm{M}}J_n\delta n_y\end{bmatrix} + \begin{bmatrix}\zeta_x\\ \zeta_y\end{bmatrix} \qquad (3.19)$$

ただし，この節の解析計算においては反強磁性体の平行スピン帯磁率を $\chi_{\parallel} = (r_0 + D'n_{\mathrm{eq}}^2)^{-1}$ と定義している事に注意してほしい．

今の自由エネルギーは一軸異方性の周りで回転対称性を持つため，回転座標表示 $\delta O^{\pm} = \delta O_x \pm \delta O_y$ を導入すると後の計算が簡易になる:

$$\begin{aligned}
\frac{\partial}{\partial t}\delta m^{\pm} &= \mp i\frac{J_m}{\hbar}m_{\mathrm{eq}}\delta s^{\pm} \mp i\frac{J_n}{\hbar}n_{\mathrm{eq}}\delta s^{\pm} \pm i\gamma H_0\delta m^{\pm} \pm i\gamma\mathfrak{h}_0 n_{\mathrm{eq}}K_0\delta n^{\pm} \\
&\quad - \Gamma_m\chi_{\parallel}^{-1}\delta m^{\pm} + \frac{\Gamma_m J_m}{\gamma\hbar\mathfrak{h}_0}\delta s^{\pm} + \xi^{\pm} \qquad (3.20)
\end{aligned}$$

$$\frac{\partial}{\partial t}\delta n^{\pm} = \mp i\frac{J_m}{\hbar}n_{\rm eq}\delta s^{\pm} \mp i\frac{J_n}{\hbar}m_{\rm eq}\delta s^{\pm} \pm \gamma\mathfrak{h}_0 n_{\rm eq}\chi_{\parallel}^{-1}\delta m^{\pm} \pm \gamma\mathfrak{h}_0 m_{\rm eq}K_0\delta n^{\pm} - \Gamma_n K_0\delta n^{\pm} + \frac{\Gamma_n J_n}{\gamma\hbar\mathfrak{h}_0}\delta s^{\pm} + \eta^{\pm} \tag{3.21}$$

$$\frac{\partial}{\partial t}\delta s^{\pm} = -\frac{1}{\tau_{\rm M}}(\delta s^{\pm} - \chi_{\rm M}J_m\delta m^{\pm} - \chi_{\rm M}J_n\delta n^{\pm}) + \zeta^{\pm} \tag{3.22}$$

ここで導入された回転座標表示のスピン変数は, 昇降演算子に対応する. 例えば, δm^- について演算子の観点から物理的な意味を考えてみる. 副格子 A 及び B の古典スピンで書けば $\delta m^- = \delta S_{\rm A}^- + \delta S_{\rm B}^-$ となる. $\delta S_{\rm A}^-$ は A 副格子の磁気量子数を 1 だけ下げ, $\delta S_{\rm B}^-$ は B 副格子の磁気量子数を 1 だけ増加させる役割を持つ. 従って, これらの線形結合である δm^- は正味どれだけの磁気量子数が変化したかを表す.

次に, Fourier 変換 $\delta O^{\pm} = \int_{-\infty}^{\infty}\frac{d\omega}{2\pi}\delta O^{\pm}(\omega)\exp(-i\omega t)$ を導入して式を整理すると次式を得る:

$$\omega\begin{bmatrix}\delta m_\omega^{\pm}\\ \delta n_\omega^{\pm}\end{bmatrix} = \begin{bmatrix}a & b\\ c & d\end{bmatrix}\begin{bmatrix}\delta m_\omega^{\pm}\\ \delta n_\omega^{\pm}\end{bmatrix} + \begin{bmatrix}i\xi^{\pm}(\omega)\\ i\eta^{\pm}(\omega)\end{bmatrix} + \begin{bmatrix}\pm\frac{J_m}{\hbar}m_{\rm eq} + i\frac{\Gamma_m J_m}{\gamma\hbar\mathfrak{h}_0} \pm \frac{J_n}{\hbar}n_{\rm eq}\\ \pm\frac{J_n}{\hbar}m_{\rm eq} + i\frac{\Gamma_n J_n}{\gamma\hbar\mathfrak{h}_0} \pm \frac{J_m}{\hbar}n_{\rm eq}\end{bmatrix}\delta s_\omega^{\pm} \tag{3.23}$$

$$\delta s^{\pm}(\omega) = g(\omega)i\zeta^{\pm}(\omega) + g(\omega)\left[\frac{\chi_M J_m}{\tau_M}i\delta m_\omega^{\pm} + \frac{\chi_M J_n}{\tau_M}i\delta n_\omega^{\pm}\right] \tag{3.24}$$

ただし,

$$\begin{bmatrix}a & b\\ c & d\end{bmatrix} = \begin{bmatrix}\pm\gamma H_0 - i\Gamma_m\chi_{\parallel}^{-1} & \pm\omega_0 n_{\rm eq}K_0\\ \pm\omega_0 n_{\rm eq}\chi_{\parallel}^{-1} & \pm\omega_0 m_{\rm eq}K_0 - i\Gamma_n K_0\end{bmatrix} \tag{3.25}$$

であり, $g(\omega) := (\omega + i\tau_{\rm M}^{-1})$ は非磁性金属スピンの応答関数である. スピン変数 $\delta m^{\pm}(\omega), \delta n^{\pm}(\omega), \delta s^{\pm}(\omega)$ を界面交換結合 $J_{\rm sd}$ について摂動的に解くと次式を得る:

(1) magnetic coupling の場合:

$$\begin{bmatrix}\delta m_\omega^{\pm}\\ \delta n_\omega^{\pm}\end{bmatrix} = \begin{bmatrix}G_m^{\pm}(\omega) & G_n^{\pm}(\omega)\\ F_n^{\pm}(\omega) & F_m^{\pm}(\omega)\end{bmatrix}\left\{\begin{bmatrix}i\xi^{\pm}(\omega)\\ i\eta^{\pm}(\omega)\end{bmatrix} + \begin{bmatrix}\pm\frac{J_{\rm sd}}{\hbar}m_{\rm eq} + i\frac{\Gamma_m J_{\rm sd}}{\gamma\hbar\mathfrak{h}_0}\\ \pm\frac{J_{\rm sd}}{\hbar}n_{\rm eq}\end{bmatrix}g(\omega)i\zeta^{\pm}(\omega)\right\} \tag{3.26}$$

$$\delta s^{\pm}(\omega) = g(\omega)\left\{i\zeta^{\pm}(\omega) + \frac{\chi_M J_{\rm sd}}{\tau_M}i\left(G_m^{\pm}(\omega)i\xi^{\pm}(\omega) + G_n^{\pm}(\omega)i\eta^{\pm}(\omega)\right)\right\} \tag{3.27}$$

(1) Néel coupling の場合:

$$\begin{bmatrix}\delta m_\omega^{\pm}\\ \delta n_\omega^{\pm}\end{bmatrix} = \begin{bmatrix}G_m^{\pm}(\omega) & G_n^{\pm}(\omega)\\ F_n^{\pm}(\omega) & F_m^{\pm}(\omega)\end{bmatrix}\left\{\begin{bmatrix}i\xi^{\pm}(\omega)\\ i\eta^{\pm}(\omega)\end{bmatrix} + \begin{bmatrix}\pm\frac{J_{\rm sd}}{\hbar}n_{\rm eq}\\ \pm\frac{J_{\rm sd}}{\hbar}m_{\rm eq} + i\frac{\Gamma_n J_{\rm sd}}{\gamma\hbar\mathfrak{h}_0}\end{bmatrix}g(\omega)i\zeta^{\pm}(\omega)\right\} \tag{3.28}$$

$$\delta s^{\pm}(\omega) = g(\omega)\left\{i\zeta^{\pm}(\omega) + \frac{\chi_M J_{\rm sd}}{\tau_M}i\left(F_n^{\pm}(\omega)i\xi^{\pm}(\omega) + F_m^{\pm}(\omega)i\eta^{\pm}(\omega)\right)\right\} \tag{3.29}$$

ここで,

$$\begin{bmatrix}G_m^{-}(\omega) & G_n^{-}(\omega)\\ F_n^{-}(\omega) & F_m^{-}(\omega)\end{bmatrix} = \frac{1}{(\omega-\omega_+)(\omega-\omega_-)}\begin{bmatrix}\omega - d & b\\ c & \omega - a\end{bmatrix} \tag{3.30}$$

$$(3.31)$$

$$\begin{bmatrix} G_m^+(\omega) & G_n^+(\omega) \\ F_n^+(\omega) & F_m^+(\omega) \end{bmatrix} = \frac{1}{(\omega+\omega_+^*)(\omega+\omega_-^*)} \begin{bmatrix} \omega+d^* & -b^* \\ -c^* & \omega+a^* \end{bmatrix} \tag{3.32}$$

は反強磁性スピンの応答関数である．式中の $\omega_\pm$ は右巻き"+"及び左巻き"-"の極性を持つ反強磁性マグノン周波数であり, 式 (3.1), 式 (3.2) の固有方程式 $\lambda^2-(a+d)\lambda+(ad-bc)=0$ の解である．

最後に, 例として magnetic coupling の場合のスピン変数式 (3.26) 及び式 (3.27) を取り上げて, 物理的な意味を述べる．式 (3.26) の第一項は, 反強磁性体の動的応答関数と熱ノイズの積となっている．これは, 反強磁性スピンが熱ノイズの場を感じて応答関数と熱ノイズの積で応答している (ランダムに揺らいでいる) 描像を表している．これは, 熱マグノンの生成に相当する．ただし, 今の場合は界面交換結合 $J_{\rm sd}$ を介して隣接する非磁性金属スピンの揺らぎも感じているため, 式 (3.26) の第二項には $J_{\rm sd}i\zeta(\omega)$ のように隣接物質の熱ノイズも含まれることになる．同様に, 式 (3.27) の第一項は非磁性金属スピンが熱ノイズを感じて応答している事を表しているが, 界面交換結合の存在によって隣接物質の熱ノイズ ξ,ζ も場として感じて応答している．以上から, スピン変数が隣接物質の温度情報も感じながらブラウン運動している事が理解できる．従って, 反強磁性スピンと非磁性金属スピンの相関を計算すれば, 有限な物理量 (後にこれはスピン流であることが分かる) が得られることが期待できる．

3.3 熱白色ノイズの周波数表示

スピン変数を界面交換結合 $J_{\rm sd}$ について解くと, magnetic coupling の場合では式 (3.26), 式 (3.27), Néel coupling の場合には式 (3.28), 式 (3.29) が得られた．後のスピン流の計算では, 反強磁性スピンと非磁性金属スピンの周波数空間における相関を計算しなければならないため, ここで周波数空間における熱ノイズの統計的性質を述べておく [92]．ただし, ξ,η,ζ は全てガウシアンホワイトノイズであるから $\boldsymbol{\xi}$ の x 成分 ξ_x のみ解析すれば十分である．

$\xi^x(t)$ の相関関数は,

$$\langle \xi_x(t)\xi_x(t')\rangle = \frac{2k_BT\Gamma_m}{\epsilon_0 v_0}\delta(t-t') \tag{3.33}$$

周波数表示に移るために, この式の左辺を $\xi_x(t)=\int_{-\infty}^{\infty}\xi_x(\omega)\,e^{-i\omega t}$ を用いてフーリエ変換する：

$$\langle \xi_x(t)\xi_x(t')\rangle = \int_\omega\int_{\omega'}\langle \xi_x(\omega)\xi_x(\omega')\rangle\, e^{-i(\omega t+\omega' t')} \tag{3.34}$$

この熱揺らぎ場の時間相関は, 式 (3.33) の右辺から時間について並進対称性を持つため, 上式右辺の時間依存部分 $e^{-i(\omega t+\omega' t')}$ も時間並進対称性を持たなければならない．従って, 次の式が要請される:

$$\langle \xi_x(\omega)\xi_x(\omega')\rangle = 2\pi\delta(\omega+\omega')\,\langle\langle \xi_x(\omega)\xi_x(-\omega)\rangle\rangle \tag{3.35}$$

ここで, $\langle\langle \xi_x(\omega)\xi_x(-\omega)\rangle\rangle$ は熱ノイズのスペクトル強度を表す．この強度を求めるために, 式 (3.35)

を式 (3.34) に代入する：

$$
\begin{aligned}
\langle \xi_x(t)\xi_x(t')\rangle &= \int_{-\infty}^{\infty}\frac{d\omega}{2\pi}\int_{-\infty}^{\infty}\frac{d\omega'}{2\pi}\langle \xi_x(\omega)\xi_x(\omega')\rangle\, e^{-i(\omega t+\omega' t')} \\
&= \int_{-\infty}^{\infty}\frac{d\omega}{2\pi}\int_{-\infty}^{\infty}\frac{d\omega'}{2\pi}2\pi\delta(\omega+\omega')\,\langle\langle \xi_x(\omega)\xi_x(-\omega)\rangle\rangle\, e^{-i(\omega t+\omega' t')} \\
&= \int_{-\infty}^{\infty}\frac{d\omega}{2\pi}\,\langle\langle \xi_x(\omega)\xi_x(-\omega)\rangle\rangle\, e^{-i\omega(t-t')} \qquad (3.36)
\end{aligned}
$$

一方, 式 (3.33) の右辺は次のようにフーリエ変換される:

$$
\frac{2k_BT\Gamma_m}{\epsilon_0 v_0}\delta(t-t') = \frac{2k_BT\Gamma_m}{\epsilon_0 v_0}\int_{-\infty}^{\infty}\frac{d\omega}{2\pi}e^{-i\omega(t-t')} \qquad (3.37)
$$

式 (3.36) 及び式 (3.37) は等しいため, ノイズのスペクトル強度はすぐに得られる:

$$
\langle\langle \xi_x(\omega)\xi_x(-\omega)\rangle\rangle = \frac{2k_BT\Gamma_m}{\epsilon_0 v_0} \qquad (3.38)
$$

以上はホワイトノイズについて一般に成り立つため, η, ζ についても同様の統計的性質が得られる. それを以下にまとめる.

$$
\langle \xi_i(\omega)\rangle = 0 \qquad (3.39)
$$

$$
\langle\langle \xi_i(\omega)\xi_j(-\omega)\rangle\rangle = \frac{2k_BT\Gamma_m}{\epsilon_0 v_0}\delta_{i,j} \qquad (3.40)
$$

$$
\langle \xi_i(\omega)\rangle = 0 \qquad (3.41)
$$

$$
\langle\langle \eta_i(\omega)\eta_j(-\omega)\rangle\rangle = \frac{2k_BT\Gamma_n}{\epsilon_0 v_0}\delta_{i,j} \qquad (3.42)
$$

$$
\langle \zeta_i(\omega)\rangle = 0 \qquad (3.43)
$$

$$
\langle\langle \zeta_i(\omega)\zeta_j(-\omega)\rangle\rangle = \frac{2k_B(T+\Delta T)\chi_{\mathrm{M}}}{\tau_{\mathrm{M}}}\delta_{i,j} \qquad (3.44)
$$

ただし, i, j は x, y, z のいずれかを指し, $\delta_{i,j}$ は $i = j$ の時のみ 1 を返し, それ以外は 0 である. また, 異なる熱揺らぎ場の間には相関が無いこと (例えば $\langle \xi(t)\zeta(t)\rangle = 0$ であること) を仮定しておく.

後のスピン流の計算は回転座標表示で行われるため, 熱揺らぎ場についても回転座標表示における統計的性質を調べておく必要がある. まずは, $\xi^{\pm}(\omega) = \xi^x \pm i\xi^y$ に着目して解析しておく. $\xi^{\pm}(\omega)$ の統計平均は次式のようになる.

$$
\begin{aligned}
\langle \xi^{\pm}\rangle &= \langle \xi_x(\omega)\rangle \pm i\langle \xi_y(\omega)\rangle \\
&= 0
\end{aligned}
$$

ただし, 式 (3.39) を用いた. 次に, $\langle\langle \xi^-(\omega)\xi^+(-\omega)\rangle\rangle$ を求める.

$$
\left\langle\left\langle \xi^-(\omega)\xi^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle = \langle\langle(\xi_x(\omega) - i\xi_y(\omega))(\xi_x(\omega) + i\xi_y(\omega))\rangle\rangle
$$

$$
\begin{aligned}
&= \langle\langle \xi_x(\omega)\xi_x(-\omega)\rangle\rangle + \langle\langle \xi_y(\omega)\xi_y(-\omega)\rangle\rangle \\
&= \frac{4k_BT\Gamma_m}{\epsilon_0 v_0}
\end{aligned} \tag{3.45}
$$

ただし, 式 (3.40) を用いた. 同様の計算を熱揺らぎ場 η, ζ について行うと次の関係式を得る:

$$
\begin{aligned}
\left\langle\left\langle \eta^-(\omega)\eta^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle &= \langle\langle (\eta_x(\omega) - i\eta_y(\omega))(\eta_x(\omega) + i\eta y(\omega))\rangle\rangle \\
&= \langle\langle \eta_x(\omega)\eta_x(-\omega)\rangle\rangle + \langle\langle \eta_y(\omega)\eta_y(-\omega)\rangle\rangle \\
&= \frac{4k_BT\Gamma_n}{\epsilon_0 v_0}
\end{aligned} \tag{3.46}
$$

$$
\begin{aligned}
\left\langle\left\langle \zeta^-(\omega)\zeta^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle &= \langle\langle (\zeta_x(\omega) - i\zeta_y(\omega))(\zeta_x(\omega) + i\zeta_y(\omega))\rangle\rangle \\
&= \langle\langle \zeta_x(\omega)\zeta_x(-\omega)\rangle\rangle + \langle\langle \zeta_y(\omega)\zeta_y(-\omega)\rangle\rangle \\
&= \frac{4k_B(T+\Delta T)\chi_{\mathrm{M}}}{\tau_{\mathrm{M}}}
\end{aligned} \tag{3.47}
$$

3.4 スピン流の計算

この節では, 前節で求めたスピン変数の表式を用いてスピン流の計算を行う. 最初に界面交換結合が magnetic coupling の場合, 次に Néel coupling の場合のスピン流を計算する.

3.4.1 magnetic coupling の場合

magnetic coupling の場合, 式 (3.12) で定義されるスピン流は次のように変形される:

$$
\begin{aligned}
I_s &= \left\langle \frac{\partial s_z}{\partial t} \right\rangle \\
&\approx \frac{J_{\mathrm{sd}}}{\hbar} \langle \delta m_x(t)\delta s_y(t) - \delta s_x(t)\delta m_y(t)\rangle \quad (\because \text{z component of the Bloch eq.}) \\
&= \frac{J_{\mathrm{sd}}}{\hbar}\frac{1}{4i} \left\langle (\delta m^+(t) + \delta m^-(t))\cdot(\delta s^+(t) - \delta s^-(t)) - (\delta m^+(t) - \delta m^-(t))\cdot(\delta s^+(t) + \delta s^-(t))\right\rangle \\
&= \frac{J_{\mathrm{sd}}}{\hbar}\frac{1}{4i} \left\langle (\delta m^+(t)\delta s^+(t) - \delta m^+(t)\delta s^-(t) + \delta m^-(t)\delta s^+(t) - \delta m^-(t)\delta s^-(t)) \right. \\
&\quad \left. -(\delta m^+(t)\delta s^+(t) + \delta m^+(t)\delta s^-(t) - \delta m^-(t)\delta s^+(t) - \delta m^-(t)\delta s^-(t))\right\rangle \\
&= \frac{J_{\mathrm{sd}}}{\hbar}\frac{1}{2i} \left\langle \delta m^-(t)\delta s^+(t) - \delta m^+(t)\delta s^-(t)\right\rangle \\
&= \frac{J_{\mathrm{sd}}}{\hbar}\mathrm{Im}\left\langle \delta m^-(t)\delta s^+(t)\right\rangle \\
&= \frac{J_{\mathrm{sd}}}{\hbar}\mathrm{Im}\left\langle \int_{-\infty}^{\infty}\frac{d\omega}{2\pi}\delta m^-(\omega)e^{-i\omega t}\cdot\int_{-\infty}^{\infty}\frac{d\omega'}{2\pi}\delta s^+(\omega')e^{-i\omega' t}\right\rangle \\
&= \frac{J_{\mathrm{sd}}}{\hbar}\int_{-\infty}^{\infty}\frac{d\omega}{2\pi}\int_{-\infty}^{\infty}\frac{d\omega'}{2\pi}\mathrm{Im}\left[\left\langle \delta m^-(\omega)\delta s^+(\omega')\right\rangle e^{-i\omega t - i\omega' t}\right] \\
&= \frac{J_{\mathrm{sd}}}{\hbar}\int_{-\infty}^{\infty}\frac{d\omega}{2\pi}\int_{-\infty}^{\infty}\frac{d\omega'}{2\pi}2\pi\delta(\omega+\omega')\mathrm{Im}\left[\left\langle\left\langle \delta m^-(\omega)\delta s^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle e^{-i\omega t - i\omega' t}\right] \\
&\quad (\because \left\langle \delta m^-(\omega)\delta s^+(\omega')\right\rangle = 2\pi\delta(\omega+\omega')\left\langle\left\langle \delta m^-(\omega)\delta s^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle \quad) \\
&= \frac{J_{\mathrm{sd}}}{\hbar}\int_{-\infty}^{\infty}\frac{d\omega}{2\pi}\mathrm{Im}\left\langle\left\langle \delta m^-(\omega)\delta s^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle
\end{aligned} \tag{3.48}
$$

ここで, 3 行目の等式でスピン変数の回転座標表示 $\delta O^{\pm} = \delta O_x \pm i\delta O_y$ を用いた. 古典スピンを演算子と見なせば, 上式における相関は反強磁性マグノンの生成と非磁性金属スピンの生成が関係していることを意味している.

次に, 既に求めているスピン変数 [式 (3.26), 式 (3.27)] を用いて $\langle\langle \delta m^-(\omega)\delta s^+(-\omega)\rangle\rangle$ を計算する:

$$
\begin{aligned}
\left\langle\left\langle \delta m^-(\omega)\delta s^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle = \Bigg\langle\Bigg\langle\Bigg[& G_m^-(\omega) i\xi^-(\omega) + G_n(\omega) i\eta^-(\omega) \\
& + \left\{ \left(-\frac{J_{\mathrm{sd}}}{\hbar} m_{\mathrm{eq}} + i\frac{\Gamma_m J_{\mathrm{sd}}}{\gamma\hbar\mathfrak{h}_0} \right) G_m^-(\omega) - \frac{J_{\mathrm{sd}}}{\hbar} n_{\mathrm{eq}} G_n^-(\omega) \right\} g(\omega) i\zeta^-(\omega) \Bigg] \\
& \times \Bigg[- g^*(\omega) i\zeta^+(-\omega) - g^*(\omega)\frac{\chi_M J_{\mathrm{sd}}}{\tau_M} i \\
& \times \left\{ (G_m^-(\omega))^* i\xi^+(-\omega) + (G_n^-(\omega))^* i\eta^+(-\omega) \right\} \Bigg] \Bigg\rangle\Bigg\rangle \\
= & -\frac{\chi_{\mathrm{M}} J_{\mathrm{sd}}}{\tau_{\mathrm{M}}} i g^*(\omega) |G_m^-(\omega|^2 \left\langle\left\langle \xi^-(\omega)\xi^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle \\
& - \frac{\chi_{\mathrm{M}} J_{\mathrm{sd}}}{\tau_{\mathrm{M}}} i g^*(\omega) |G_n^-(\omega|^2 \left\langle\left\langle \eta^-(\omega)\eta^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle \\
& + \left(-\frac{J_{\mathrm{sd}}}{\hbar} m_{\mathrm{eq}} + \frac{\Gamma_m J_{\mathrm{sd}}}{\gamma\hbar\mathfrak{h}_0} i \right) G_m^-(\omega) |g(\omega)|^2 \left\langle\left\langle \zeta^-(\omega)\zeta^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle \\
& - \frac{J_{\mathrm{sd}}}{\hbar} n_{\mathrm{eq}} G_n^-(\omega) |g(\omega)|^2 \left\langle\left\langle \zeta^-(\omega)\zeta^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle
\end{aligned}
\tag{3.49}
$$

次に, $\langle\langle \delta m^-(\omega)\delta s^+(-\omega)\rangle\rangle$ の虚部を計算する.

$$
\begin{aligned}
& \mathrm{Im}\left\langle\left\langle \delta m^-(\omega)\delta s^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle \qquad (3.50) \\
= & -\frac{\chi_{\mathrm{M}} J_{\mathrm{sd}}}{\tau_{\mathrm{M}}} \mathrm{Re}[(g^*(\omega))] |G_m^-(\omega|^2 \left\langle\left\langle \xi^-(\omega)\xi^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle \\
& - \frac{\chi_{\mathrm{M}} J_{\mathrm{sd}}}{\tau_{\mathrm{M}}} \mathrm{Re}[(g^*(\omega))] |G_n^-(\omega|^2 \left\langle\left\langle \eta^-(\omega)\eta^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle \\
& + \left(-\frac{J_{\mathrm{sd}}}{\hbar} m_{\mathrm{eq}} \mathrm{Im}[G_m^-(\omega)] + \frac{\Gamma_m J_{\mathrm{sd}}}{\gamma\hbar\mathfrak{h}_0} \mathrm{Re}[G_m^-(\omega)] \right) |g(\omega)|^2 \left\langle\left\langle \zeta^-(\omega)\zeta^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle \\
& - \frac{J_{\mathrm{sd}}}{\hbar} n_{\mathrm{eq}} \mathrm{Im}[G_n^-(\omega)] |g(\omega)|^2 \left\langle\left\langle \zeta^-(\omega)\zeta^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle \\
= & -\frac{\chi_{\mathrm{M}} J_{\mathrm{sd}}}{\tau_{\mathrm{M}}} \omega |g(\omega)|^2 |G_m^-(\omega|^2 \left\langle\left\langle \xi^-(\omega)\xi^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle \\
& - \frac{\chi_{\mathrm{M}} J_{\mathrm{sd}}}{\tau_{\mathrm{M}}} \omega |g(\omega)|^2 |G_n^-(\omega|^2 \left\langle\left\langle \eta^-(\omega)\eta^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle \\
& + \left(-\frac{J_{\mathrm{sd}}}{\hbar} m_{\mathrm{eq}} \mathrm{Im}[(G_m^{*-}(\omega))^{-1}] + \frac{\Gamma_m J_{\mathrm{sd}}}{\gamma\hbar\mathfrak{h}_0} \mathrm{Re}[(G_m^{*-}(\omega))^{-1}] \right) |G_m^-(\omega)|^2 |g(\omega)|^2 \left\langle\left\langle \zeta^-(\omega)\zeta^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle \\
& - \frac{J_{\mathrm{sd}}}{\hbar} n_{\mathrm{eq}} \mathrm{Im}[(G_n^{*-}(\omega))^{-1}] |G_n^-(\omega|^2 |g(\omega)|^2 \left\langle\left\langle \zeta^-(\omega)\zeta^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle
\end{aligned}
\tag{3.51}
$$

次に, $\langle\langle \delta m^-(\omega)\delta s^+(-\omega)\rangle\rangle$ の虚部のうち, $\langle\langle \zeta^-(\omega)\zeta^+(-\omega)\rangle\rangle$ に比例する項を整理する:

$$
\left(-\frac{J_{\mathrm{sd}}}{\hbar} m_{\mathrm{eq}} \mathrm{Im}[(G_m^{*-}(\omega))^{-1}] + \frac{\Gamma_m J_{\mathrm{sd}}}{\gamma\hbar\mathfrak{h}_0} \mathrm{Re}[(G_m^{*-}(\omega))^{-1}] \right) |G_m^-(\omega)|^2
$$

$$
\begin{aligned}
&-\frac{J_{\rm sd}}{\hbar}n_{\rm eq}{\rm Im}[(G_n^{*-}(\omega))^{-1}]|G_n^-(\omega|^2 \\
&=\Bigg[-\frac{J_{\rm sd}}{\hbar}m_{\rm eq}\cdot\frac{-\Gamma_m\chi_\parallel^{-1}|\omega-d|^2-bc\Gamma_nK_0}{|\omega-d|^2}+\frac{\Gamma_mJ_{\rm sd}}{\gamma\hbar\mathfrak{h}_0} \\
&\quad\times\frac{(\omega-\gamma H_0)|\omega-d|^2-bc(\omega-\gamma\mathfrak{h}_0m_{\rm eq}K_0)}{|\omega-d|^2}\Bigg]\frac{|\omega-d|^2}{|\omega-\omega_+|^2|\omega-\omega_-|^2} \\
&\quad-\frac{J_{\rm sd}}{\hbar}n_{\rm eq}\frac{-(\omega-\gamma H_0)\Gamma_nK_0-(\omega-\gamma\mathfrak{h}_0m_{\rm eq}K_0)\Gamma_m\chi_\parallel}{b}\cdot\frac{b^2}{|\omega-\omega_+|^2|\omega-\omega_-|^2} \\
&=\frac{J_{\rm sd}}{\gamma\hbar\mathfrak{h}_0}\left[\gamma\mathfrak{h}_0m_{\rm eq}bc\Gamma_nK_0+\omega|\omega-d|^2\Gamma_m-bc(\omega-\gamma\mathfrak{h}_0m_{\rm eq}K_0)\Gamma_m+\gamma\mathfrak{h}_0n_{\rm eq}b(\omega-\gamma H_0)\Gamma_nK_0\right. \\
&\quad\left.+\gamma\mathfrak{h}_0n_{\rm eq}b(\gamma-\gamma\mathfrak{h}_0m_{\rm eq}K_0)\Gamma_m\chi_\parallel\right]\cdot\frac{1}{|\omega-\omega_+|^2|\omega-\omega_-|^2} \\
&=\frac{J_{\rm sd}}{\gamma\hbar\mathfrak{h}_0}\omega\left\{\Gamma_m|\omega-d|^2+\Gamma_nb^2\right\}\cdot\frac{1}{|\omega-\omega_+|^2|\omega-\omega_-|^2} \\
&=\frac{J_{\rm sd}}{\gamma\hbar\mathfrak{h}_0}\omega\left\{\Gamma_m|G_m^-(\omega)|^2+\Gamma_n|G_n^-(\omega)|^2\right\}
\end{aligned}
\tag{3.52}
$$

これを式 (3.50) に用いると,

$$
\begin{aligned}
&{\rm Im}\left\langle\left\langle\delta m^-(\omega)\delta s^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle \\
&=-\frac{\chi_{\rm M}J_{\rm sd}}{\tau_{\rm M}}\omega|g(\omega)|^2|G_m^-(\omega|^2\left\langle\left\langle\xi^-(\omega)\xi^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle-\frac{\chi_{\rm M}J_{\rm sd}}{\tau_{\rm M}}\omega|g(\omega)|^2|G_n^-(\omega|^2\left\langle\left\langle\eta^-(\omega)\eta^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle \\
&\quad+\frac{\Gamma_mJ_{\rm sd}}{\gamma\hbar\mathfrak{h}_0}\omega|g(\omega)|^2|G_m^-(\omega)|^2\left\langle\left\langle\zeta^-(\omega)\zeta^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle+\frac{\Gamma_nJ_{\rm sd}}{\gamma\hbar\mathfrak{h}_0}\omega|g(\omega)|^2|G_n^-(\omega)|^2\left\langle\left\langle\zeta^-(\omega)\zeta^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle \\
&=\frac{4J_{\rm sd}\chi_{\rm M}k_{\rm B}\Delta T}{\epsilon_0v_0\tau_{\rm M}}\omega|g(\omega)|^2\left[\Gamma_m|G_m^-(\omega)|^2+\Gamma_n|G_n^-(\omega)|^2\right]
\end{aligned}
\tag{3.53}
$$

ここで, 式 (3.45), 式 (3.46), 式 (3.47) 及び $\epsilon_0v_0=\gamma\hbar\mathfrak{h}_0$ を用いた. この結果を式 (3.48) に代入すると次の表式を得る:

$$
I_s=\frac{4J_{\rm sd}^2\chi_{\rm M}k_{\rm B}\Delta T}{\epsilon_0v_0\hbar\tau_{\rm M}}\mathcal{L}_m \tag{3.54}
$$

ただし, $\mathcal{L}_m$ は次式で定義される周波数積分である:

$$
\mathcal{L}_m=\int_{-\infty}^{\infty}\frac{d\omega}{2\pi}\omega|g(\omega)|^2\left[\Gamma_m|G_m^-(\omega)|^2+\Gamma_n|G_n^-(\omega)|^2\right] \tag{3.55}
$$

この積分には反強磁性スピンの動的応答関数 $G_m^-(\omega),G_n^-(\omega)$ と非磁性金属スピンの応答関数 $g(\omega)$ が含まれる. 前者には, α 及び β モードの反強磁性マグノンのポールが含まれている. ここでは, このマグノンのポールを拾って留数計算を行い, 簡潔な式を得ることを目指す.

以下, $\mathcal{L}_m$ を評価する. $\mathcal{L}_m$ において上半面にある反強磁性マグノンのポール $\omega=\omega_+^*,\omega_-^*$ を拾う. この際, 単に計算の利便性のために $\Gamma_\pm\equiv\Gamma_nK_0\pm\Gamma_m\chi_\parallel^{-1}$ 及び $\sqrt{\beta}$ を次のように定義しておく.

$$
\begin{aligned}
\omega_\pm&=\frac{1}{2}\gamma H_0(1+\chi_\parallel K_0) \\
&\quad\pm\frac{1}{2}\sqrt{\left\{\gamma H_0(1-\chi_\parallel K_0)+i(\Gamma_nK_0-\Gamma_m\chi_\parallel^{-1})\right\}^2+4(\gamma\mathfrak{h}_0)^2n_{\rm eq}^2\chi_\parallel^{-1}K_0} \\
&\quad-\frac{1}{2}i(\Gamma_nK_0+\Gamma_m\chi_\parallel^{-1}) \\
&\equiv\frac{1}{2}\gamma H_0(1+\chi_\parallel K_0)\pm\frac{1}{2}(X+iY)-\frac{1}{2}i(\Gamma_nK_0+\Gamma_m\chi_\parallel^{-1})
\end{aligned}
\tag{3.56}
$$

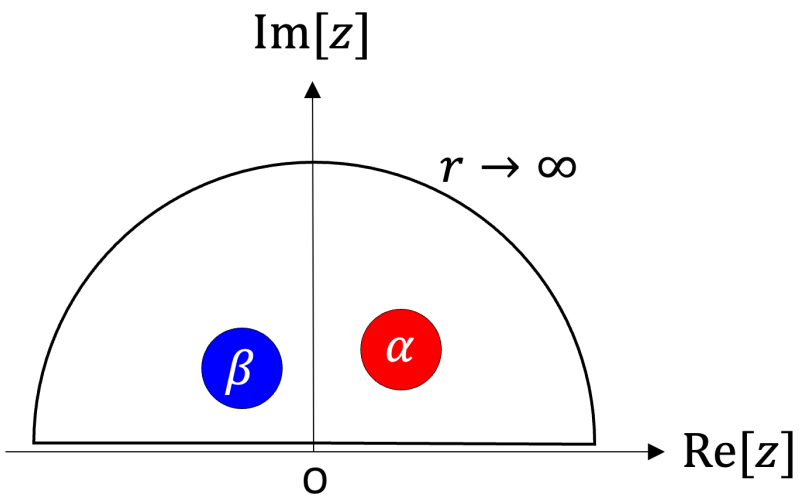

図 3.2　式 (3.54) の積分を留数計算する際に拾うポールの位置．α は α マグノンのポール $\omega = \omega_+^*$, β は β マグノンのポール $\omega = \omega_-^*$ を意味する．

ただし、$\sqrt{\left\{\gamma H_0(1-\chi_\parallel K) + i(\Gamma_n K_0 - \Gamma_m \chi_\parallel^{-1})\right\}^2 + 4(\gamma\mathfrak{h}_0)^2 n_{\rm eq}^2 \chi_\parallel^{-1} K_0} = \sqrt{\beta} = X + iY$ と定義した．X, Y は，このマグノン周波数の式を用いて $X^2 - Y^2 = (\gamma H_0)^2(1-\chi_\parallel K_0)^2 + 4(\gamma\mathfrak{h}_0)^2 n_{\rm eq}^2 \chi_\parallel^{-1} K_0 - \Gamma_-^2$，$XY = \gamma H_0(1-\chi_\parallel K_0)\Gamma_-$ の関係式を満たす．上半面にあるマグノンの一位のポール ($\omega = \omega_+^*$ と $\omega = \omega_-^*$) を拾うと，

$$
\begin{aligned}
&\mathcal{L}_m \\
&= \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{2\pi} \frac{\Gamma_m|\omega-d|^2+\Gamma_n b^2}{|\omega-\omega_+|^2|\omega-\omega_-|^2(\omega^2+\tau_M^{-2})}\omega \\
&\approx \frac{2\pi i}{2\pi}\Bigg[\frac{\Gamma_m(\omega_+^*-d)(\omega_+^*-d^*)+\Gamma_n b^2}{(\omega_+^*-\omega_+)(\omega_+^*-\omega_-)(\omega_+^*-\omega_-^*)({\omega_+^*}^2+\tau_M^{-2})}\omega_+^* \\
&\quad + \frac{\Gamma_m(\omega_-^*-d)(\omega_-^*-d^*)+\Gamma_n b^2}{(\omega_-^*-\omega_+)(\omega_-^*-\omega_+^*)(\omega_-^*-\omega_-)({\omega_-^*}^2+\tau_M^{-2})}\omega_-^*\Bigg] \\
&= i\Bigg[\frac{\Gamma_m(\omega_+^*-d)(\omega_+^*-d^*)+\Gamma_n b^2}{i(\Gamma_+-Y)(X+i\Gamma_+)\sqrt{\beta^*}({\omega_+^*}^2+\tau_M^{-2})}\omega_+^* + \frac{\Gamma_m(\omega_-^*-d)(\omega_-^*-d^*)+\Gamma_n b^2}{i(\Gamma_++Y)(X-i\Gamma_+)\sqrt{\beta^*}({\omega_-^*}^2+\tau_M^{-2})}\omega_-^*\Bigg] \\
&= \frac{\{\Gamma_m(\omega_+^*-d)(\omega_+^*-d^*)+\Gamma_n b^2\}\omega_+^*(X-i\Gamma_+)(\Gamma_++Y)({\omega_-^*}^2+\tau_M^{-2})}{\sqrt{\beta^*}(\Gamma_+^2-Y^2)(X^2+\Gamma_+^2)({\omega_+^*}^2+\tau_M^{-2})({\omega_-^*}^2+\tau_M^{-2})} \\
&\quad + \frac{\{\Gamma_m(\omega_-^*-d)(\omega_-^*-d^*)+\Gamma_n b^2\}\omega_-^*(X+i\Gamma_+)(\Gamma_+-Y)({\omega_+^*}^2+\tau_M^{-2})}{\sqrt{\beta^*}(\Gamma_+^2-Y^2)(X^2+\Gamma_+^2)({\omega_+^*}^2+\tau_M^{-2})({\omega_-^*}^2+\tau_M^{-2})} \\
&= \Big[\{\Gamma_m(\omega_+^*-d)(\omega_+^*-d^*)+\Gamma_n b^2\}\omega_+^*(XY+\Gamma_+\sqrt{\beta^*}){\omega_-^*}^2 \\
&\quad + \{\Gamma_m(\omega_-^*-d)(\omega_-^*-d^*)+\Gamma_n b^2\}\omega_-^*(-XY+\Gamma_+\sqrt{\beta^*}){\omega_+^*}^2\Big] \\
&\quad /\Big[\sqrt{\beta^*}(\Gamma_+^2-Y^2)(X^2+\Gamma_+^2)({\omega_+^*}^2+\tau_M^{-2})({\omega_-^*}^2+\tau_M^{-2})\Big] \\
&\quad + \tau_M^{-2}\Big[\{\Gamma_m(\omega_+^*-d)(\omega_+^*-d^*)+\Gamma_n b^2\}\omega_+^*(XY+\Gamma_+\sqrt{\beta^*}) \\
&\quad + \{\Gamma_m(\omega_-^*-d)(\omega_-^*-d^*)+\Gamma_n b^2\}\omega_-^*(-XY+\Gamma_+\sqrt{\beta^*})\Big] \\
&\quad /\Big[\sqrt{\beta^*}(\Gamma_+^2-Y^2)(X^2+\Gamma_+^2)({\omega_+^*}^2+\tau_M^{-2})({\omega_-^*}^2+\tau_M^{-2})\Big]
\end{aligned}
\tag{3.57}
$$

分母の $\mathcal{D} := (\Gamma_+^2-Y^2)(X^2+\Gamma_+)^2$ は次のようになる.

$$
\begin{aligned}
&\mathcal{D} \\
&= (X^2+\Gamma_+^2)(-Y^2+\Gamma_+^2) \\
&= \Gamma_+^4 + (X^2-Y^2)\Gamma_+^2 - (XY)^2 \\
&\approx (X^2-Y^2)\Gamma_+^2 - (XY)^2 \\
&= \Big\{(\gamma H_0)^2(1-\chi_\parallel K_0)^2 + 4(\gamma\mathfrak{h}_0)^2 n_{\mathrm{eq}}^2\chi_\parallel^{-1}K_0 - \Gamma_-^2\Big\}\Gamma_+^2 - (\gamma H_0)^2(1-\chi_\parallel K_0)^2\Gamma_-^2 \\
&= (\gamma H_0)^2(1-\chi_\parallel K_0)^2(\Gamma_+^2-\Gamma_-^2) + 4(\gamma\mathfrak{h}_0)^2 n_{\mathrm{eq}}^2\chi_\parallel^{-1}K_0\Gamma_+^2 - \Gamma_+^2\Gamma_-^2 \\
&\approx (\gamma H_0)^2(1-\chi_\parallel K_0)^2(\Gamma_+^2-\Gamma_-^2) + 4(\gamma\mathfrak{h}_0)^2 n_{\mathrm{eq}}^2\chi_\parallel^{-1}K_0\Gamma_+^2 \\
&= 4\Big\{\Gamma_m\chi_\parallel^{-1}\Gamma_n K_0(\gamma H_0)^2(1-\chi_\parallel K_0)^2 + \Gamma_+^2(\gamma\mathfrak{h}_0 n_{\mathrm{eq}})^2\chi_\parallel^{-1}K_0\Big\}
\end{aligned}
\tag{3.58}
$$

次に, 式 (3.57) の第 1 項の分子を計算する. 紙面の幅の都合で, 適宜 $\omega_0 := \gamma\mathfrak{h}_0$ を用いている.

式 (3.57) の第 1 項の分子

$$
\begin{aligned}
&= XY\omega_+^*\omega_-^*\Big[\{\Gamma_m(\omega_+^*-d)(\omega_+^*-d^*)+\Gamma_n b^2\}\omega_-^* - \{\Gamma_m(\omega_-^*-d)(\omega_-^*-d^*)+\Gamma_n b^2\}\omega_+^*\Big] \\
&\quad + \Gamma_+\sqrt{\beta^*}\omega_+^*\omega_-^*\Big[\{\Gamma_m(\omega_+^*-d)(\omega_+^*-d^*)+\Gamma_n b^2\}\omega_-^* + \{\Gamma_m(\omega_-^*-d)(\omega_-^*-d^*)+\Gamma_n b^2\}\omega_+^*\Big] \\
&= XY\omega_+^*\omega_-^*\Big[\{\Gamma_m\big((a+d)\omega_+^*-ad+bc-(d+d^*)\omega_+^*+d^2\big)+\Gamma_n b^2\}\omega_-^* \\
&\quad - \{\Gamma_m\big((a+d)\omega_-^*-ad+bc-(d+d^*)\omega_-^*+d^2\big)+\Gamma_n b^2\}\omega_+^*\Big] \\
&\quad + \Gamma_+\sqrt{\beta^*}\omega_+^*\omega_-^*\Big[\{\Gamma_m\big((a+d)\omega_+^*-ad+bc-(d+d^*)\omega_+^*+d^2\big)+\Gamma_n b^2\}\omega_-^* \\
&\quad + \{\Gamma_m\big((a+d)\omega_-^*-ad+bc-(d+d^*)\omega_-^*+d^2\big)+\Gamma_n b^2\}\omega_+^*\Big] \\
&= XY\omega_+^*\omega_-^*\Big[\Gamma_m(-ad+bc+d^2)(\omega_-^*-\omega_+^*)\Gamma_n b^2(\omega_-^*-\omega_+^*)\Big] \\
&\quad + \Gamma_+\sqrt{\beta^*}\omega_+^*\omega_-^*\Big[2\Gamma_m(a-d)\omega_+^*\omega_-^* + \Gamma_m(-ad+bc+d^2)(\omega_-^*+\omega_+^*)+\Gamma_n b^2(\omega_-^*+\omega_+^*)\Big] \\
&= -XY\omega_+^*\omega_-^*\sqrt{\beta^*}\Big[\Gamma_m(-ad+bc+d^2)+\Gamma_n b^2\Big] \\
&\quad + \Gamma_+\sqrt{\beta^*}\omega_+^*\omega_-^*\Big[2\Gamma_m(a-d)(ad-bc)+\Gamma_m(-ad+bc+d^2)(a+d)+\Gamma_n b^2(a+d)\Big] \\
&= \omega_+^*\omega_-^*\sqrt{\beta^*}\Big[-(a-d)\Gamma_-\Gamma_m(-ad+bc+d^2)-(a-d)\Gamma_m(a-d)(ad-bc) \\
&\quad + 2\Gamma_m\Gamma_+(a-d)(ad-bc)+\Gamma_+\Gamma_m(-ad+bc+d^2)(a+d)+\Gamma_n b^2\Gamma_+(a+d)\Big] \\
&= \omega_+^*\omega_-^*\sqrt{\beta^*}\Big[\Gamma_m\Gamma_n\{(a^2d-abc-2ad^2+bcd+d^3)K_0+2\omega_0^2 n_{\mathrm{eq}}^2 K_0^2\chi_\parallel^{-1}a \\
&\quad + K_0(a^2d-abc+3bcd+d^3-2ad^2)\} \\
&\quad + \Gamma_m^2\{-\chi_\parallel^{-1}(a^2d-abc-2ad^2+bcd+d^3) \\
&\quad + \chi_\parallel^{-1}(a^2d-abc+3bcd+d^3-2ad^2)\}+2\Gamma_n^2 b^2 K_0 d\Big] \\
&= \omega_+^*\omega_-^*\sqrt{\beta^*}\Big[2\Gamma_m^2\chi_\parallel^{-1}bcd+2(\Gamma_n K_0)^2\omega_0^2 n_{\mathrm{eq}}^2 K_0 d+\Gamma_m\Gamma_n K_0\{2d(a-d)^2+4bcd\}\Big] \\
&= 2\omega_+^*\omega_-^*\sqrt{\beta^*}d\Big[\Gamma_m^2\chi_\parallel^{-1}\omega_0^2 n_{\mathrm{eq}}^2 K_0\chi_\parallel^{-1}+(\Gamma_n K_0)^2\omega_0^2 n_{\mathrm{eq}}^2 K_0+\Gamma_m\Gamma_n K_0(\gamma H_0)^2(1-\chi_\parallel K_0)^2 \\
&\quad + 2\Gamma_m\Gamma_n K_0\omega_0^2 n_{\mathrm{eq}}^2 K_0\chi_\parallel^{-1}\Big] \\
&= 2\omega_+^*\omega_-^*\sqrt{\beta^*}d\Big[\omega_0^2 n_{\mathrm{eq}}^2 K_0\{(\Gamma_m\chi_\parallel^{-1})^2+2\Gamma_m\chi_\parallel\Gamma_n K_0+(\Gamma_n K_0)^2\}\Big] \\
&= 2\omega_+^*\omega_-^*\sqrt{\beta^*}\omega_0 m_{\mathrm{eq}}K_0\chi_\parallel\Big[\omega_0^2 n_{\mathrm{eq}}^2\chi_\parallel^{-1}K_0\Gamma_+^2+\Gamma_m\chi_\parallel^{-1}\Gamma_n K_0(\gamma H_0)^2(1-\chi_\parallel K_0)^2\Big] \\
&= \frac{1}{2}\omega_+^*\omega_-^*\sqrt{\beta^*}\omega_0 m_{\mathrm{eq}}K_0\chi_\parallel\mathcal{D}
\end{aligned}
\tag{3.59}
$$

続いて, 式 (3.57) の第二項の分子を計算する.

式 (3.57) の第 2 項の分子 (τ_M^{-2} のファクターは除く)

$$
\begin{aligned}
&= \{\Gamma_m(\omega_+^* - d)(\omega_+^* - d^*) + \Gamma_n b^2\}\omega_+^*(XY + \Gamma_+\sqrt{\beta^*}) \\
&\quad b + \{\Gamma_m(\omega_-^* - d)(\omega_-^* - d^*) + \Gamma_n b^2\}\omega_-^*(-XY + \Gamma_+\sqrt{\beta^*}) \\
&= \Gamma_+\sqrt{\beta^*}\Big[\{\Gamma_m\big((a-d)\omega_+^* - ad + bc + d^2\big) + \Gamma_n b^2\}\omega_+^* \\
&\quad + \{\Gamma_m\big((a-d)\omega_-^* - ad + bc + d^2\big) + \Gamma_n b^2\}\omega_-^*\Big] \\
&\quad + XY\Big[\{\Gamma_m\big((a-d)\omega_+^* - ad + bc + d^2\big) + \Gamma_n b^2\}\omega_+^* \\
&\quad - \{\Gamma_m\big((a-d)\omega_-^* - ad + bc + d^2\big) + \Gamma_n b^2\}\omega_-^*\Big] \\
&= \Gamma_+\sqrt{\beta^*}\Big[\Gamma_m(a-d)({\omega_+^*}^2 + {\omega_-^*}^2) + \Gamma_m(-ad + bc + d^2)(\omega_+^* + \omega_-^*) + \Gamma_n b^2(\omega_+^* + \omega_-^*)\Big] \\
&\quad + XY\Big[\Gamma_m(a-d)({\omega_+^*}^2 - {\omega_-^*}^2) + \Gamma_m(-ad + bc + d^2)(\omega_+^* - \omega_-^*) + \Gamma_n b^2(\omega_+^* - \omega_-^*)\Big] \\
&= \Gamma_+\sqrt{\beta^*}\Big[\Gamma_m(a-d)\big((a+d)^2 - 2(ad - bc)\big) + \Gamma_m(-ad + bc + d^2)(a+d) + \Gamma_n b^2(a+d)\Big] \\
&\quad + XY\sqrt{\beta^*}\Big[\Gamma_m(a-d)(a+d) + \Gamma_m(-ad + bc + d^2) + \Gamma_n b^2\Big] \\
&= \Gamma_+\sqrt{\beta^*}\Big[\Gamma_m(a^3 + ad^2 + 3abc - 2ad^2 - bcd) + \Gamma_n b^2(a+d)\Big] \\
&\quad + \Gamma_-\sqrt{\beta^*}\Big[\Gamma_m(a^3 - 2ad^2 + ad^2 + abc - bcd) + \Gamma_n b^2(a-d)\Big] \\
&= \sqrt{\beta^*}\Big[(\Gamma_m\chi_\parallel^{-1} + \Gamma_n K_0)\Gamma_m(a^3 + ad^2 - 2ad^2 + 3abc - bcd) + (\Gamma_m\chi_\parallel^{-1} + \Gamma_n K_0)\Gamma_n b^2(a+d) \\
&\quad + (\Gamma_n K_0 - \Gamma_m\chi_\parallel^{-1})\Gamma_m(a^3 - 2ad^2 + ad^2 + abc - bcd) + (\Gamma_n K_0 - \Gamma_m\chi_\parallel^{-1})\Gamma_n b^2(a-d)\Big] \\
&= \sqrt{\beta^*}\Big[\Gamma_m^2\chi_\parallel^{-1}\{a(a-d)^2 + 3abc - bcd - a(a-d)^2 - abc + bcd\} + \Gamma_n^2 K_0 b^2(a + d + a - d) \\
&\quad + \Gamma_m\Gamma_n\{K_0\big(a(a-d^2) + 3abc - bcd\big) + \chi_\parallel^{-1}b^2(a+d) \\
&\quad + K_0\big(a(a-d)^2 + abc - bcd\big) - \chi_\parallel^{-1}b^2(a-d)\}\Big] \\
&= \sqrt{\beta^*}\Big[2\Gamma_m^2\chi_\parallel^{-1}abc + 2\Gamma_n^2 K_0 b^2 a + \Gamma_m\Gamma_n\{K_0\big(2a(a-d)^2 + 4abc - 2bcd\big) + 2\chi_\parallel^{-1}b^2 d\Big] \\
&= 2\sqrt{\beta^*}\gamma H_0\Big[(\Gamma_m\chi_\parallel^{-1})^2\omega_0^2 n_{\mathrm{eq}}^2 K_0 + (\Gamma_n K_0)^2\omega_0^2 n_{\mathrm{eq}}^2 K_0 \\
&\quad + \Gamma_m\Gamma_n K_0(\gamma H_0)^2(1 - \chi_\parallel K_0)^2 + 2\Gamma_m\chi_\parallel^{-1}\Gamma_n K_0\omega_0^2 n_{\mathrm{eq}}^2 K_0\Big] \\
&= 2\sqrt{\beta^*}\gamma H_0\chi_\parallel\Big[\Gamma_+^2\omega_0^2 n_{\mathrm{eq}}^2\chi_\parallel^{-1}K_0 + \Gamma_m\chi_\parallel^{-1}\Gamma_n K_0(\gamma H_0)^2(1 - \chi_\parallel K_0)^2\Big] \\
&= \frac{1}{2}\sqrt{\beta^*}\gamma\mathfrak{h}_0 m_{\mathrm{eq}}\mathcal{D}
\end{aligned}
\tag{3.60}
$$

式 (3.59), 式 (3.60) より, 積分 $\mathcal{L}_m$[式 (3.57)] は

$$
\begin{aligned}
&\mathcal{L}_m \\
&= \int \frac{d\omega}{2\pi}\Big[\Gamma_m|G_m(\omega)^-|^2 + \Gamma_n|G_n(\omega)^-|^2\Big]|g^-(\omega)|^2\omega \\
&= \frac{(\omega_+^*\omega_-^*\gamma\mathfrak{h}_0 m_{\mathrm{eq}}K_0\chi_\parallel + \tau_M^{-2}\gamma\mathfrak{h}_0 m_{\mathrm{eq}})\mathcal{D}\sqrt{\beta^*}}{2\sqrt{\beta^*}\mathcal{D}({\omega_+^*}^2 + \tau_M^{-2})({\omega_-^*}^2 + \tau_M^{-2})} \\
&= \gamma\mathfrak{h}_0 m_{\mathrm{eq}} \cdot \frac{\omega_+^*\omega_-^* K_0\chi_\parallel + \tau_M^{-2}}{2({\omega_+^*}^2 + \tau_M^{-2})({\omega_-^*}^2 + \tau_M^{-2})} \\
&\approx \gamma\mathfrak{h}_0 m_{\mathrm{eq}}\tau_{\mathrm{M}}^2 \cdot \frac{1 + \omega_\alpha\omega_\beta\tau_{\mathrm{M}}^2 K_0\chi_\parallel}{2(1+\omega_\alpha^2\tau_{\mathrm{M}}^2)(1+\omega_\beta^2\tau_{\mathrm{M}}^2)}
\end{aligned}
\tag{3.61}
$$

ただし, 最後に $\mathrm{Re}[\omega_+] = \omega_\alpha, \mathrm{Re}[\omega_-] = \omega_\beta$ と定義し, $\mathrm{Re}[\omega_+] \gg \mathrm{Im}[\omega_+], \mathrm{Re}[\omega_-] \gg \mathrm{Im}[\omega_-]$ であることを用いた. 上式を式 (3.54) に用いれば, magnetic coupling の場合のスピン流が得られる:

$$
I_s = \frac{2J_{\mathrm{sd}}^2\chi_{\mathrm{M}}\tau_{\mathrm{M}}m_{\mathrm{eq}}k_{\mathrm{B}}\Delta T}{\hbar^2} \cdot \frac{1 + \omega_\alpha\omega_\beta\tau_{\mathrm{M}}^2 K_0\chi_\parallel}{(1+\omega_\alpha^2\tau_{\mathrm{M}}^2)(1+\omega_\beta^2\tau_{\mathrm{M}}^2)} \tag{3.62}
$$

3.4.2 Néel coupling の場合

Néel coupling の場合のスピン流についても, magnetic coupling の場合と同様の過程で計算する. まず, Néel coupling の場合にはネールベクトル $\boldsymbol{n}$ と非磁性金属スピン $\boldsymbol{s}$ が直接的に交換結合するから, スピン流は Bloch 方程式を用いて次のように整理される:

$$
I_s = \frac{J_{\mathrm{sd}}}{\hbar}\int_{-\infty}^{\infty}\frac{d\omega}{2\pi}\mathrm{Im}\left\langle\left\langle\delta n^-(\omega)\delta s^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle \tag{3.63}
$$

期待通り, ネールベクトルと非磁性金属スピンの相関関数を求めれば良い. 既に求めているスピン変数 [式 (3.26), 式 (3.27)] を用いて $\langle\langle\delta n^-(\omega)\delta s^+(-\omega)\rangle\rangle$ を計算する:

$$
\begin{aligned}
\left\langle\left\langle\delta n^-(\omega)\delta s^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle &= \Bigg\langle\Bigg\langle\Bigg[F_n^-(\omega)i\xi^-(\omega) + F_m(\omega)i\eta^-(\omega) \\
&\quad + \left\{-\frac{J_{\mathrm{sd}}}{\hbar}n_{\mathrm{eq}}F_n^-(\omega) + \left(-\frac{J_{\mathrm{sd}}}{\hbar}m_{\mathrm{eq}} + i\frac{\Gamma_n J_{\mathrm{sd}}}{\gamma\hbar\mathfrak{h}_0}\right)F_m^-(\omega)\right\}g(\omega)i\zeta^-(\omega)\Bigg] \\
&\quad \times\Bigg[-g^*(\omega)i\zeta^+(-\omega) - g^*(\omega)\frac{\chi_M J_{\mathrm{sd}}}{\tau_M}i \\
&\quad \times\left\{(F_n^-(\omega))^* i\xi^+(-\omega) + (F_m^-(\omega))^* i\eta^+(-\omega)\right\}\Bigg]\Bigg\rangle\Bigg\rangle \\
&= -\frac{\chi_{\mathrm{M}}J_{\mathrm{sd}}}{\tau_{\mathrm{M}}}ig^*(\omega)|F_n^-(\omega|^2\left\langle\left\langle\xi^-(\omega)\xi^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle \\
&\quad - \frac{\chi_{\mathrm{M}}J_{\mathrm{sd}}}{\tau_{\mathrm{M}}}ig^*(\omega)|F_m^-(\omega|^2\left\langle\left\langle\eta^-(\omega)\eta^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle \\
&\quad + \left(-\frac{J_{\mathrm{sd}}}{\hbar}m_{\mathrm{eq}} + \frac{\Gamma_n J_{\mathrm{sd}}}{\gamma\hbar\mathfrak{h}_0}i\right)F_m^-(\omega)|g(\omega)|^2\left\langle\left\langle\zeta^-(\omega)\zeta^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle \\
&\quad - \frac{J_{\mathrm{sd}}}{\hbar}n_{\mathrm{eq}}F_n^-(\omega)|g(\omega)|^2\left\langle\left\langle\zeta^-(\omega)\zeta^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle
\end{aligned}
\tag{3.64}
$$

次に, $\langle\langle\delta n^-(\omega)\delta s^+(-\omega)\rangle\rangle$ の虚部を計算する.

$$
\mathrm{Im}\left\langle\left\langle\delta n^-(\omega)\delta s^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle \tag{3.65}
$$

$$
\begin{aligned}
&= -\frac{\chi_{\mathrm{M}} J_{\mathrm{sd}}}{\tau_{\mathrm{M}}} \mathrm{Re}[(g^*(\omega))] |F_n^-(\omega|^2 \left\langle\left\langle \xi^-(\omega)\xi^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle \\
&\quad - \frac{\chi_{\mathrm{M}} J_{\mathrm{sd}}}{\tau_{\mathrm{M}}} \mathrm{Re}[(g^*(\omega))] |F_m^-(\omega|^2 \left\langle\left\langle \eta^-(\omega)\eta^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle \\
&\quad + \left(-\frac{J_{\mathrm{sd}}}{\hbar} m_{\mathrm{eq}} \mathrm{Im}[F_m^-(\omega)] + \frac{\Gamma_n J_{\mathrm{sd}}}{\gamma\hbar\mathfrak{h}_0} \mathrm{Re}[F_m^-(\omega)] \right) |g(\omega)|^2 \left\langle\left\langle \zeta^-(\omega)\zeta^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle \\
&\quad - \frac{J_{\mathrm{sd}}}{\hbar} n_{\mathrm{eq}} \mathrm{Im}[F_n^-(\omega)] |g(\omega)|^2 \left\langle\left\langle \zeta^-(\omega)\zeta^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle \\
&= -\frac{\chi_{\mathrm{M}} J_{\mathrm{sd}}}{\tau_{\mathrm{M}}} \omega |g(\omega)|^2 |F_n^-(\omega|^2 \left\langle\left\langle \xi^-(\omega)\xi^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle \\
&\quad - \frac{\chi_{\mathrm{M}} J_{\mathrm{sd}}}{\tau_{\mathrm{M}}} \omega |g(\omega)|^2 |F_m^-(\omega|^2 \left\langle\left\langle \eta^-(\omega)\eta^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle \\
&\quad + \left(-\frac{J_{\mathrm{sd}}}{\hbar} m_{\mathrm{eq}} \mathrm{Im}[(F_m^{*-}(\omega))^{-1}] + \frac{\Gamma_m J_{\mathrm{sd}}}{\gamma\hbar\mathfrak{h}_0} \mathrm{Re}[(F_m^{*-}(\omega))^{-1}] \right) |F_m^-(\omega)|^2 |g(\omega)|^2 \left\langle\left\langle \zeta^-(\omega)\zeta^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle \\
&\quad - \frac{J_{\mathrm{sd}}}{\hbar} n_{\mathrm{eq}} \mathrm{Im}[(F_n^{*-}(\omega))^{-1}] |F_n^-(\omega|^2 |g(\omega)|^2 \left\langle\left\langle \zeta^-(\omega)\zeta^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle
\end{aligned}
\tag{3.66}
$$

次に, $\langle\langle \delta n^-(\omega)\delta s^+(-\omega)\rangle\rangle$ の虚部のうち, $\langle\langle \zeta^-(\omega)\zeta^+(-\omega)\rangle\rangle$ に比例する項を整理する:

$$
\begin{aligned}
&\left(-\frac{J_{\mathrm{sd}}}{\hbar} m_{\mathrm{eq}} \mathrm{Im}[(F_m^{*-}(\omega))^{-1}] + \frac{\Gamma_m J_{\mathrm{sd}}}{\gamma\hbar\mathfrak{h}_0} \mathrm{Re}[(F_m^{*-}(\omega))^{-1}] \right) |F_m^-(\omega)|^2 \\
&\quad - \frac{J_{\mathrm{sd}}}{\hbar} n_{\mathrm{eq}} \mathrm{Im}[(F_n^{*-}(\omega))^{-1}] |F_n^-(\omega)|^2 \\
&= \Bigg[-\frac{J_{\mathrm{sd}}}{\hbar} m_{\mathrm{eq}} \cdot \frac{-\Gamma_n K_0 |\omega - a|^2 - bc\Gamma_m \chi_\parallel^{-1}}{|\omega - a|^2} + \frac{\Gamma_n J_{\mathrm{sd}}}{\gamma\hbar\mathfrak{h}_0} \\
&\qquad \times \frac{|\omega - a|^2(\omega - \gamma\mathfrak{h}_0 m_{\mathrm{eq}} K_0) - bc(\omega - \gamma H_0)}{|\omega - a|^2} \Bigg] \frac{|\omega - a|^2}{|\omega - \omega_+|^2 |\omega - \omega_-|^2} \\
&\qquad - \frac{J_{\mathrm{sd}}}{\hbar} n_{\mathrm{eq}} \frac{-(\Gamma_m \chi_\parallel^{-1} + \Gamma_n K_0)\omega + \gamma H_0 \Gamma_n K_0 + \Gamma_m \chi_\parallel^{-1} \gamma\mathfrak{h}_0 m_{\mathrm{eq}} K_0}{c} \cdot \frac{c^2}{|\omega - \omega_+|^2 |\omega - \omega_-|^2} \\
&= \frac{J_{\mathrm{sd}}}{\gamma\hbar\mathfrak{h}_0} \Big[\gamma\mathfrak{h}_0 \Gamma_n K_0 m_{\mathrm{eq}} |\omega - a|^2 + \gamma\mathfrak{h}_0 bc m_{\mathrm{eq}} \Gamma_m \chi_\parallel^{-1} \\
&\qquad + \Gamma_n \{\omega |\omega - a|^2 - \gamma\mathfrak{h}_0 |\omega - a|^2 m_{\mathrm{eq}} K_0 - bc(\omega - \gamma H_0)\} \\
&\qquad + (\gamma\mathfrak{h}_0 n_{\mathrm{eq}})^2 \chi_\parallel^{-1} (\Gamma_m \chi_\parallel^{-1} + \Gamma_n K_0)\omega - (\gamma\mathfrak{h}_0 n_{\mathrm{eq}})^2 \chi_\parallel^{-1} \gamma H_0 \Gamma_n K_0 \\
&\qquad - (\gamma\mathfrak{h}_0 n_{\mathrm{eq}})^2 \chi_\parallel^{-1} \Gamma_m \chi_\parallel^{-1} \gamma\mathfrak{h}_0 m_{\mathrm{eq}} K_0 \Big] \cdot \frac{1}{|\omega - \omega_+|^2 |\omega - \omega_-|^2} \\
&= \frac{J_{\mathrm{sd}}}{\gamma\hbar\mathfrak{h}_0} \omega \left\{ \Gamma_m c^2 + \Gamma_n |\omega - a|^2 \right\} \cdot \frac{1}{|\omega - \omega_+|^2 |\omega - \omega_-|^2} \\
&= \frac{J_{\mathrm{sd}}}{\gamma\hbar\mathfrak{h}_0} \omega \left\{ \Gamma_m |F_n^-(\omega)|^2 + \Gamma_n |F_m^-(\omega)|^2 \right\}
\end{aligned}
\tag{3.67}
$$

これを式 (3.65) に用いると,

$$
\begin{aligned}
&\mathrm{Im} \left\langle\left\langle \delta n^-(\omega)\delta s^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle \\
&= -\frac{\chi_{\mathrm{M}} J_{\mathrm{sd}}}{\tau_{\mathrm{M}}} \omega |g(\omega)|^2 |F_n^-(\omega|^2 \left\langle\left\langle \xi^-(\omega)\xi^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle - \frac{\chi_{\mathrm{M}} J_{\mathrm{sd}}}{\tau_{\mathrm{M}}} \omega |g(\omega)|^2 |F_m^-(\omega|^2 \left\langle\left\langle \eta^-(\omega)\eta^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle \\
&\quad + \frac{\Gamma_m J_{\mathrm{sd}}}{\gamma\hbar\mathfrak{h}_0} \omega |g(\omega)|^2 |F_n^-(\omega)|^2 \left\langle\left\langle \zeta^-(\omega)\zeta^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle + \frac{\Gamma_n J_{\mathrm{sd}}}{\gamma\hbar\mathfrak{h}_0} \omega |g(\omega)|^2 |F_m^-(\omega)|^2 \left\langle\left\langle \zeta^-(\omega)\zeta^+(-\omega)\right\rangle\right\rangle \\
&= \frac{4 J_{\mathrm{sd}} \chi_{\mathrm{M}} k_{\mathrm{B}} \Delta T}{\epsilon_0 v_0 \tau_{\mathrm{M}}} \omega |g(\omega)|^2 \left[\Gamma_m |F_n^-(\omega)|^2 + \Gamma_n |F_m^-(\omega)|^2 \right]
\end{aligned}
\tag{3.68}
$$

ここで, 式 (3.45), 式 (3.46), 式 (3.47) 及び $\epsilon_0 v_0 = \gamma\hbar\mathfrak{h}_0$ を用いた. この結果を式 (3.63) に代入すると次の表式を得る:

$$I_s = \frac{4J_{\mathrm{sd}}^2\chi_{\mathrm{M}}k_{\mathrm{B}}\Delta T}{\epsilon_0 v_0\hbar\tau_{\mathrm{M}}}\mathcal{L}_n \tag{3.69}$$

ただし, $\mathcal{L}_n$ は次式で定義される周波数積分である:

$$\mathcal{L}_n = \int_{-\infty}^{\infty}\frac{d\omega}{2\pi}\omega|g(\omega)|^2\left[\Gamma_m|F_n^-(\omega)|^2 + \Gamma_n|F_m^-(\omega)|^2\right] \tag{3.70}$$

上半面にあるマグノンの一位のポール ($\omega = \omega_+^*$ と $\omega = \omega_-^*$) を拾うと,

$$\begin{aligned}
&\mathcal{L}_n \\
&= \int_{-\infty}^{\infty}\frac{d\omega}{2\pi}\frac{\Gamma_m c^2 + \Gamma_n|\omega - a|^2}{|\omega-\omega_+|^2|\omega-\omega_-|^2(\omega^2+\tau_M^{-2})}\omega \\
&\approx \frac{2\pi i}{2\pi}\left[\frac{\Gamma_m c^2 + \Gamma_n(\omega_+^* - a)(\omega_+^* - a^*)}{(\omega_+^*-\omega_+)(\omega_+^*-\omega_-)(\omega_+^*-\omega_-^*)({\omega_+^*}^2+\tau_M^{-2})}\omega_+^* \right. \\
&\quad \left. + \frac{\Gamma_m c^2 + \Gamma_n(\omega_-^* - a)(\omega_-^* - a^*)}{(\omega_-^*-\omega_+)(\omega_-^*-\omega_+^*)(\omega_-^*-\omega_-)({\omega_-^*}^2+\tau_M^{-2})}\omega_-^*\right] \\
&= i\left[\frac{\Gamma_m c^2 + \Gamma_n(\omega_+^* - a)(\omega_+^* - a^*)}{i(\Gamma_+ - Y)(X+i\Gamma_+)\sqrt{\beta^*}({\omega_+^*}^2+\tau_M^{-2})}\omega_+^* + \frac{\Gamma_m c^2 + \Gamma_n(\omega_-^* - a)(\omega_-^* - a^*)}{i(\Gamma_+ + Y)(X-i\Gamma_+)\sqrt{\beta^*}({\omega_-^*}^2+\tau_M^{-2})}\omega_-^*\right] \\
&= \frac{\{\Gamma_m c^2 + \Gamma_n(\omega_+^* - a)(\omega_+^* - a^*)\}\omega_+^*(X-i\Gamma_+)(\Gamma_+ + Y)({\omega_-^*}^2+\tau_M^{-2})}{\sqrt{\beta^*}(\Gamma_+^2 - Y^2)(X^2+\Gamma_+^2)({\omega_+^*}^2+\tau_M^{-2})({\omega_-^*}^2+\tau_M^{-2})} \\
&\quad + \frac{\{\Gamma_m c^2 + \Gamma_n(\omega_-^* - a)(\omega_-^* - a^*)\}\omega_-^*(X+i\Gamma_+)(\Gamma_+ - Y)({\omega_+^*}^2+\tau_M^{-2})}{\sqrt{\beta^*}(\Gamma_+^2 - Y^2)(X^2+\Gamma_+^2)({\omega_+^*}^2+\tau_M^{-2})({\omega_-^*}^2+\tau_M^{-2})} \\
&= \Big[\{\Gamma_m c^2 + \Gamma_n(\omega_+^* - a)(\omega_+^* - a^*)\}\omega_+^*(XY + \Gamma_+\sqrt{\beta^*}){\omega_-^*}^2 \\
&\quad + \{\Gamma_m c^2 + \Gamma_n(\omega_-^* - a)(\omega_-^* - a^*)\}\omega_-^*(-XY + \Gamma_+\sqrt{\beta^*}){\omega_+^*}^2\Big] \\
&\quad /\Big[\sqrt{\beta^*}(\Gamma_+^2 - Y^2)(X^2+\Gamma_+^2)({\omega_+^*}^2+\tau_M^{-2})({\omega_-^*}^2+\tau_M^{-2})\Big] \\
&\quad + \tau_M^{-2}\Big[\{\Gamma_m(\omega_+^* - d)(\omega_+^* - d^*) + \Gamma_n b^2\}\omega_+^*(XY + \Gamma_+\sqrt{\beta^*}) \\
&\quad + \{\Gamma_m(\omega_-^* - d)(\omega_-^* - d^*) + \Gamma_n b^2\}\omega_-^*(-XY + \Gamma_+\sqrt{\beta^*})\Big] \\
&\quad /\Big[\sqrt{\beta^*}(\Gamma_+^2 - Y^2)(X^2+\Gamma_+^2)({\omega_+^*}^2+\tau_M^{-2})({\omega_-^*}^2+\tau_M^{-2})\Big]
\end{aligned} \tag{3.71}$$

式 (3.71) の第 1 項の分子

$$
\begin{aligned}
&= XY\omega_+^*\omega_-^*\Big[\{\Gamma_m c^2 + \Gamma_n(\omega_+^* - a)(\omega_+^* - a^*)\}\omega_-^* - \{\Gamma_m c^2 + \Gamma_n(\omega_-^* - a)(\omega_-^* - a^*)\}\omega_+^*\Big] \\
&\quad + \Gamma_+\sqrt{\beta^*}\omega_+^*\omega_-^*\Big[\{\Gamma_m c^2 + \Gamma_n(\omega_+^* - a)(\omega_+^* - a^*)\}\omega_-^* + \{\Gamma_m c^2 + \Gamma_n(\omega_-^* - a)(\omega_-^* - a^*)\}\omega_+^*\Big] \\
&= XY\omega_+^*\omega_-^*\Big[\{\Gamma_m c^2 + \Gamma_n\big((d-a)\omega_+^* - ad + bc + a^2\big)\}\omega_-^* \\
&\quad - \{\Gamma_m c^2 + \Gamma_n\big((d-a)\omega_-^* - ad + bc + a^2\big)\}\omega_+^*\Big] \\
&\quad + \Gamma_+\sqrt{\beta^*}\omega_+^*\omega_-^*\Big[\{\Gamma_m c^2 + \Gamma_n\big((d-a)\omega_+^* - ad + bc + a^2\big)\}\omega_-^* \\
&\quad + \{\Gamma_m c^2 + \Gamma_n\big((d-a)\omega_+^* - ad + bc + a^2\big)\}\omega_+^*\Big] \\
&= XY\omega_+^*\omega_-^*\Big[\Gamma_m c^2(\omega_-^* - \omega_+^*) + \Gamma_n(-ad + bc + a^2)(\omega_-^* - \omega_+^*)\Big] \\
&\quad + \Gamma_+\sqrt{\beta^*}\omega_+^*\omega_-^*\Big[\Gamma_m c^2(\omega_+^* + \omega_-^*) + 2\Gamma_n(d-a)\omega_+^*\omega_-^* + \Gamma_n(-ad + bc + a^2)(\omega_+^* + \omega_-^*)\Big] \\
&= -XY\omega_+^*\omega_-^*\sqrt{\beta^*}\Big[\Gamma_m c^2 + \Gamma_n(-ad + bc + a^2)\Big] \\
&\quad + \Gamma_+\sqrt{\beta^*}\omega_+^*\omega_-^*\Big[\Gamma_m c^2(a+d) + 2\Gamma_n(d-a)(ad - bc) + \Gamma_n(a+d)(a^2 - ad + bc)\Big] \\
&= \sqrt{\beta^*}\omega_+^*\omega_-^*\Big[(\Gamma_m\chi_\parallel^{-1} + \Gamma_n K_0)\{\Gamma_m c^2(a+d) + \Gamma_n(ad^2 - 2ad^2 + a^3 - bcd + 3abc)\} \\
&\quad - (a-d)(\Gamma_n K_0 - \Gamma_m\chi_\parallel^{-1})\{\Gamma_m c^2 + \Gamma_n(-ad + bc + a^2)\}\Big] \\
&= \sqrt{\beta^*}\omega_+^*\omega_-^*\Big[\Gamma_m c^2\{(\Gamma_m\chi_\parallel^{-1} + \Gamma_n K_0)(a+d) - (\Gamma_n K_0 - \Gamma_m\chi_\parallel^{-1})(a-d)\} \\
&\quad + \Gamma_n\{(\Gamma_m\chi_\parallel^{-1} + \Gamma_n K_0)(ad^2 - 2ad^2 + a^3 - bcd + 3abc) \\
&\quad - (\Gamma_n K_0 - \Gamma_m\chi_\parallel^{-1})(a-d)(-ad + bc + a^2)\}\Big] \\
&= \sqrt{\beta^*}\omega_+^*\omega_-^*\Big[2\Gamma_m c^2(\Gamma_m\chi_\parallel^{-1}a + \Gamma_n K_0 d) \\
&\quad + \Gamma_n\{\Gamma_m\chi_\parallel^{-1}\big(2a(a-d)^2 + 4abc - 2bcd\big) + 2\Gamma_n K_0 abc\}\Big] \\
&= \sqrt{\beta^*}\omega_+^*\omega_-^*\Big[2\Gamma_m c^2(\Gamma_m\chi_\parallel^{-1}a + \Gamma_n K_0 d) + \Gamma_n\Gamma_m\chi_\parallel^{-1}\{2a(a-d)^2 + 4abc\} + 2\Gamma_n^2 K_0 abc\Big] \\
&= 2\gamma H_0\sqrt{\beta^*}\omega_+^*\omega_-^*\Big[\Gamma_m^2\omega_0^2 n_{\mathrm{eq}}^2\chi_\parallel^{-3} + \Gamma_n\Gamma_m\chi_\parallel^{-1}(\gamma H_0)^2(1 - \chi_\parallel K_0)^2 \\
&\quad + 2\Gamma_m\Gamma_n\chi_\parallel^{-1}\omega_0^2 n_{\mathrm{eq}}^2 K_0\chi_\parallel^{-1} + \Gamma_n^2 K_0\omega_0^2 n_{\mathrm{eq}}^2 K_0\chi_\parallel^{-1}\Big] \\
&= 2\gamma H_0\sqrt{\beta^*}\omega_+^*\omega_-^*\Big[\omega_0^2 n_{\mathrm{eq}}^2\chi_\parallel^{-1}(\Gamma_m\chi_\parallel^{-1})^2 + 2\Gamma_n K_0\Gamma_m\chi_\parallel^{-1}\omega_0^2 n_{\mathrm{eq}}^2\chi_\parallel^{-1} \\
&\quad + (\Gamma_n K_0)^2\omega_0^2 n_{\mathrm{eq}}^2\chi_\parallel^{-1} + \Gamma_m\chi_\parallel^{-1}\Gamma_n(\gamma H_0)^2(1 - \chi_\parallel K_0)^2\Big] \\
&= 2\gamma H_0\sqrt{\beta^*}\omega_+^*\omega_-^*\Big[\omega_0^2 n_{\mathrm{eq}}^2\chi_\parallel^{-1}\Gamma_+^2 + \Gamma_m\chi_\parallel^{-1}\Gamma_n(\gamma H_0)^2(1 - \chi_\parallel K_0)^2\Big] \\
&= 2\gamma H_0\sqrt{\beta^*}\omega_+^*\omega_-^* K_0^{-1}\Big[\omega_0^2 n_{\mathrm{eq}}^2\chi_\parallel^{-1}K_0\Gamma_+^2 + \Gamma_m\chi_\parallel^{-1}\Gamma_n K_0(\gamma H_0)^2(1 - \chi_\parallel K_0)^2\Big] \\
&= \frac{1}{2}\gamma\mathfrak{h}_0 m_{\mathrm{eq}}\sqrt{\beta^*}\omega_+^*\omega_-^*\chi_\parallel^{-1}K_0^{-1}\mathcal{D}
\end{aligned}
\tag{3.72}
$$

次に, 式 (3.71) の第二項の分子を計算する (ただし, τ_M^{-2} のファクターは後で復活させる.)

式 (3.71) の第 2 項の分子 (τ_M^{-2} のファクターは除く)

$$
\begin{aligned}
&= \{\Gamma_m c^2 + \Gamma_n(\omega_+^* - a)(\omega_+^* - a^*)\}\omega_+^*(\Gamma_+ + Y)(X - i\Gamma_+) \\
&\quad + \{\Gamma_m c^2 + \Gamma_n(\omega_-^* - a)(\omega_-^* - a^*)\}\omega_-^*(\Gamma_+ - Y)(X + i\Gamma_+) \\
&= \{\Gamma_m c^2 + \Gamma_n\big((a+d)\omega_+^* - ad + bc - 2a\omega_+^* + a^2\big)\}(\Gamma_+\sqrt{\beta^*} + XY)\omega_+^* \\
&\quad + \{\Gamma_m c^2 + \Gamma_n\big((a+d)\omega_-^* - ad + bc - 2a\omega_-^* + a^2\big)\}(\Gamma_+\sqrt{\beta^*} - XY)\omega_-^* \\
&= \Gamma_+\sqrt{\beta^*}\Big[\Gamma_m c^2(\omega_+^* + \omega_-^*) + \Gamma_n(d-a)({\omega_+^*}^2 + {\omega_-^*}^2) + \Gamma_n(a^2 - ad + bc)(\omega_+^* + \omega_-^*)\Big] \\
&\quad + XY\Big[\Gamma_m c^2(\omega_+^* - \omega_-^*) + \Gamma_n(d-a)({\omega_+^*}^2 - {\omega_-^*}^2) + \Gamma_n(a^2 - ad + bc)(\omega_+^* - \omega_-^*)\Big] \\
&= \Gamma_+\sqrt{\beta^*}\Big[\Gamma_m c^2(a+d) + \Gamma_n(d-a)(a^2 + d^2 + 2bc) + \Gamma_n(a^2 - ad + bc)(a+d)\Big] \\
&\quad + XY\sqrt{\beta^*}\Big[\Gamma_m c^2 + \Gamma_n(d-a)(a+d) + \Gamma_n(a^2 - ad + bc)\Big] \\
&= \Gamma_+\sqrt{\beta^*}\Big[\Gamma_m c^2(a+d) + \Gamma_n\big(d(d-a)^2 + 3bcd - abc\big)\Big] \\
&\quad + XY\sqrt{\beta^*}\Big[\Gamma_m c^2 + \Gamma_n\big(d(d-a) + bc\big)\Big] \\
&= \sqrt{\beta^*}\Big[\Gamma_m c^2\{\Gamma_+(a+d) + \Gamma_-(a-d)\} + \Gamma_n\{\Gamma_+\big(d(d-a)^2 + 3bcd - abc\big) \\
&\quad + \Gamma_-\big(-d(a-d)^2 + bc(a-d)\big)\}\Big] \\
&= \sqrt{\beta^*}\Big[\Gamma_m c^2(2d\Gamma_m\chi_\parallel^{-1} + 2a\Gamma_n K_0) + \Gamma_n\{d(a-d)^2\big(\Gamma_m\chi_\parallel^{-1} + \Gamma_n K_0 - (\Gamma_n K_0 - \Gamma_m\chi_\parallel^{-1})\big) \\
&\quad + bcd(3\Gamma_m\chi_\parallel^{-1} + 3\Gamma_n K_0 - \Gamma_n K_0 + \Gamma_m\chi_\parallel^{-1}) + abc(\Gamma_n K_0 - \Gamma_m\chi_\parallel^{-1} - \Gamma_m\chi_\parallel^{-1} - \Gamma_n K_0)\}\Big] \\
&= \sqrt{\beta^*}\Big[2\Gamma_m\omega_0^2 n_{\mathrm{eq}}^2\chi_\parallel^{-2}\Gamma_m\chi_\parallel^{-1}\omega_0 m_{\mathrm{eq}}K_0 + 2\Gamma_n d(a-d)^2\Gamma_m\chi_\parallel^{-1} \\
&\quad + 4\Gamma_n\omega_0^2 n_{\mathrm{eq}}^2 K_0\chi_\parallel^{-1}\omega_0 m_{\mathrm{eq}}K_0\Gamma_m\chi_\parallel^{-1} + 2\Gamma_n\omega_0^2 n_{\mathrm{eq}}^2\chi_\parallel^{-1}K_0\omega_0 m_{\mathrm{eq}}K_0\Gamma_n K_0\Big] \\
&= \sqrt{\beta^*}\Big[2(\Gamma_m\chi_\parallel^{-1})^2\omega_0^2 n_{\mathrm{eq}}^2\gamma H_0 K_0 + 2\Gamma_m\Gamma_n K_0(\gamma H_0)^2(1 - \chi_\parallel K_0)^2\gamma H_0 \\
&\quad + 4\Gamma_m\chi_\parallel^{-1}\Gamma_n K_0\omega_0^2 n_{\mathrm{eq}}^2\gamma H_0 K_0 + 2(\Gamma_n K_0)^2\omega_0^2 n_{\mathrm{eq}}^2\gamma H_0 K_0\Big] \\
&= 2\sqrt{\beta^*}\gamma H_0\Big[\omega_0^2 n_{\mathrm{eq}}^2\Gamma_+^2 K_0 + \Gamma_m\Gamma_n(\gamma H_0)^2(1 - \chi_\parallel K_0)^2 K_0\Big] \\
&= 2\sqrt{\beta^*}\gamma H_0\chi_\parallel\Big[\omega_0^2 n_{\mathrm{eq}}^2\chi_\parallel^{-1}\Gamma_+^2 K_0 + \Gamma_m\chi_\parallel^{-1}\Gamma_n K_0(\gamma H_0)^2(1 - \chi_\parallel K_0)^2\Big] \\
&= \frac{1}{2}\sqrt{\beta^*}\gamma\mathfrak{h}_0 m_{\mathrm{eq}}\mathcal{D}
\end{aligned}
\tag{3.73}
$$

式 (3.72), 式 (3.73) より, 周波数積分 $\mathcal{L}_n$[式 (3.71)] は

$$
\begin{aligned}
&\mathcal{L}_n \\
&= \int \frac{d\omega}{2\pi}\Big[\Gamma_m|F_n(\omega)^-|^2 + \Gamma_n|F_m(\omega)^-|^2\Big]|g^-(\omega)|^2\omega \\
&= \frac{(\omega_+^*\omega_-^*\gamma\mathfrak{h}_0 m_{\mathrm{eq}}(K_0\chi_\parallel)^{-1} + \tau_M^{-2}\gamma\mathfrak{h}_0 m_{\mathrm{eq}})\mathcal{D}\sqrt{\beta^*}}{2\sqrt{\beta^*}\mathcal{D}({\omega_+^*}^2 + \tau_M^{-2})({\omega_-^*}^2 + \tau_M^{-2})} \\
&= \gamma\mathfrak{h}_0 m_{\mathrm{eq}}\cdot\frac{\omega_+^*\omega_-^*(K_0\chi_\parallel)^{-1} + \tau_M^{-2}}{2({\omega_+^*}^2 + \tau_M^{-2})({\omega_-^*}^2 + \tau_M^{-2})} \\
&\approx \gamma\mathfrak{h}_0 m_{\mathrm{eq}}\tau_{\mathrm{M}}^2\cdot\frac{1 + \omega_\alpha\omega_\beta\tau_{\mathrm{M}}^2(K_0\chi_\parallel)^{-1}}{2(1 + \omega_\alpha^2\tau_{\mathrm{M}}^2)(1 + \omega_\beta^2\tau_{\mathrm{M}}^2)}
\end{aligned}
\tag{3.74}
$$

ただし, 最後に $\mathrm{Re}[\omega_+] = \omega_\alpha, \mathrm{Re}[\omega_-] = \omega_\beta$ と定義し, $\mathrm{Re}[\omega_+] \gg \mathrm{Im}[\omega_+], \mathrm{Re}[\omega_-] \gg \mathrm{Im}[\omega_-]$ であることを用いた. 上式を式 (3.69) に用いれば, Néel coupling の場合のスピン流が得られる:

$$I_s = \frac{2J_{\mathrm{sd}}^2 \chi_{\mathrm{M}} \tau_{\mathrm{M}} m_{\mathrm{eq}} k_{\mathrm{B}} \Delta T}{\hbar^2} \cdot \frac{1 + \omega_\alpha \omega_\beta \tau_{\mathrm{M}}^2 K_0 \chi_\parallel}{(1 + \omega_\alpha^2 \tau_{\mathrm{M}}^2)(1 + \omega_\beta^2 \tau_{\mathrm{M}}^2)} \tag{3.75}$$

3.5 解析計算の結果に対する考察

3.4.1 及び 3.4.2 において得られた十分低磁場におけるスピン流の計算結果をまとめる．反強磁性体から非磁性金属へのスピン流 (反強磁性体の温度 T に比例するスピン注入成分) を明示的に書けば次のようになっている:

$$I_s^{\mathrm{pump}} = \begin{cases} -\dfrac{2J_{\mathrm{sd}}^2\chi_{\mathrm{M}}\tau_{\mathrm{M}}\chi_{\parallel}H_0k_{\mathrm{B}}T}{\mathfrak{h}_0\hbar^2}\cdot\dfrac{1+\omega_\alpha\omega_\beta\tau_{\mathrm{M}}^2K_0\chi_{\parallel}}{(1+\omega_\alpha^2\tau_{\mathrm{M}}^2)(1+\omega_\beta^2\tau_{\mathrm{M}}^2)} & \text{for magnetic coupling} \\ -\dfrac{2J_{\mathrm{sd}}^2\chi_{\mathrm{M}}\tau_{\mathrm{M}}\chi_{\parallel}H_0k_{\mathrm{B}}T}{\mathfrak{h}_0\hbar^2}\cdot\dfrac{1+\omega_\alpha\omega_\beta\tau_{\mathrm{M}}^2(K_0\chi_{\parallel})^{-1}}{(1+\omega_\alpha^2\tau_{\mathrm{M}}^2)(1+\omega_\beta^2\tau_{\mathrm{M}}^2)} & \text{for Néel coupling} \end{cases} \tag{3.76}$$

この結果では, 物質パラメータが全て明示的に表現されている．一方で, スピン流の振る舞いを議論するために, 非磁性金属のスピン吸収度を表す動的スピン帯磁率 $\chi_{\mathrm{M}}(\omega) = \chi_{\mathrm{M}}/(1-i\omega\tau_{\mathrm{M}})$ を用いた表現 [58, 59] が便利である (以降, α と β モードのスピン流の競合を議論するために, 適宜この表式を使って議論する事がある.):

$$I_s^{\mathrm{pump}} \approx \frac{2J_{\mathrm{sd}}^2\chi_{\parallel}k_{\mathrm{B}}T}{\epsilon_0 v_0\hbar(1+\chi_{\parallel}K_0)}\Big[-D_m^{(\alpha)}|\mathrm{Im}\chi_{\mathrm{M}}(\omega_\alpha)| + D_m^{(\beta)}|\mathrm{Im}\chi_{\mathrm{M}}(\omega_\beta)|\Big] \quad \text{for magnetic coupling} \tag{3.77}$$

$$I_s^{\mathrm{pump}} \approx \frac{2J_{\mathrm{sd}}^2\chi_{\parallel}k_{\mathrm{B}}T}{\epsilon_0 v_0\hbar(1+\chi_{\parallel}K_0)}\Big[-D_n^{(\alpha)}|\mathrm{Im}\chi_{\mathrm{M}}(\omega_\alpha)| + D_n^{(\beta)}|\mathrm{Im}\chi_{\mathrm{M}}(\omega_\beta)|\Big] \quad \text{for Néel coupling} \tag{3.78}$$

ただし, 界面マグノン密度 $D_m^{(\alpha)}$, $D_m^{(\beta)}$, $D_n^{(\alpha)}$, $D_n^{(\beta)}$ は次式で与えられる:

$$D_m^{(\alpha)} = \frac{|\omega_\alpha| + |\omega_\beta|(K_0\chi_{\parallel})^{+1}}{|\omega_\alpha| + |\omega_\beta|}, \quad D_m^{(\beta)} = \frac{|\omega_\beta| + |\omega_\alpha|(K_0\chi_{\parallel})^{+1}}{|\omega_\alpha| + |\omega_\beta|} \tag{3.79}$$

$$D_n^{(\alpha)} = \frac{|\omega_\alpha| + |\omega_\beta|(K_0\chi_{\parallel})^{-1}}{|\omega_\alpha| + |\omega_\beta|}, \quad D_n^{(\beta)} = \frac{|\omega_\beta| + |\omega_\alpha|(K_0\chi_{\parallel})^{-1}}{|\omega_\alpha| + |\omega_\beta|} \tag{3.80}$$

ここで, 界面マグノン密度 D の指数にある (α), (β) は α 及び β のマグノンモード, 下添字 m, n はそれぞれ magnetic coupling, Néel coupling の場合を指している．上記の式は, それぞれの界面交換結合に対して, 各マグノンの界面マグノン密度が異なる事を意味している.

式 (3.77) 及び式 (3.78) における第一項は α マグノンによるスピン流, 第二項は β マグノンによるスピン流を表しており, α 及び β のチャンネルに対して非磁性金属のスピン吸収度 $\mathrm{Im}\chi_{\mathrm{M}}(\omega)$ が異なる事に注意されたい．この表式は, 振動電場に対する電流の遅れ成分が, 電子及び正孔の動的応答関数 (の虚部) の和で表現される事と類似している．しかし, 今の場合は単色の波ではなく, α 及び β という 2 つのスピン波に対する非磁性金属スピンの応答を考えなければならない.

(1) スピン流の磁場依存性に関する考察

まずはスピン流 I_s の磁場依存性について議論する．式 (3.76) によれば, スピン流は磁場に比例する．この結果から, 反強磁性スピンゼーベック効果を観測するためには, 磁場を印加する事で反強磁性体の時間反転対称性を破る必要があると言える．この結果は, これまでの一軸異方性の反強磁性絶縁体 MnF_2[67], FeF_2[5], Cr_2O_3[66, 6], α-Fe_2O_3[65] における実験結果と整合す

る．有限なスピン流を得るために時間反転対称性を破る必要があるのは何故だろうか．これは, ゼロ磁場では $-\hbar$ を運ぶ α マグノンと $+\hbar$ を運ぶ β マグノンが縮退しており, 互いのマグノンスピン流が打ち消し合うからである．実際, ゼロ磁場ではマグノン縮退によって $|\omega_\alpha| = |\omega_\beta|$ 及び $|\mathrm{Im}\chi_\mathrm{M}(\omega_\alpha)| = |\mathrm{Im}\chi_\mathrm{M}(\omega_\beta)|$ が成り立つから, 式 (3.77) 及び式 (3.78) において各チャンネルのスピン流は打ち消し合う．この結果は一軸異方性の反強磁性体に対する結果であるが, ゼロ磁場でもスピン流を得たい場合には, NiO のように 2 つの異方性によってゼロ磁場でもマグノン縮退が解けている物質を用いれば良い [62, 60].

(2) ネール温度近傍のスピン流の温度依存性に関する考察

スピン流の温度依存性について考察する．式 (3.76) によれば, スピン流は反強磁性スピン帯磁率 $\chi_\parallel$ に比例する．他の因子の温度依存性が弱いと仮定すれば, 反強磁性スピンゼーベック効果の強い温度依存性を引き出すのはこのスピン帯磁率である．従って, スピン帯磁率 $\chi_\parallel$ がネール温度にピーク構造を持つ事を反映して, 反強磁性スピンゼーベック効果もネール温度にピーク構造を持つ．この結果は Li 等による FeF_2 を用いた実験結果 [5] に対して一つの理論的説明を与えている [図 1.13 参照]．それでは, 何故スピン流が反強磁性スピン帯磁率に関連しているのだろうか．スピンキャリアであるマグノンは, 正味の磁化の変化量だけスピン角運動量を輸送できる．そしてその可能な限り最大の変化量はスピン帯磁率で記述されるから, スピンの輸送量はスピン帯磁率に関連する．実際, 簡単な計算によって, 磁化の変化量に相当する $\left\langle \delta m_x^2(t) + \delta m_y^2(t) \right\rangle$ がスピン帯磁率に比例する事を示すことができる．

バルクの寄与について述べる．本研究ではバルクの寄与は入っていないが, ボルツマン方程式及び Holstein-Primakoff 変換に基づいてバルクのマグノンスピン流を評価した先行理論研究 [61] により, ネール温度においてスピンゼーベック効果のピーク構造は存在しないという結果が示されている．しかし, この自由なマグノン描像に基づく計算は低温でのみ正当化されるため, ネール温度近傍を議論するためにはスピンのずれを生成するボゾン演算子について高次の効果を取り扱う必要がある (スピン波間の相互作用を考慮する必要がある).

現象論的には, ネール温度近傍のマグノン拡散については時間依存ギンツブルグ・ランダウ方程式において拡散項を導入した議論が可能である．しかし, この拡散効果を取り扱うためには空間依存性を考慮した数値シミュレーションを行う必要があり, 収束に必要な時間が増大すると予測される．そのため, この話題については将来の研究に期待する．

(3) 大きなスピン流を得るための物質探索に関する考察

式 (3.76) によれば, スピン流は反強磁性体のスピン帯磁率 $\chi_\parallel$ に比例する．従って, より大きなスピン流を得るためにはスピン帯磁率の大きな反強磁性体を使えば良い．その物質探索においては, ネール温度におけるスピン帯磁率の値を比較すると便利である．分子場理論によれば, $\chi_\parallel(T_\mathrm{N}) \sim 1/T_\mathrm{N}$ であるから, 結局ネール温度の低い反強磁性体を用いれば大きなスピン流を得る事ができる．実際, ネール温度近傍においては, $T_\mathrm{N} = 60\mathrm{K}$ の MnF_2[67], $T_\mathrm{N} = 70\mathrm{K}$ の FeF_2[5], $T_\mathrm{N} = 307\mathrm{K}$ の Cr_2O_3[6] の順に信号が大きい．

(4) スピン流の符号に関する考察と実験との比較

(i) ネール温度近傍の考察

一般の反強磁性体では, 反強磁性体の一軸異方性定数 K_0 とスピン帯磁率 $\chi_\parallel$ の積について, $K_0\chi_\parallel \ll 1$ である. 従って, マグノン密度 [式 (3.79), 式 (3.80)] について $D_m^{(\alpha)} > D_m^{(\beta)}$, $D_n^{(\alpha)} < D_n^{(\beta)}$ が成り立つ. この結果から, magnetic coupling の場合には $D_m^{(\alpha)}$ $|\mathrm{Im}\chi_\mathrm{M}(\omega_\alpha)| > D_m^{(\beta)}$ $|\mathrm{Im}\chi_\mathrm{M}(\omega_\beta)|$ が成り立ち, α マグノンのスピン流が支配的となる. 即ち, $I_s^\mathrm{pump} < 0$ となる. 一方, Néel coupling の場合にはマグノン密度について $D_n^{(\beta)} > D_n^{(\alpha)}$ であり, $D_n^{(\alpha)}$ $|\mathrm{Im}\chi_\mathrm{M}(\omega_\alpha)| < D_n^{(\beta)}$ $|\mathrm{Im}\chi_\mathrm{M}(\omega_\beta)|$ となり得る. 即ち, Néel coupling の場合には, $+\hbar$ を運ぶ β マグノンのスピン流が支配的となり, $I_s^\mathrm{pump} > 0$ となる可能性が高くなる. 以上の結果は, 2015 年の関等の用いた Cr_2O_3[66], 2016 年の Wu 等の用いた MnF_2[67], 2019 年の Li 等の用いた FeF_2[5], 2020 年の Li 等の用いた Cr_2O_3/Ta[6] におけるネール温度近傍の実験結果を統一的に説明する事ができる.

さらにネール温度の極近傍 ($T \sim T_\mathrm{N}$) まで温度を上げると, やがて $|D_n^{(\alpha)}\mathrm{Im}\chi_\mathrm{M}(\omega_\alpha)| > |D_n^{(\beta)}\mathrm{Im}\chi_\mathrm{M}(\omega_\beta)|$ が成り立つ領域に達する [式 (3.76) で言えば, $|\omega_\alpha\omega_\beta|\tau_\mathrm{M}^2 \sim K_0\chi_\parallel$ を満たす温度の時である]. この時, 今度は α マグノンのスピン流が支配的になり, $I_s^\mathrm{pump} < 0$ となる. 即ち, Néel coupling が支配的な場合には, 上述の温度を境に I_s^pump の符号が正 (β マグノンが支配的な時の符号) から負 (α マグノンが支配的な時の符号) へと切り替わる. この符号変化の振る舞いは, Li 等の用いた Cr_2O_3/Pt[6] における実験結果 [図 1.14d 参照] を説明する. やがて $T = T_\mathrm{N}$ に達すると連続的に常磁性スピンゼーベック効果に移行するため, Li 等の Cr_2O_3/Ta[6] における実験結果 [図 1.14c 参照] においても, 300K からネール温度 307K の間で符号が切り替わる温度が存在すると予測される.

(ii) 低温領域の考察

(i) の結果はネール温度近傍に適用されるが, 低温においても式 (3.77) 及び式 (3.78) が成り立つと仮定して考察を行ってみよう. より低温に向かうにつれて, 反強磁性スピン帯磁率 $\chi_\parallel$ は小さくなる. 従って, $K_0\chi_\parallel \ll 1$ の不等式の成立がより正当化され, magnetic coupling の場合には $I_s^\mathrm{pump} < 0$, Néel coupling の場合には $I_s^\mathrm{pump} > 0$ とする可能性がより高まる.

以上から, ネール温度近傍の結果が低温においても成り立つと仮定すれば, 関等の用いた Cr_2O_3[66], Wu 等の用いた MnF_2[67], Li 等の用いた FeF_2[5], Li 等の用いた Cr_2O_3[6], Yuan 等の用いた α-Fe_2O_3[65] における低温の実験結果も, 本研究の結果で統一的に説明できる.

(5) スピンフロップ転移後のスピン流の符号に関する考察

本章の結果は十分低磁場に適用できる. しかし, この結果からスピンフロップ転移後でのスピン流の符号を推測できる. スピンフロップ転移後では, $+\hbar$ のスピンを運ぶ極性マグノンは存在せず, $-\hbar$ のスピンを運ぶ極性マグノン (いわゆる Quasi-Ferromagnetic-Resonance-Mode) のみ存在する.[図 2.9(a)]. さらに, ネール秩序は容易軸方向からそれに垂直な方向に回転する. 従って, 式 (3.76) において $\omega_\alpha \to \omega_\mathrm{QFMR}$(これらはどちらも負のスピン角運動量を運ぶ), $\chi_\parallel \to \chi_\perp$ と置換さ

れる事が予想できる．以上から, 注入されるスピン流の表式は以下のようになると考えられる:

$$I_s^{\mathrm{pump}} \sim \begin{cases} -\dfrac{2J_{\mathrm{sd}}^2\chi_{\mathrm{M}}\tau_{\mathrm{M}}\chi_{\perp}H_0k_{\mathrm{B}}T}{\mathfrak{h}_0\hbar^2}\cdot\dfrac{1}{1+\omega_{\mathrm{QFMR}}^2\tau_{\mathrm{M}}^2} & \text{for magnetic coupling} \\ -\dfrac{2J_{\mathrm{sd}}^2\chi_{\mathrm{M}}\tau_{\mathrm{M}}\chi_{\perp}H_0k_{\mathrm{B}}T}{\mathfrak{h}_0\hbar^2}\cdot\dfrac{1}{1+\omega_{\mathrm{QFMR}}^2\tau_{\mathrm{M}}^2} & \text{for Néel coupling} \end{cases} \tag{3.81}$$

この推測の式から, 常に $I_s^{\mathrm{pump}} < 0$ である事が推測される．この事は, スピンフロップ相では強磁性体や常磁性体, そして反強磁性体の α マグノンと同じく, $-\hbar$ のスピン角運動量を運ぶ極性マグノンしか存在しない事からも明らかである [極性については, 共鳴実験のシミュレーション結果である図 2.9(c) によって明らかにされている]．実際にスピンフロップ相におけるスピン流の符号が $I_s^{\mathrm{pump}} < 0$ となる事は, 次章のシミュレーションで示されている．

3.6 まとめ

最初にスピン流の磁場依存性についてまとめる．式 (3.76) で示したように, スピン流は外部磁場に比例する．そのため, ゼロ磁場では非磁性金属に注入されるスピン流はゼロである．この結果は, これまで行われてきた一軸異方性の反強磁性絶縁体 MnF_2[67], FeF_2[5], Cr_2O_3[66, 6], α-Fe_2O_3[65] における実験結果と整合する．外部磁場印加によって反強磁性体の時間反転対称性を破る必要がある理由は, ゼロ磁場では α 及び β マグノンが縮退して正味のスピン流がゼロとなるからである．従って, 有限なスピン流を得るためには外部印加磁場によってマグノン縮退を解かなければならない．

スピン流の温度依存性に関しては, スピン流が反強磁性スピン帯磁率に比例する事が示された．従って, スピン帯磁率がネール温度にピーク構造を持つ事を反映してスピン流にもネール温度にピーク構造が現れる事が示された [69, 68]．これは, FeF_2 を用いた反強磁性スピンゼーベック効果の実験結果 [5] に対して一つの理論的説明を与えている [図 1.13 参照]．さらに, より大きなスピン流を得るためにはスピン帯磁率の大きな反強磁性体を用いれば良い, という物質探索の指針も提示した．

最後に, スピン流の符号に関してまとめる．magnetic coupling が支配的な場合には $I_s^{\mathrm{pump}} < 0$(α マグノンが支配的) であり, Néel coupling が支配的な場合には $I_s^{\mathrm{pump}} > 0$(β マグノンが支配的) となる可能性が高い．一方, スピンフロップ相では強磁性又は常磁性スピンゼーベック効果と同符号のスピン流 (即ち $I_s^{\mathrm{pump}} < 0$) が予想された．従って, Néel coupling が支配的な場合に符号反転現象が観測されると予想できる．しかし, ここで得た結果は, スピンフロップ磁場よりも十分低磁場の領域にのみ適用できるため, 符号反転現象がスピンフロップ磁場近傍で実際に生じるか否かを確かめるためには数値シミュレーションを行う必要がある (解析計算は困難である)．次章では実際に『スピンフロップ転移を跨いだ反強磁性スピンゼーベック効果の数値シミュレーション』を実施し, 本章の結果に対する実証を試みる．

第 4 章

スピンフロップ転移を伴う反強磁性スピンゼーベック効果：数値シミュレーション

2020 年, Li 等は一軸異方性の反強磁性絶縁体 Cr_2O_3 を用いたスピンゼーベック効果の実験を行った [6]. その結果, Cr_2O_3 のスピンゼーベック効果がスピンフロップ転移に伴って符号を反転することが報告された. さらに, エッチング処理により界面状態を変えると, この符号反転が消失することも報告された [図 1.15]. 一方, Reitz 等による理論研究では, 界面の詳細に依存せず常に符号反転現象が生じるという結論が得られており, マグノン描像に立脚した反強磁性スピンゼーベック効果に対する理解が揺るがされている状況である. 以上の背景から, この符号反転現象が反強磁性体に普遍的に現れるか否かを理論的に明らかにし, 反強磁性スピンゼーベック効果の理解を促進する必要がある. そこで本研究では, 接合系における微視的な界面交換結合に着目し, スピンフロップ転移を跨いだ反強磁性スピンゼーベック効果の数値シミュレーションを実施する. 本研究によって, この界面交換結合に関する微視的な詳細が符号反転現象の有無を決定する事が明らかとなり, これまでの実験結果を統一的に理解する事ができる [68].

以下では, 最初にスピン流の評価方法を述べ, 次にスピン流の計算結果を議論する.

4.1 スピン流の評価方法

スピンフロップ転移を跨いだ反強磁性スピンゼーベック効果を評価するために, 式 (2.19) の下に記載した手順で時間依存ギンツブルグ・ランダウ方程式と Bloch 方程式を解き (Langevin 法), スピン流の統計平均 [式 (3.13)] を評価する. この際, 式 (3.13) を次の差分化された量に置き換えて評価する:

$$I_s = \begin{cases} \dfrac{1}{N_{\mathrm{step}}} \dfrac{J_{\mathrm{sd}}}{\hbar} \displaystyle\sum_{p=1}^{N_{\mathrm{step}}} \{m_x(t_p)s_y(t_p) - s_x(t_p)m_y(t_p)\} & \text{for magnetic coupling} \\ \dfrac{1}{N_{\mathrm{step}}} \dfrac{J_{\mathrm{sd}}}{\hbar} \displaystyle\sum_{p=1}^{N_{\mathrm{step}}} \{n_x(t_p)s_y(t_p) - s_x(t_p)n_y(t_p)\} & \text{for Néel coupling} \end{cases} \tag{4.1}$$

ここで, N_{step} はスピンの運動の軌道に沿った測定回数である. 次節では, この式に基づいて評価したスピン流の温度差に対する応答, 磁場依存性, 温度依存性を示す.

4.2 シミュレーションの結果

以下では, 反強磁性体の温度を T, 非磁性金属の温度をそれより ΔT だけ高い $T+\Delta T$ に設定し, スピン流の温度差 ΔT に対する応答, 磁場依存性, 温度依存性を示す. その際, $\widetilde{\omega}_0 := \gamma\mathfrak{h}_0\tau_{\mathrm{M}}$ のように非磁性金属スピンのスピン緩和の強さを無次元化して表現し, $\widetilde{\omega}_0 = 0.5,\ 0.04$ のそれぞれの場合でスピン流を計算する.

(記号に関する注意)
本研究のシミュレーションでは, T_{N} を温度の単位, 粗視化空間内で定義される磁場 $\mathfrak{h}_0 := \epsilon_0 v_0/(\gamma\hbar)$ を磁場の単位, 非磁性金属スピンのスピン緩和緩和時間 τ_{M} を時間の単位として, $T/T_{\mathrm{N}} \to T$, $H/\mathfrak{h}_0 \to H$, $t/\tau_{\mathrm{M}} \to t$ のようにスケール変換している. そのため, 温度は T, 磁場は H_0, 時間は t のように記述している事に注意して欲しい. なお, $\mathfrak{h}_0$, τ_{M} の詳細については 2.1 を参照されたい.

4.2.1 スピン流の温度差に対する応答

最初に, 温度差がない時には有意なスピン流が生じない事, 及び, スピン流が温度差 ΔT に対して線形応答の範囲内である事を示す. 温度差が無い時には有意なスピン流が得られないため, 後述のスピン流の温度・磁場依存性が数値的に安全に評価されている事が確認できる.

図 4.1 は, 非磁性金属のスピン緩和の強さが $\widetilde{\omega}_0 = 0.5$ とした時のスピン流の温度差応答を示している. (a) は magnetic coupling, (b) は Néel coupling の場合を示している. いずれも反強磁性体の温度は常に $T = 0.7$ として固定し, 非磁性金属の温度を $T+\Delta T$ として温度を増加させている. 青色のデータは反強磁性相において $H_0 = 0.2$, 緑色のデータは反強磁性相において $H_0 = 0.4$, オレンジ色のデータはスピンフロップ相において $H_0 = 1.0$ としてスピン流を評価した結果である. いずれの場合も, スピン流が温度差 ΔT に関して切片ゼロの線形応答の範囲で応答している事を示している [42]. 次に, スピン流の符号に着目してデータを観察する. magnetic coupling[図 4.1(a)] の場合にはスピンフロップ転移を跨いでもスピン流の符号は変化していない事が分かる. 一方, Néel coupling[図 4.1(b)] の場合には反強磁性相においてスピン流が負であるが, スピンフロップ相では正のスピン流が得られている事が分かる. 即ち, スピンフロップ相を跨いだ際にスピンゼーベック効果の符号反転現象が起きていることが示唆される.

次に, $\widetilde{\omega}_0 = 0.04$ のように非磁性金属のスピン緩和の強さをより強くした時のスピン流の温度差応答を計算する. 結果は図 4.2 に示されている. 他のパラメータは図 4.1 と全て同じである事に注意してほしい. 図 4.2 から, $\widetilde{\omega}_0 = 0.04$ の場合にもスピン流が温度差に対して線形応答している事が確認できる. スピン流の符号に着目すると, magnetic coupling の場合 [図 4.2(a)] には, [図 4.1(a)] と同様にスピン流の符号反転現象は起きていないが, Néel coupling においては図 4.1(b) で示唆された符号反転現象が消失している事が確認できる [図 4.2(b)].

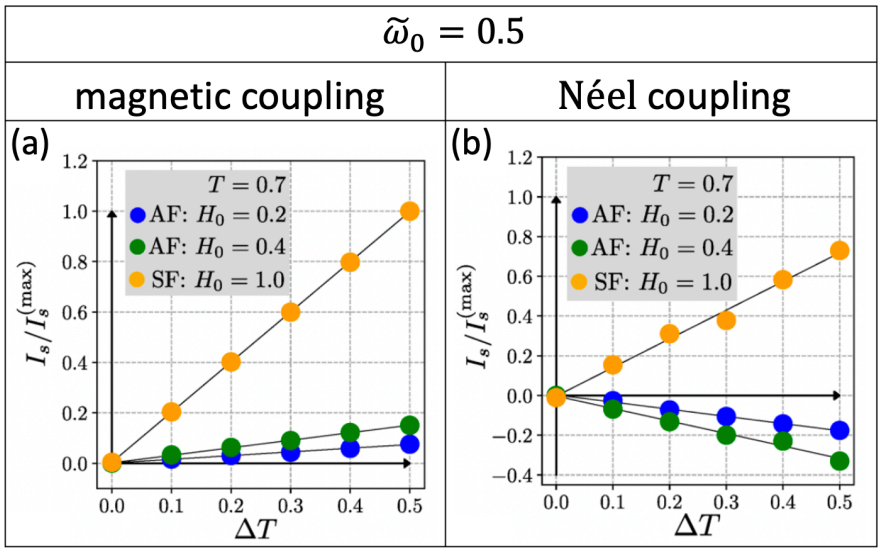

図 4.1　(a)magnetic coupling, (b)Néel coupling の場合のスピン流の温度差応答．反強磁性体の温度は $T = 0.7$ に固定し，非磁性金属の温度を $T + \Delta T$ として温度を上昇させている．青色のデータは反強磁性相において $H_0 = 0.2$, 緑色のデータは反強磁性相において $H_0 = 0.4$, オレンジ色のデータはスピンフロップ相において $H_0 = 1.0$ としてスピン流を評価した結果を示している．(a), (b) いずれも，縦軸を (a) のスピンフロップ相におけるスピン流の最大値で規格化している．パラメータ: $\widetilde{\omega}_0 = 0.5$, $\widetilde{\Gamma}_m = 0.01$, $\widetilde{\Gamma}_n = 0.02$, $\widetilde{J}_{\rm sd} = 0.01$, $k_{\rm B}T/(\epsilon_0 v_0) = 1.4 \times 10^{-4}$, $N_{\rm step} = 1 \times 10^{10}$ in (a), $N_{\rm step} = 1 \times 10^{11}$ in (b)．平衡状態を特徴付けるパラメータは図 2.4(a) と同じく $u_4 = 0.1$, $K_0 = 0.1$, $K_1 = 0.01$, $D = 0.4$, $D' = 0.07$, $\Theta/T_{\rm N} = 1.0$, $A/T_{\rm N} = 1.43$ である．Reprinted with permission from Ref [68]. Copyright (2022) by the American Physical Society.

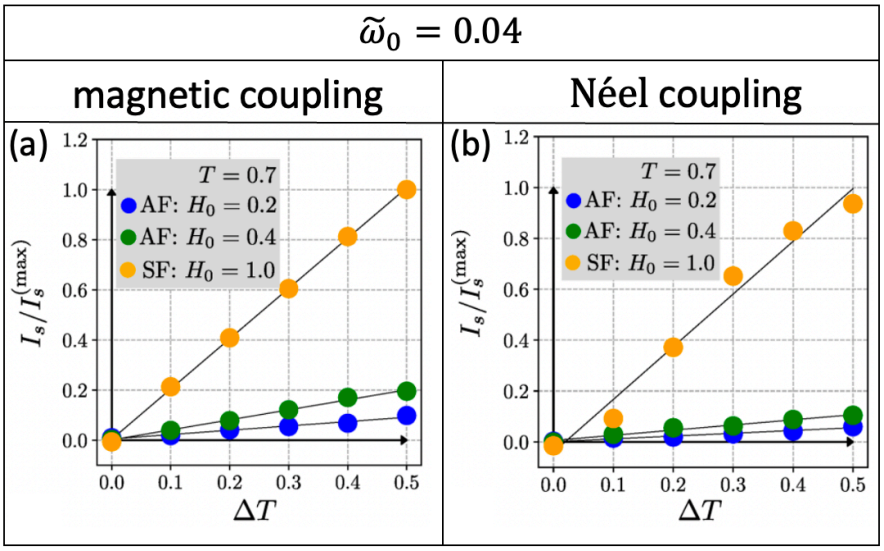

図 4.2　(a)magnetic coupling, (b) Néel coupling の場合のスピン流の温度差応答．パラメータ: $\widetilde{\omega}_0 = 0.04$, $\widehat{\Gamma}_m = 8 \times 10^{-4}$, $\widetilde{\Gamma}_n = 1.6 \times 10^{-3}$, $\widetilde{J}_{\rm sd} = 8 \times 10^{-4}$, $N_{\rm step} = 3 \times 10^{10}$ in (a), $N_{\rm step} = 8 \times 10^{11}$ in (b)．他のパラメータは図 4.1 と同じである．Reprinted with permission from Ref [68]. Copyright (2022) by the American Physical Society.

4.2.2 スピン流の磁場依存性

前節で, 本研究のモデルが温度差 ΔT に対して線形応答の範囲にある事を確認した. 次に, 実際にスピン流の磁場依存性を計算し, スピンフロップ転移がスピン流の符号に与える影響を調べる.

図 4.3 は, 非磁性金属のスピン緩和の強さを $\widetilde{\omega}_0 = 0.5$ に固定した際のスピン流の磁場依存性を計算した結果である. 青色, オレンジ色, 赤色のデータは反強磁性体の温度を $T = 0.7,\ 0.8,\ 1.1$ に固定して計算した結果を示している. magnetic coupling の場合 [図 4.3], $T = 0.7,\ 0.8$ のデータ [青色, オレンジ色] において, スピン流はスピンフロップ磁場を境に急激に増大している事が確認できる. この時, スピン流の符号は正を維持している. $T = 1.1$[赤色のデータ] では, 反強磁性体は常磁性状態にあるため, そのような急激な増大は見られない. この振る舞いは常磁性スピンゼーベック効果の実験結果と整合している [93]. 一方, Néel coupling の場合には, $T = 0.7\ 0.8$ のデータ [青色, オレンジ色] においてスピン流の符号が反転している事が確認できる. $T = 1.1$[赤色のデータ] の場合には, (a) と同様の振る舞いを示している.

次に, $\widetilde{\omega}_0 = 0.04$ のように非磁性金属のスピン緩和の強さをより強く設定した際のスピン流の磁場依存性を評価する [図 4.4]. magnetic coupling の場合 [図 4.4(a)], 図 4.3(a) と同様にスピンフロップ磁場を境にスピン流が増大し, スピン流の符号は正を維持している. 一方, Néel coupling の場合には, 図 4.3(b) で見られたスピン流の符号反転現象が消失している.

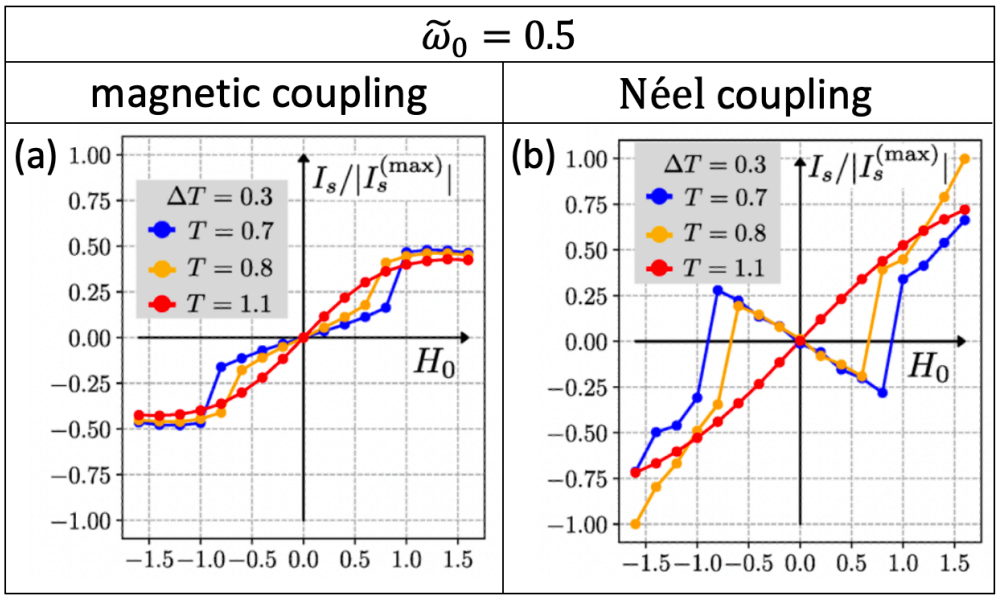

図 4.3 (a)magnetic coupling, 及び, (b) Néel coupling の場合のスピン流の磁場依存性. 非磁性金属のスピン緩和の強さを $\widetilde{\omega}_0 = 0.05$ に固定している. 青色, オレンジ色, 赤色のデータは反強磁性体の温度を $T = 0.7,\ 0.8,\ 1.1$ に固定して計算した結果を示している. 非磁性金属の温度は常に反強磁性体より $\Delta T = 0.3$ だけ高くなるように設定している. 縦軸は, Néel coupling の場合 [(b)] のスピン流の最大値で規格化している. (a),(b) のパラメータ: それぞれ図 4.1(a),(b) と同じ. Reprinted with permission from Ref [68]. Copyright (2022) by the American Physical Society.

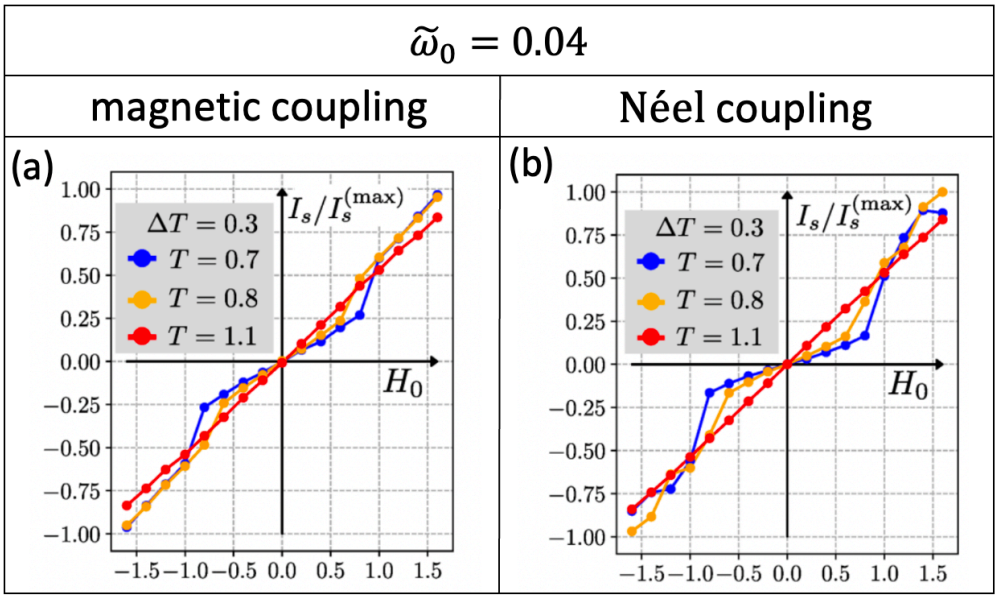

図 4.4　(a)magnetic coupling, 及び, (b) Néel coupling の場合のスピン流の磁場依存性. 非磁性金属のスピン緩和の強さを $\widetilde{\omega}_0 = 0.04$ に固定している. 図 4.3 と同様に, 青色, オレンジ色, 赤色のデータは反強磁性体の温度を $T = 0.7,\ 0.8,\ 1.1$ に固定して計算した結果を示している. 非磁性金属の温度は常に反強磁性体より $\Delta T = 0.3$ だけ高くなるように設定している. 縦軸は, Néel coupling の場合のスピン流の最大値で規格化している. パラメータ: (a) は図 4.2(a) と同じ. (b) は $N_{\mathrm{step}} = 2 \times 10^{12}$以外 図 4.2(b) と同じ. Reprinted with permission from Ref [68]. Copyright (2022) by the American Physical Society.

4.2.3　スピン流の温度依存性

Li 等による Cr_2O_3 を用いた反強磁性スピンゼーベック効果の実験では, 反強磁性相 (スピンフロップ磁場よりも低磁場側) のスピンゼーベック効果の符号が温度上昇に伴って反転している. そこで, 実際にスピン流の温度依存性を計算することでこの振る舞いを調査する. ただし, 実際の実験ではこのスピン流が逆スピンホール効果を通して電流に変換される事に再度注意されたい. その際, スピンホール角 (スピン流-電流変換効率)θ_{SH} の温度依存性も考慮する必要があるが, よく用いられる Pt においては温度依存性がほとんど無い [94].

図 4.5 は, 非磁性金属のスピン緩和の強さを (a)$\widetilde{\omega}_0 = 0.5$, 及び, (b)$\widetilde{\omega}_0 = 0.04$ に設定した際のスピン流の温度依存性の計算結果である. 青色のデータは magnetic coupling, 赤色のデータは Néel coupling の場合のスピン流である. 磁場は $H_0 = 0.1$ に固定しているため, ネール温度を跨いで反強磁性相から常磁性相のラインでスピン流を評価している [図 2.4(a) の相図参照].

図 4.5(a) では, magnetic coupling の場合にスピン流は常に正符号である. Néel coupling の場合, $T = 0.9$ 近傍までは負符号であるが, より高温側では正符号 (スピンフロップ相のスピン流と同符号) に切り替わっている. 即ち, スピンフロップ転移を跨いだ際の反強磁性スピンゼーベック効果の符号反転現象が消失している. この反強磁性相におけるスピン流の符号の切り替わりは, Li 等による Cr_2O_3 を用いた反強磁性スピンゼーベック効果の実験 [6] と整合した振る舞いである. より定量的には, Li 等の実験ではネール温度の 60% ∼ 70% 程度で起きていると推測されるが, 本研究のシミュレーション結果 [図 4.5(a)] ではネール温度の 90% 程度で生じている. (b) では常にスピン

流の符号は正であるから, $\widetilde{\omega}_0 = 0.5$ と $\widetilde{\omega}_0 = 0.04$ の間でスピン緩和の強さを調整すれば, Li 等の実験結果 [6] と同等程度の温度で符号が切り替わる事が期待できる. 図 4.6 は, 実際に非磁性金属のスピン緩和の強さを $\widetilde{\omega}_0 = 0.15$[$\widetilde{\omega}_0 = 0.5$ と $\widetilde{\omega}_0 = 0.04$ の間] に設定した際のスピン流の温度依存性を計算した結果である. Néel coupling の場合に, スピン流の符号がより低温で切り替わっていることが確認できる. このスピン流の符号の切り替わりは, β マグノンが支配的な領域から, α マグノンが支配的な温度に移行したためと考えられる. より詳しくは, 第 3 章の考察を参照されたい.

最後に, 図 4.5, 図 4.6 においてネール温度 $T = 1.0$ 近傍に現れるピーク構造に着目する. ピーク構造が出現するのは, スピン流が反強磁性体のスピン帯磁率に比例し, 温度依存性がこの因子に支配されるからである. これは, 第 3 章にて議論するスピン流の解析計算で明らかにされており, 図 1.13 に示すように Li 等による FeF_2 を用いた実験を説明する [5]. 従って, 測定が困難とされているナノスケール薄膜のネール温度を反強磁性スピンゼーベック効果を使って測定可能である [69].

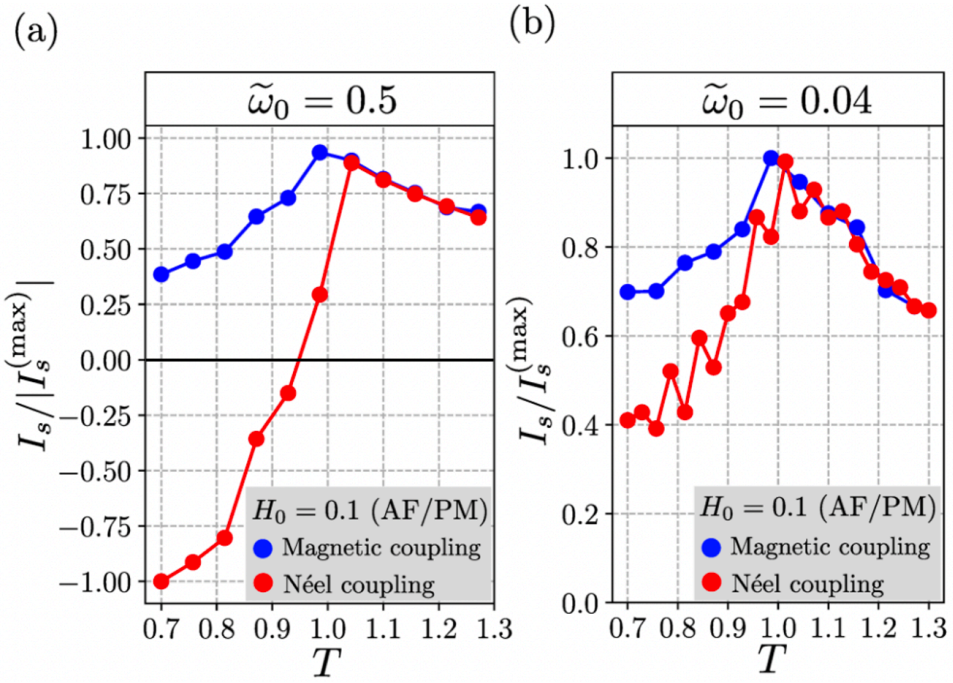

図 4.5 (a)$\widetilde{\omega}_0 = 0.5$, (b) $\widetilde{\omega}_0 = 0.04$ の場合のスピン流の温度依存性. 非磁性金属の温度は $\Delta T = 0.3$ だけ高くなるように固定している. (a) のパラメータ: magnetic coupling で $N_{\mathrm{step}} = 1\times10^{10}$, Néel coupling で $N_{\mathrm{step}} = 3\times10^{11}$. その他のパラメータは図 4.3 と同じ. (b) のパラメータ: magnetic coupling で $N_{\mathrm{step}} = 3\times10^{11}$, Néel coupling で $N_{\mathrm{step}} = 2\times10^{12}$. その他のパラメータは図 4.4 と同じ. Reprinted with permission from Ref [68]. Copyright (2022) by the American Physical Society.

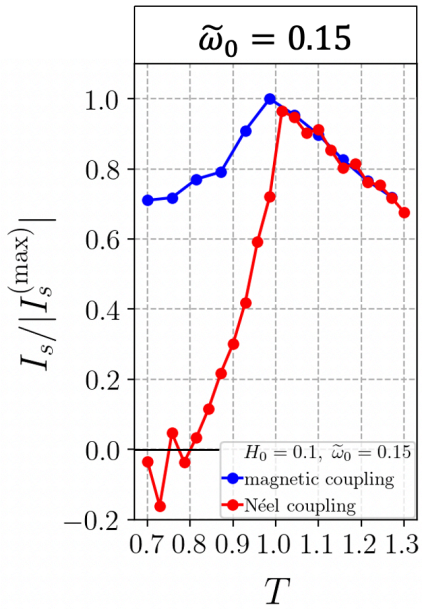

図 4.6 $\widetilde{\omega}_0 = 0.15$ に対する magnetic coupling, 及び, Néel coupling の場合のスピン流の温度依存性. 非磁性金属の温度は $\Delta T = 0.3$ だけ高くなるように固定している. パラメータ: $\widetilde{\omega}_0 = 0.15$, $\widetilde{\Gamma}_m = 3 \times 10^{-3}$, $\widetilde{\Gamma}_n = 6 \times 10^{-3}$, $\widetilde{J}_{\rm sd} = 3 \times 10^{-3}$, $k_{\rm B}T/(\epsilon_0 v_0) = 1.4 \times 10^{-4}$, $N_{\rm step} = 3 \times 10^{11}$ in (a), $N_{\rm step} = 5 \times 10^{11}$ in (b). 平衡状態を特徴付けるパラメータは図 2.4(a) と同じ.

4.3 まとめ

前章 (第 3 章) では, magnetic coupling 又は Néel coupling が支配的な状況を想定し, スピン流の解析計算を行った. その結果, magnetic coupling が支配的な場合には $I_s^{\rm pump} < 0$ となるが, Néel coupling が支配的な場合には $I_s^{\rm pump} > 0$ となる事が示唆された. 一方, スピンフロップ相では負のスピン角運動量を運ぶマグノンが存在するのみであるから, $I_s^{\rm pump} < 0$ と推測された. 従って, 符号反転現象は Néel coupling が支配的な場合に起きると期待できる. しかし, 前章 (第 3 章) の解析計算はスピンフロップ磁場よりも十分に低磁場の状況にのみ適用されるため, 実際にスピンフロップ磁場近傍でこの符号反転が生じるか否かを確かめるためには, 数値シミュレーションを行う必要があった. そこで本章 (第 4 章) では, 実際にスピンフロップ磁場を跨いでスピン流を数値的に評価した.

その結果, magnetic coupling が支配的な場合には符号反転現象は起きず, Néel coupling が支配的な場合には符号反転現象が起きる事を確認する事ができた. 即ち, 界面の微視的な詳細が符号反転現象の有無を決定する事を明らかにした. この結果により, これまでの実験結果に対して一つの統一的説明を与えることに成功した [68]. さらに, 第 3 章のスピン流の解析計算の結果 [式 (3.76)] から推測される通り, 温度を上昇させていくと $|\omega_\alpha||\omega_\beta|\tau_{\rm M}^2(K_0\chi_\parallel)^{-1} = 1$ を境とする温度で符号反転現象そのものが消失する事を明らかにした. この結果は, Li 等による Cr_2O_3 を用いた反強磁性スピンゼーベック効果の実験結果 [図 1.14d] を説明する事ができる.

第 5 章

総括・及び結論

本研究の背景として, 以下の 2 つの実験事実を紹介した.

(i) Li 等による FeF_2 を用いた実験 [5] によると, 十分低磁場下における反強磁性スピンゼーベック効果の温度依存性はネール温度にピーク構造を持つ,

(ii) Li 等による Cr_2O_3 を用いた実験 [6] によると, スピンフロップ転移に伴って反強磁性スピンゼーベック効果の符号が反転するが, 界面状態を変化させると符号反転は消失する.

これらの実験事実を統一的に説明しうる理論は, 現在知られていない. そこで本研究では, 上記の実験事実を統一的に説明する事を目的として, 反強磁性スピンゼーベック効果のギンツブルグ・ランダウ理論を構築した. この理論に基づき, 第 3 章では特に (i) の問題, 第 4 章では (ii) の問題に関して研究を行った. それぞれに対して, 以下の結論と知見が得られた.

(i) に関する研究結果・及び得られた知見：

Li 等は FeF_2 を用いた実験を行い, 十分低磁場下における反強磁性スピンゼーベック効果がネール温度にピーク構造を持つ事を報告した [5]. 一方で, これまでに行われた反強磁性スピンゼーベック効果の理論研究は十分低温でのみ正当化される手法を用いているため, この反強磁性転移近傍の問題を取り扱う事ができない. そこで本論文の第 3 章では, スピンフロップ磁場よりも低磁場の領域に焦点を絞り, 相転移近傍で有効なギンツブルグ・ランダウ模型を用いることで, ネール温度近傍における反強磁性スピンゼーベック効果の解析計算を行った.

その結果, 以下の点について明らかとした. まずはじめに, 反強磁性スピンゼーベック効果は外部印加磁場に比例する事を示した. この結果から, 一軸異方性の反強磁性体においてスピンゼーベック効果を観測するためには, 外部印加磁場によって反強磁性体の時間反転対称性を破る必要がある, ということが言える. そして, この結論の正当性は, これまで行われてきた一軸異方性の反強磁性絶縁体における実験結果 [66, 67, 5, 6, 65] によって裏付けられている. マグノンの観点では, ゼロ磁場では α, β マグノンが縮退してスピン流がゼロとなるため, 有限なスピン流を得るためには外部印加磁場によって縮退を解く必要がある事を明らかにした. 次に, 反強磁性スピンゼーベック効果が反強磁性スピン帯磁率に比例することを示した. 従って, スピン帯磁率がネール温度にピーク構造を持つ事を反映して, 反強磁性スピンゼーベック効果においてもネール温度にピーク構造が現れる事となる. これは, FeF_2 を用いた反強磁性スピンゼーベック効果の実験に対して一つの理論的説明を与えている [5].

一般に, ナノスケールの反強磁性薄膜のネール温度を決定するのは困難とされるが, 上記の結果から『反強磁性スピンゼーベック効果が, これまで測定困難とされてきた反強磁性薄膜のネール温度を測定する新しいプローブになる』という知見が得られた. 更に言えば, この結果から, 『ネール温度近傍でより大きな反強磁性スピンゼーベック効果を観測するためには, スピン帯磁率の大きな反強磁性体を用いれば良い』ということも分かる.

(ii) に関する研究結果・及び得られた知見：

Li 等は Cr_2O_3 を用いた実験を行い, スピンフロップ転移を跨いだ際に反強磁性スピンゼーベック効果の符号が反転する振る舞いを観測したが, 界面状態を変えると反転せず符号が維持される振る舞いも観測した [6]. 一方, Retiz 等による先行理論研究では, 界面状態に依存すること無く常に符号反転現象が起きる事を主張している [89]. しかし, この結果は上記の界面状態に依存した実験結果を説明する事ができず, 符号反転現象が反強磁性体に普遍的に現れる現象であるか否かは未解明となっている. そこで本研究では, Li 等の実験結果を考慮して界面での交換結合に着目し, 副格子に関する対称性の考察から magnetic coupling(反強磁性体の正味の磁化 $\boldsymbol{m}$ と非磁性金属スピン密度 $\boldsymbol{s}$ の交換結合) および Néel coupling(反強磁性体のネール秩序 $\boldsymbol{n}$ と非磁性金属スピン密度 $\boldsymbol{s}$ の交換結合) を提案した. そして, 第 3 章では (i) の問題だけでなく, この微視的な詳細とスピン流の符号の関係に着目した計算結果も纏めた. 第 3 章におけるスピン流の解析計算によると, magnetic coupling が支配的な場合には α マグノンの寄与が支配的となって $I_s^{\mathrm{pump}} < 0$ となり, Néel coupling が支配的な場合には β マグノンの寄与が支配的となって $I_s^{\mathrm{pump}} < 0$ である事が示唆された. 一方, スピンフロップ相では α マグノンと同じ符号のスピンを運ぶ QFMR マグノンが存在するのみであるから, スピンフロップ相では界面結合に依存せず $I_s^{\mathrm{pump}} < 0$ となる事が推測された. これらを符号反転現象の観点でまとめると, magnetic coupling が支配的な場合には反強磁性スピンゼーベック効果の符号反転現象は存在せず, Néel coupling が支配的な場合には符号反転現象が存在し得る, という界面の微視的詳細に依存した結果が期待される事となる. しかし, この結果はスピンフロップ磁場より十分低磁場における解析計算であったため, 実際にスピンフロップ磁場近傍の符号反転現象が起きるか否かを確認するためには別の手法が必要であった. そこで第 4 章では, スピンフロップ転移を跨いだ反強磁性スピンゼーベック効果の数値シミュレーションを行い, この予測について実証を試みた.

その結果, Néel coupling が支配的な場合には符号反転現象が存在するが, magnetic coupling が支配的な場合には符号反転現象は存在しない, という界面の微視的詳細に依存した結果を確認する事ができた. この結果から, 『符号反転現象の有無は界面の微視的詳細に依存するため, 反強磁性体に普遍的に現れる現象ではない』という知見を得た. この知見により, これまで報告されている符号反転現象に関する実験結果に対して一つの統一的説明を与える事に成功した. 従来は, この界面状態はスピン伝導の物理に影響しないとされてきたが, 本研究の成果はこの認識を覆し, 世の中にスピン伝導における界面の重要性を再認識させている. さらに, Néel coupling は交換バイアスの傾向に関連するため, 『符号反転現象の有無は交換バイアスの傾向で制御可能である』という知見を得た. 具体的に Néel coupling を実現するためには, 界面で磁化補償されていない磁気モーメントが支配的に出現するようにサンプル作製を行えば良いと考えられるため, この知見は符号反転現象を観測するためのサンプル作製に関して理論的指針を与えている. 歴史的には, 交換バイアスは強磁性体の磁化を固定するために活用されてきたが, 本研究はこの交換バイアスと反強磁性スピンゼーベック効果の関連を初めて指摘し, 界面状態をスピン流で探索できる可能性を見出している.

結論

以上のように, 本研究では, ネール温度およびスピンフロップ磁場, という 2 つの相転移点近傍における反強磁性スピンゼーベック効果の理論を構築した. 具体的には, 相転移現象の記述に優れたギンツブルグ・ランダウ模型に基づき, 反強磁性スピンゼーベック効果の温度・磁場依存性を評価した. そして, 反強磁性スピンゼーベック効果が反強磁性スピン帯磁率に比例する事, および, スピンフロップ転移を伴う反強磁性スピンゼーベック効果の符号反転現象が Néel coupling を実現するような特殊な界面でのみ発生する事, などを明らかにした. これらの成果により, これまで低温・低磁場領域に限定されていた反強磁性スピンゼーベック効果の理解を, 相転移近傍まで押し広げる事が出来た. 以上の本研究の成果は, 現在世界中で精力的に研究されている反強磁性スピントロニクスの進展に大きく貢献するものである.

付録 A

スピンフロップ転移

反強磁性体の容易軸方向に外部磁場を印加すると, ある臨界磁場を境にスピンがキャントした状態が安定状態となる. この相転移はスピンフロップ転移と呼ばれており, 対称性の低下を伴わない 1 次相転移である. 以下では, 最初にスピンフロップ転移について説明する [95]. その後, スピンフロップ転移におけるヒステリシスについて述べる.

A.1 スピンフロップ転移とは

一軸異方性を持つ反強磁性体のハミルトニアンは, 交換エネルギー, ゼーマン項, 一軸異方性を記述する項から構成される:

$$\mathcal{H} = J\sum_{\mathrm{A,B}} \boldsymbol{S}_{\mathrm{A}} \cdot \boldsymbol{S}_{\mathrm{B}} - g\mu_{\mathrm{B}}\boldsymbol{H}_0 \cdot \left(\sum_{\mathrm{A}} \boldsymbol{S}_{\mathrm{A}} + \sum_{\mathrm{B}} \boldsymbol{S}_{\mathrm{B}}\right) - K\left(\sum_{\mathrm{A}} (\boldsymbol{S}_{\mathrm{A}} \cdot \hat{\boldsymbol{z}})^2 + \sum_{\mathrm{B}} (\boldsymbol{S}_{\mathrm{B}} \cdot \hat{\boldsymbol{z}})^2\right)$$

A, B は副格子のスピン位置であり, $\sum_{\mathrm{A,B}}$ は最近接サイトの和, g は g 因子, μ_{B} はボーア磁子, $\boldsymbol{H}_0 = H_0\hat{\boldsymbol{z}}$ は容易軸方向 (z) に印加した外部磁場, K は一軸異方性定数を表す. ハミルトニアンより, スピンが互いに補償している反強磁性相のエネルギー E_{AF} は,

$$E_{\mathrm{AF}} = -zJS^2 - 2KS^2 \tag{A.1}$$

である. ここで, $S = |\boldsymbol{S}_{\mathrm{A}}| = |\boldsymbol{S}_{\mathrm{B}}|$ はスピンの長さ, z は最近接サイトの総数である. 一方, スピンがキャントしたスピンフロップ相のエネルギー E_{SF} は,

$$E_{\mathrm{SF}} = zJS^2\cos 2\theta - 2g\mu_{\mathrm{B}}H_0S\cos\theta - 2KS^2\cos^2\theta$$

である. ここで, θ はスピンと容易軸方向の為す角度である. E_{SF} を最小化する θ を求めるために, θ に関する微分を実行する:

$$\frac{\partial}{\partial\theta}E_{\mathrm{SF}} = \sin\theta(-4zJS^2\cos\theta + 2g\mu_{\mathrm{B}}H_0S + 4KS^2\cos\theta)$$

$\partial_\theta E_{\mathrm{SF}} = 0$ より, 求めたい θ は

$$\cos\theta = \frac{g\mu_{\mathrm{B}}H_0}{2zJS - 2KS}$$

逆にこれを E_{SF} に代入すると

$$E_{\mathrm{SF}} = -zJS^2 - \frac{g^2\mu_{\mathrm{B}}^2H_0^2}{2zJ - 2K} \tag{A.2}$$

を得る．反強磁性相のエネルギーとスピンフロップ相のエネルギーが等しい時にスピンフロップ転移が起きるから, $E_{\mathrm{AF}} = E_{\mathrm{SF}}$ と置くことでスピンフロップ臨界磁場が求まる:

$$g\mu_{\mathrm{B}} H_{\mathrm{SF}}^{(0)} = 2S\sqrt{K(zJ - K)} \tag{A.3}$$

$H_0 < H_{\mathrm{SF}}^{(0)}$ では反強磁性状態の方がエネルギーが低いため, スピンが補償した状態をが安定となる．一方, 磁場の強さを増加させていき $H_0 > H_{\mathrm{SF}}^{(0)}$ に達すると, ゼーマンエネルギーによるエネルギー利得が異方性エネルギーによる利得を上回り, スピンが角度 θ でキャントした状態が安定となる (スピンフロップ転移)．これがスピンフロップ転移の簡潔な説明である．

A.2 スピンフロップ転移におけるヒステリシス現象について

スピンフロップ転移におけるヒステリシス現象を説明する前に, より身近な液体・気体相転移におけるヒステリシスについて述べる [95]. 温度を固定した状態で気体への圧力を増加させると, ある熱力学的な臨界点で液体へと相転移するが, 準静的に圧力を増加させた場合, より高圧の点まで気体の状態が保たれる. 一方, 液体の状態で圧力を準静的に下げた場合, ある熱力学的な臨界点よりも低い圧力まで液体の状態が保たれる. これらは温度を変化させた時の振る舞いではないが, 凝固点より低温まで水が液体として存在する"過冷却", 沸点を越えても気化せず液体の状態が保たれる"過熱"といった状態に対応する.

反強磁性体におけるスピンフロップ転移も対称性の低下を伴わない一次相転移であるから, これと類似した状態が観測されるはずである. この際, 磁性体の相転移における制御パラメータは圧力の代わりに外部磁場である. 温度を固定し, 反強磁性相の状態から磁場を準静的に増加させると, 熱力学的臨界点よりも大きな磁場まで反強磁性状態が保たれる. 一方, スピンフロップ相の状態から準静的に磁場を下げると, 熱力学的臨界点よりも低い磁場までスピンフロップ状態が保たれる. 従って, 詳細に実験を行えば磁化測定においてヒステリシス現象が観測される. その際, どれくらいの精度で実験を行えば良いだろうか. 即ち, これら準安定状態におけるギャップについて定量的な議論を行いたい.

そのために, 臨界磁場 $H_{\mathrm{AF}\to\mathrm{SF}}$(反強磁性状態からスピンフロップ状態への転移磁場) 及び $H_{\mathrm{SF}\to\mathrm{AF}}$(スピンフロップ状態から反強磁性状態への転移磁場) を求める必要がある. $H_{\mathrm{AF}\to\mathrm{SF}}$ は, F. B Anderson と H. B. Callen が温度グリーン関数を用いて導出しており [95], $H_{\mathrm{SF}\to\mathrm{AF}}$ については Yung-Li Wang と H. B. Callen がスピン波の解析から導出している [96]:

$$
\begin{aligned}
g\mu_{\mathrm{B}}H_{\mathrm{AF}\to\mathrm{SF}} &= 2S\left[K\xi^2(zJ+K\xi^2)\right]^{1/2} \\
g\mu_{\mathrm{B}}H_{\mathrm{SF}\to\mathrm{AF}} &= 2S(zJ-K\xi^2)\left[\frac{K\xi(1+\xi)}{2zJ+K\xi(1+\xi)}\right]^{1/2}
\end{aligned}
$$

ここで, S, J, K は前ページと同様にスピンの大きさ, 交換結合の大きさ, 一軸異方性定数であり, $\xi = (1-1/(2S))^{1/2}$ はスピンの大きさを反映した量子力学的な補正である. 熱力学的な真のスピンフロップ転移磁場 $g\mu_{\mathrm{B}}H_{\mathrm{SF}}^{(0)}$ で規格化した時, これらの差は zJ/K に関する一次までで

$$
\frac{H_{\mathrm{AF}\to\mathrm{SF}}}{H_{\mathrm{SF}}^{(0)}} - \frac{H_{\mathrm{SF}\to\mathrm{AF}}}{H_{\mathrm{SF}}^{(0)}} = \xi - \sqrt{\frac{1}{2}\xi(1+\xi)} + \left[\frac{1}{2}\xi(1+\xi^2) + \frac{1}{4}\sqrt{\frac{1}{2}\xi(1+\xi)}(5\xi^2+\xi-2)\right]\frac{K}{zJ} \tag{A.4}
$$

スピンが大きい場合, $\xi \sim 1$ であることから

$$
\frac{H_{\mathrm{AF}\to\mathrm{SF}}}{H_{\mathrm{SF}}^{(0)}} - \frac{H_{\mathrm{SF}\to\mathrm{AF}}}{H_{\mathrm{SF}}^{(0)}} \sim \frac{2K}{zJ} \tag{A.5}
$$

例えば $\mathrm{MnF_2}$ では $K/zJ \sim 0.01$[67] であるから, 区間の幅は 1% のオーダーである. さらに準安定状態が相転移近傍の核生成の有無や熱揺らぎにも影響されることを考慮すると, ヒステリシスを観測することは非常に難しいと考えられる.

付録 B

交換バイアス

交換バイアスは, 1956 年に Meiklejohn と Bean が Co/CoO(強磁性体/反強磁性体) の接合系で発見した現象である [13]. 彼らは, 飽和磁場 (10KOe) の下で CoO(ネール温度は 293K) と Co の接合系を 300K から 77K まで冷却した (磁場中冷却). そしてこの系で磁化のヒステリシスを観測すると, 磁場なし冷却に比べてヒステリシスループの中心が 1600Oe シフトすることを発見した. このシフトの原因は, 強磁性体と反強磁性体の間で働く交換結合であると考えられている. 以下では, 交換バイアスが発現する際のスピン状態を辿ってみる.

(i) 強磁性体のキュリー温度 T_{c} は, 反強磁性体のネール温度 T_{N} よりも高いとする. 今, 温度を $T_{\mathrm{N}} < T < T_{\mathrm{c}}$ となるように設定する. 即ち, 強磁性体は秩序状態であるが, 反強磁性体は常磁性状態とする. この状態で飽和磁場 H を印加する.

(ii) 飽和磁場を印加した状態でネール温度以下まで温度を下げると, 強磁性体と反強磁性体の界面交換結合でスピンが固着する.

(iii) 磁場を反対方向に大きくしていくと, 強磁性体の自発磁化が少しずつ回転する. この時, 界面の交換結合によってスピンは固着しているため, 強磁性体の自発磁化は未だ初期状態と同じ方向である. なぜなら, 自発磁化は余分な交換磁場を感じてネルギーを下げているため, 反転させるにはより大きなゼーマンエネルギーの利得が必要なためである.

(iv) さらに磁場を強めていくと, 交換磁場のエネルギー利得よりもゼーマンエネルギーの利得が上回り, 自発磁化の方向は反転する. この時, 反強磁性体自身の磁気異方性が大きければ反強磁性スピンの方向は変わらない.

(v) 再び正方向に磁場を印加すると, 負方向の磁化状態で少しずつ自発磁化が回転する. 完全に磁化を反転させるためには, 再び交換磁場によるエネルギー利得を上回るように強い正方向の磁場を印加する必要がある.

交換バイアスの利点は, 界面交換結合を用いて強磁性体の磁化方向を固定できるようになったことである. これを利用して, IBM の Dieny 等は強磁性体自由層/非磁性金属/反強磁性体/強磁性体固定層というサンドイッチ構造 (スピンバルブ構造と呼ばれる) において自由層の磁化のみを弱い

磁場で変化させ, 10% 程度の磁気抵抗変化を観測することに成功した. その後, 交換バイアスを利用した磁気読み取りヘッドがハードディスクドライブに実装されるようになった.

付録 C

歳差運動の振幅とマグノン極性

本論で展開した時間依存ギンツブルグ・ランダウ方程式は, ネールベクトル $\boldsymbol{n}$ と磁化ベクトル $\boldsymbol{m}$ を用いてスピンの運動を記述している. ここでは, この変数をより多くの方にとって馴染みのある two 副格子スピンに分解し, その運動の様子と極性について述べたい.

1952 年, Keffer と Kittel は two 副格子の古典スピンの運動方程式を解くことで, 反強磁性共鳴における歳差運動の振幅について議論した [98]. 一方, 本研究で用いた時間依存ギンツブルグ・ランダウ方程式ではその議論をしている文献が無く, 彼らの結果と対応しているか不明確である. そこで, ここでは実際にネールベクトル $\boldsymbol{n}$ と磁化ベクトル $\boldsymbol{m}$ を副格子スピンの形式に焼き直し, Keffer と Kittel の結果と対応していることを示したい.

まず, ネールベクトル $\boldsymbol{n}$ と磁化ベクトル $\boldsymbol{m}$ の運動方程式は式 (2.44) である. 再度掲載すれば, 次のようになっている:

$$\left(\omega - \hat{\mathcal{A}}_{\mathrm{AF}}\right)\begin{bmatrix}\delta m^{-}(\omega)\\ \delta n^{-}(\omega)\end{bmatrix} = \begin{bmatrix}0\\0\end{bmatrix} \tag{C.1}$$

ここで, 見やすさのために式 (2.44) における行列 $\hat{\mathcal{A}}_{\mathrm{AF}}$ を次のように定義している:

$$\hat{\mathcal{A}}_{\mathrm{AF}} = \begin{bmatrix}a & b\\ c & d\end{bmatrix} \tag{C.2}$$

$\boldsymbol{n} = \boldsymbol{S}_{\mathrm{A}} - \boldsymbol{S}_{\mathrm{B}},\ \boldsymbol{m} = \boldsymbol{S}_{\mathrm{A}} + \boldsymbol{S}_{\mathrm{B}}$ より, 上記の運動方程式は two 副格子のスピンで書き直せる:

$$\begin{bmatrix}\omega - a & -b\\ -c & \omega - d\end{bmatrix}\begin{bmatrix}\delta S_{\mathrm{A}}^{-}(\omega) + \delta S_{\mathrm{B}}^{-}(\omega)\\ \delta S_{\mathrm{A}}^{-}(\omega) - \delta S_{\mathrm{B}}^{-}(\omega)\end{bmatrix} = \begin{bmatrix}0\\0\end{bmatrix} \tag{C.3}$$

この式の第一要素は次式の通りである:

$$\delta S_{\mathrm{A},x}(\omega) - i\delta S_{\mathrm{A},y}(\omega) = -\frac{\omega - a + b}{\omega - a - b}(\delta S_{\mathrm{B},x}(\omega) - i\delta S_{\mathrm{B},y}(\omega)) \tag{C.4}$$

一方, プラス方向の回転座標表示はこれの複素共役である:

$$\delta S_{\mathrm{A},x}(\omega) + i\delta S_{\mathrm{A},y}(\omega) = -\frac{\omega - a + b}{\omega - a - b}(\delta S_{\mathrm{B},x}(\omega) + i\delta S_{\mathrm{B},y}(\omega)) \tag{C.5}$$

これらを辺々足せば, 直交座標系における歳差運動の振幅比が求まる (対称性から y 成分と x 成分は等価なので, x 成分のみ記す事にする):

$$\frac{\delta S_{\mathrm{A},x}(t)}{\delta S_{\mathrm{B},x}(t)} = -\frac{\omega - a + b}{\omega - a - b} \tag{C.6}$$

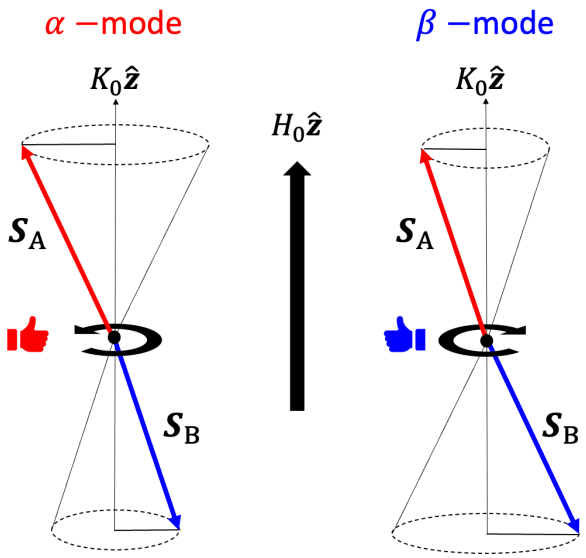

図 C.1　反強磁性スピンの歳差運動の概念図. α モードではスピンは $\exp(-i|\omega_\alpha|t)$ で反時計回りに回転するが, β モードでは $\exp(+i|\omega_\beta|t)$ で時計回りに回転する.

ただし, $\delta O(t) = \delta O(\omega)\exp(-i\omega t)$ を用いた. 今, $n_{\mathrm{eq}} > 0$ とすれば $b > 0$ であるから, 振幅比に関して次の関係を得る:

$$|\delta S_{\mathrm{A}}(t)/\delta S_{\mathrm{B}}(t)| = \begin{cases} > 1 & \text{for } \omega = \omega_\alpha \\ < 1 & \text{for } \omega = \omega_\beta \end{cases} \tag{C.7}$$

即ち, α モードでは副格子 A の振幅のほうが B のそれより大きく, β モードでは副格子 B の振幅のほうが A のそれより大きい. さらに, 式 (C.6) より振動の位相が逆であることから, 歳差運動の様子は図 C.1 のように描かれる. 次に, α モードと β モードの極性について述べる. α モードでは, 副格子 A のスピンの方が B の振幅よりも大きいため, 正味の磁気量子数の変化は副格子 A に由来する. このとき, 副格子 A のスピンの運動方向が強磁性体と同じである事を考慮すれば, α モードは強磁性体と同符号のスピンを持つマグノンを生成することになる. 一方, β モードでは, 副格子 B のスピンの方が A の振幅よりも大きいため, 正味の磁気量子数の変化は副格子 B に由来する. 即ち, 強磁性体と逆符号のスピンを持つマグノンを生成することになる. この事をより理解するために, 以下では Holstein-Primakoff の方法で再考してみよう [99].

副格子 A(B) のスピンが上 (下) 向きとする. この時, 各副格子のスピン演算子は Holstein-Primakoff 演算子を用いて次のように表される:

$$S_l^z = S - a_l^* a_l \qquad S_l^+ = \sqrt{2S} f_l(S) a_l \qquad S_l^- = \sqrt{2S} a_l^* f_l(S) \tag{C.8}$$

$$S_m^z = S - b_m^* b_m \qquad S_m^+ = \sqrt{2S} b_m^* f_m(S) \qquad S_m^- = \sqrt{2S} f_m(S) b_m \tag{C.9}$$

ここで, $f_l(S) = \sqrt{1 - a_l^* a_l/(2S)}$, $f_l(S) = \sqrt{1 - b_m^* b_m/(2S)}$ であり, a_l, a_l^* はそれぞれ副格子 A における spin diviation の消滅, 生成演算子である. 同様に, b_m, b_m^* はそれぞれ副格子 B における spin diviation の消滅, 生成演算子である. ただし, a_l, b_m は互いに無関係なボゾン演算子であり, 交換関係 $[a_l, a_{l'}^*] = \delta_{l,l'}$, $[b_m, b_{m'}^*] = \delta_{m,m'}$, $[a_l, b_m] = [a_l^*, b_m] = [a_l, b_m^*] = [a_l^*, b_m^*] = 0$ を持つ. 反強磁性体のハミルトニアンを次式で与える:

$$\mathscr{H} = 2|J| \sum_{\langle lm \rangle} \boldsymbol{S_l} \cdot \boldsymbol{S_m} - g\mu_{\mathrm{B}} H^z \left(\sum_l S_l^z + \sum_m S_m^z \right) - D^z \left\{ \sum_l (S_l^z)^2 + \sum_m (S_m^z)^2 \right\} \tag{C.10}$$

ここで, D^z は一軸異方性定数であり, 外部磁場は容易軸方向 (z 方向) に印加されている. このハミルトニアンに先程のスピン演算子を代入する. この際, $f(S) \sim 1$ とし, 演算子の 4 次以上の項を無視すると次式を得る:

$$\begin{aligned}\mathscr{H}_0 &= -z|J|NS^2 - D^z NS^2 + 2|J|S \sum_{\langle lm \rangle} (a_l^* a_l + b_m^* b_m + a_l b_m + a_l^* b_m^*) \\ &\quad + g\mu_{\mathrm{B}} H^z \left(\sum_l a_l^* a_l - \sum_m b_m^* b_m \right) + D^z (2S-1) \left(\sum_l a_l^* a_l + \sum_m b_m^* b_m \right) \end{aligned} \tag{C.11}$$

ここで Fourier 変換 $a_l = \sqrt{2/N} \sum_k \exp(-i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}) a_{\boldsymbol{k}},\ b_m = \sqrt{2/N} \sum_k \exp(-i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}) b_{\boldsymbol{k}}$ を行うと,

$$\begin{aligned}\mathscr{H}_0 &= -z|J|NS^2 - D^z NS^2 \\ &\quad + 2z|J|S \sum_k \left\{ (1 + h^z + d) a_k^* a_k + (1 - h^z + d) b_k^* b_k + \gamma_k (a_k b_k + a_k^* b_k \right\} \end{aligned} \tag{C.12}$$

ただし, $\gamma_k = \frac{1}{z} \sum_k \exp(i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{\rho})$ であり, $\boldsymbol{\rho}$ は最近接格子点へのベクトルである. また, $h^z = g\mu_{\mathrm{B}} H^z / (2z|J|S),\ d = D^z(2S-1)/(2z|J|S)$. 上記のハミルトニアンは非対角要素を持っているため, 次のボゴリュボフ変換を試みる:

$$\begin{aligned} a_k &= \alpha_k \cosh\theta_k - \beta_k^* \sinh\theta_k, \quad a_k^* = \alpha_k^* \cosh\theta_k - \beta_k \sinh\theta_k \\ b_k &= -\alpha_k^* \sinh\theta_k + \beta_k^* \cosh\theta_k, \quad b_k^* = -\alpha_k \sinh\theta_k + \beta_k^* \cosh\theta_k \end{aligned} \tag{C.13}$$

新たに定義された α_k, β_k もまた, 互いに無関係なボゾン演算子である. この変換をハミルトニアンに代入すると $\alpha_k\beta_k + \alpha_k^*\beta_k^*$ という非対角要素が現れるが, この係数をゼロにするように θ_k を選ぶことができる. その θ_k は次式を満たす:

$$\tanh 2\theta_k = \frac{\gamma_k}{1+d} \tag{C.14}$$

この時, 対角化されたハミルトニアンは次のようになる:

$$\begin{aligned}\mathscr{H}_0 &= -z|J|NS^2 - D^z NS^2 + 2z|J|S \sum_k \left\{ \sqrt{(1+d)^2 - \gamma_k^2} - (1+d) \right\} \\ &\quad + 2z|J|S \sum_k \left[\sqrt{(1+d)^2 - \gamma_k^2} + h^z \right] \alpha_k^* \alpha_k + 2z|J|S \sum_k \left[\sqrt{(1+d)^2 - \gamma_k^2} - h^z \right] \beta_k^* \beta_k \end{aligned} \tag{C.15}$$

即ち, $\alpha,\ \beta$ マグノンは $\epsilon^{\pm} = 2z|J|S\sqrt{(1+d)^2 - \gamma_k^2} \pm g\mu_{\mathrm{B}} H^z$ のエネルギーを持つと分かる.

ボゴリュボフ変換によって, スピン演算子は 2 つの準粒子 α マグノンと β マグノンで記述できる事が判明した. この逆変換を考えると, 図 C.1 との対応が理解しやすくなる. 式 (C.13) の逆変換は次式で与えられる:

$$\begin{aligned} \alpha_k &= a_k \cosh\theta_k + b_k^* \sinh\theta_k, \quad \alpha_k^* = a_k^* \cosh\theta_k + b_k \sinh\theta_k \\ \beta_k &= a_k^* \sinh\theta_k + b_k \cosh\theta_k, \quad \beta_k^* = a_k \sinh\theta_k + b_k^* \cosh\theta_k \end{aligned} \tag{C.16}$$

即ち, α, β モードのマグノンの生成は, 一方の副格子の spin diviation を増やすと同時に, もう片方の spin diviation を減らす演算の線形結合である. この事情は, 超伝導における準粒子が, フェルミ面近傍において電子とホールが混ざった状態に類似している. さて, 特に $\cosh\theta_k > \sinh\theta_k$ なので, α マグノンを生成する際には副格子 A の spin diviatoin の方が B のそれより大きい. 一方, β マグノンを生成する際には副格子 B の spin diviatoin の方が A のそれより大きい. これは, 古典スピンの運動方程式から得た図 C.1 の描像と整合している.

付録 D

低温における反強磁性スピンゼーベック効果

本研究のギンツブルグ・ランダウモデルを用いた理論研究によると, 反強磁性スピンゼーベック効果はネール温度においてピーク構造を持つ [69, 68]. 実は, ネール温度より低温においてもスピンゼーベック効果はピーク構造持つことが実験報告されているが [5, 67, 6], 本研究のモデルはネール温度近傍において正しいため, この低温領域に適用する事ができない. ここでは, 熱マグノン数とバンドギャップ Δ[図 D.1] を用いて低温のピーク構造の説明を試みる.

まず, $k_{\mathrm{B}}T \gg \Delta$ の時, 熱マグノンは縮退しているため各モードからのマグノンの寄与が相殺し, スピン流の信号は非常に弱くなる. より温度を下降していくと β モードのマグノンが支配的になるため信号は増大するが, やがて $k_{\mathrm{B}}T \sim \Delta$ の温度に達するとその増大は止まる. さらに温度を下降して $k_{\mathrm{B}}T \ll \Delta$ に達すると, もはや熱マグノンが励起されなくなり信号はゼロに漸近する. これが, マグノン数とバンドギャップによる説明である. ただし, Wu 等の MnF_2 を用いた実験や Li 等の FeF_2 を用いた実験では容易軸に対して垂直な磁場下でもピーク構造が出現している事に注意が必要である. なぜなら, 垂直な磁場下ではもはや負のスピン角運動量を運ぶ QFMR モードのみ寄与するため, 上述の『2 つの極性マグノンの競合によるピークの説明』を適用できないからである.

一方で, フォノンの熱伝導に起因してピーク構造が現れる事も理論的に示されている [4]. 具体的には, 次のように考えることができる. まず, フォノンは低温において散乱が抑制されるため熱伝導率にピーク構造が出現する. この際, マグノン・フォノン相互作用によってフォノンがマグノンをドラッグするため, バルクのマグノンの寄与が増大する. しかし, さらに温度を下降すればフォノンの励起数が減少し, このドラッグ効果は抑制されてピーク構造が出現する. このドラッグ効果は実際に強磁性体において観測されているため [100, 101], 反強磁性スピンゼーベック効果における低温のピーク構造に寄与する可能性がある. しかし, Wu 等の MnF_2 を用いた実験や Li 等の FeF_2 を用いた実験では, 熱伝導度のピーク位置はスピンゼーベック効果のピーク位置から外れており [102, 5], フォノンの影響だけでは説明ができない.

以上の通り, 反強磁性スピンゼーベック効果に対する理解は十分になされていない. 今後も研究が必要である.

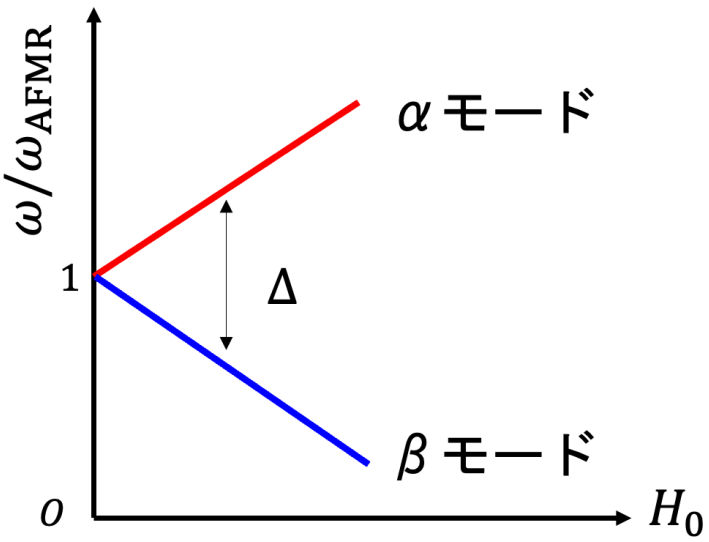

図 D.1　反強磁性体におけるマグノンバンドの模式図.

付録 E

反強磁性体におけるギンツブルグ・ランダウ自由エネルギーの導出

本研究で用いた反強磁性体のギンツブルグ・ランダウ自由エネルギー [式 (2.4)] の一部をイジングモデルから導出する．反強磁性体の容易軸方向に外部磁場が印加されている状況を考えると，ハミルトニアンは次の形となる:

$$\mathscr{H} = J\sum_{\langle i,j\rangle} s_i^{\mathrm{A}} s_j^{\mathrm{B}} - h\left(\sum_i^{N/2} s_i^{\mathrm{A}} + \sum_j^{N/2} s_j^{\mathrm{B}}\right) \tag{E.1}$$

ただし，$s = \pm 1$ であり，交換相互作用 $J > 0$，$h := g\mu_{\mathrm{B}} H_0$ と置いた．Bragg-Williams 近似 $s_i^{\mathrm{A}} \to \langle s_i^{\mathrm{A}}\rangle := m_{\mathrm{A}}$，$s_i^{\mathrm{B}} \to \langle s_j^{\mathrm{B}}\rangle := m_{\mathrm{B}}$ を施すと，系の平均エネルギーは

$$E = \langle \mathscr{H}\rangle \approx \frac{1}{2}NzJm_{\mathrm{A}}m_{\mathrm{B}} - \frac{1}{2}N(m_{\mathrm{A}} + m_{\mathrm{B}})h \tag{E.2}$$

ここで，N は全サイト数，z は最近接格子点数である．次にエントロピーを求める．A-副格子と B-副格子の格子点数は均等に $N/2$ とする．上向き，下向きのサイト数を $N_{\mathrm{A},\uparrow}, N_{\mathrm{A},\downarrow}, N_{\mathrm{B},\uparrow}, N_{\mathrm{B},\downarrow}$ のように置くと，格子点数は次の関係を持つ:

$$N_{\mathrm{A},\uparrow} + N_{\mathrm{A},\downarrow} = \frac{N}{2}, \quad N_{\mathrm{B},\uparrow} + N_{\mathrm{B},\downarrow} = \frac{N}{2} \tag{E.3}$$

状態数は $W_{\mathrm{A}} = N_{\mathrm{A}}!/(N_{\mathrm{A},\uparrow}!(N_{\mathrm{A}} - N_{\mathrm{A},\uparrow}), W_{\mathrm{B}} = N_{\mathrm{B}}!/(N_{\mathrm{B},\uparrow}!(N_{\mathrm{B}} - N_{\mathrm{B},\uparrow})$ であるから，ボルツマンの関係式 $S = k_{\mathrm{B}}\log W$ よりエントロピーは次式で与えられる:

$$\begin{aligned} S_{\mathrm{A}} &= k_{\mathrm{B}}\log W_{\mathrm{A}} \\ &= \frac{1}{2}N_{\mathrm{A}}k_{\mathrm{B}}\left[2\log 2 - (1+m_{\mathrm{A}})\log(1+m_{\mathrm{A}}) - (1-m_{\mathrm{A}})\log(1-m_{\mathrm{A}})\right], \end{aligned} \tag{E.4}$$

$$\begin{aligned} S_{\mathrm{B}} &= k_{\mathrm{B}}\log W_{\mathrm{B}} \\ &= \frac{1}{2}N_{\mathrm{B}}k_{\mathrm{B}}\left[2\log 2 - (1+m_{\mathrm{B}})\log(1+m_{\mathrm{B}}) - (1-m_{\mathrm{B}})\log(1-m_{\mathrm{B}})\right] \end{aligned} \tag{E.5}$$

ここで，$m_{\mathrm{A}} = (N_{\mathrm{A},\uparrow} - N_{\mathrm{A},\downarrow})/N_{\mathrm{A}}$，$m_{\mathrm{B}} = (N_{\mathrm{B},\uparrow} - N_{\mathrm{B},\downarrow})/N_{\mathrm{B}}$ とした．従って，自由エネルギーは

$$\begin{aligned} F &= E - T(S_{\mathrm{A}} + S_{\mathrm{B}}) \\ &= \frac{1}{2}NzJm_{\mathrm{A}}m_{\mathrm{B}} - \frac{1}{2}N(m_{\mathrm{A}} + m_{\mathrm{B}})h \\ &\quad - \frac{1}{2}N_{\mathrm{A}}k_{\mathrm{B}}\left[2\log 2 - (1+m_{\mathrm{A}})\log(1+m_{\mathrm{A}}) - (1-m_{\mathrm{A}})\log(1-m_{\mathrm{A}})\right] \end{aligned}$$

$$
-\frac{1}{2}N_{\mathrm{B}}k_{\mathrm{B}}\left[2\log 2-(1+m_{\mathrm{B}})\log(1+m_{\mathrm{B}})-(1-m_{\mathrm{B}})\log(1-m_{\mathrm{B}})\right] \tag{E.6}
$$

ここで, ネール秩序 $n := (m_{\mathrm{A}} - m_{\mathrm{B}})/2$, 及び, 正味の磁化 $m := (m_{\mathrm{A}} + m_{\mathrm{B}})/2$ を導入すると, 自由エネルギーは次式の形に書き直せる:

$$
\begin{aligned}
F = {} & \frac{1}{2}NzJ(m^2-n^2) - Nmh - Nk_{\mathrm{B}}T\log 2 \\
& + \frac{1}{4}Nk_{\mathrm{B}}T\big[(1+m+n)\log(1+m+n) + (1-m-n)\log(1-m-n) \\
& + (1+m-n)\log(1+m-n) + (1-m+n)\log(1-m+n)\big]
\end{aligned} \tag{E.7}
$$

これをネール秩序 n について展開する (途中で $T_{\mathrm{N}}^{(0)} := zJ/k_{\mathrm{B}}$ を定義している):

$$
\begin{aligned}
F \approx {} & \frac{1}{2}NzJ(m^2-n^2) - Nmh - Nk_{\mathrm{B}}T\log 2 \\
& + \frac{1}{4}Nk_{\mathrm{B}}T\Bigg[2\left\{(1+m)\log(1+m) + (1+m)\log(1+m)\right\} \\
& - \frac{2}{m^2-1}n^2 - \frac{3m^2+1}{3(m^2-1)^3}n^4 + O(n^6)\Bigg] \\
\approx {} & \frac{1}{2}NzJ(m^2-n^2) - Nmh - Nk_{\mathrm{B}}T\log 2 + \frac{1}{4}Nk_{\mathrm{B}}T\big[2m^2 + (1+m^2)n^2 + \frac{1}{3}n^4\big] \\
= {} & -Nk_{\mathrm{B}}T\log 2 + \frac{1}{2}Nk_{\mathrm{B}}\left(T - T_{\mathrm{N}}^{(0)}\right)n^2 + \frac{1}{12}Nk_{\mathrm{B}}Tn^4 \\
& + \frac{1}{2}Nk_{\mathrm{B}}\left(T + T_{\mathrm{N}}^{(0)}\right)m^2 + \frac{1}{2}Nk_{\mathrm{B}}Tm^2n^2 - Nmh \\
\approx {} & -Nk_{\mathrm{B}}T\log 2 + \frac{1}{2}Nk_{\mathrm{B}}T_{\mathrm{N}}^{(0)}u_2n^2 + \frac{1}{12}Nk_{\mathrm{B}}T_{\mathrm{N}}^{(0)}n^4 \\
& + \frac{1}{2}Nk_{\mathrm{B}}(T + T_{\mathrm{N}}^{(0)})m^2 + \frac{1}{2}Nk_{\mathrm{B}}T_{\mathrm{N}}^{(0)}m^2n^2
\end{aligned} \tag{E.8}
$$

ただし, 最後に $u_2 := (T - T_{\mathrm{N}}^{(0)})/T_{\mathrm{N}}^{(0)}$, 及び, 適宜 $T \approx T_{\mathrm{N}}^{(0)}$ とした.

上記の自由エネルギーは式 (2.4) の一部である. 他の項の導出も試みるならば, 原理的には異方性も考慮した 3 次元イジングモデルから出発すれば可能と考えられる. その際の相転移近傍の解析はより煩雑になる事が想定されるが, 本研究のようにギンツブルグ・ランダウ模型から出発すれば簡潔に相転移近傍の系の振る舞いを調査できる.

付録 F

容易軸に対して垂直な磁場下での反強磁性スピンゼーベック効果

本論では, 反強磁性体の容易軸 $K_0\hat{\boldsymbol{z}}$ に対して平行な磁場下 ($K_0\hat{\boldsymbol{z}} \parallel H_0\hat{\boldsymbol{x}}$) の状況のスピンゼーベック効果を計算した. ここでは, 容易軸に対して垂直な磁場下 ($K_0\hat{\boldsymbol{z}} \perp H_0\hat{\boldsymbol{x}}$) での反強磁性スピンゼーベック効果を計算する [図 F.1]. この状況では, 単に反強磁性体の磁気モーメントが傾くだけであるからそのスピン状態はスピンフロップ相のそれと類似している. 従って, スピンフロップ相と同様に解析計算は非常に煩雑となる. 一方, 既に本論で展開したように数値シミュレーションの手法は既に確立しているため, 実は磁場方向を変えるだけですぐにこの計算に取り掛かる事ができる. その準備として, まずは垂直磁場下での反強磁性体の相図とマグノンバンドを計算し, モデルの信頼性を確保しておきたい.

F.1　容易軸に対して垂直な磁場下の反強磁性相図

容易軸の方向に対して垂直な磁場下では, 単に磁気モーメントが傾き, やがて常磁性状態に相転移するだけである. この臨界磁場をわざわざ計算し直す必要はない. なぜなら, 今は $\boldsymbol{m}_{\mathrm{eq}} \cdot \boldsymbol{n}_{\mathrm{eq}} = 0$ という状況を考えるので, 式 (2.33) の自由エネルギーにおいて $D = 0$ とすれば良いからである. 式 (2.34) においてこれを適用すれば, 反強磁性相から常磁性相への臨界磁場が求まる:

$$H_{\mathrm{AF/PM}}^{(\perp)} = r_0\sqrt{\frac{-u_2}{D'}}\mathfrak{h}_0 \tag{F.1}$$

これをプロットして得られる相図が, 図 F.2(a) に示されている. これは, 一軸異方性の反強磁性体 $GdAlO_3$ における実験結果と整合している [103]. 解析的に得られたこの相図を基に, 本論と同様に時間依存ギンツブルグ・ランダウ方程式を数値的に解くことでネールベクトルの磁場依存性を評価した [図 F.2(b),(c),(d)]. (b)-(d) いずれも, 相図に従って秩序変数が変化している事が分かる. 次に, 磁化の磁場依存性を計算した結果が図 F.3(a)-(d) に示されている. (a),(b) では容易軸に垂直な場合の方が磁化が大きいが, スピンフロップ磁場以降では容易軸に平行な磁場下の磁化の方が大きい. (c) は常磁性相の温度領域のため, 秩序変数は消失して等方的な磁化が得られる.

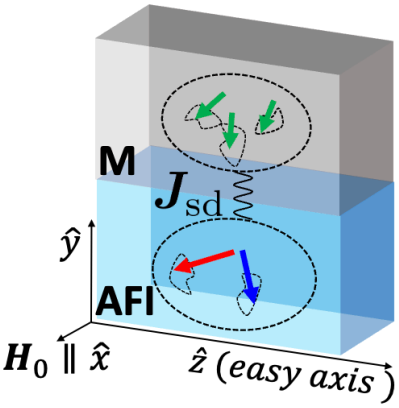

図 F.1　容易軸に対して垂直な磁場下の接合系概念図．磁場が容易軸に対して垂直な x 方向に印加される事に注意．

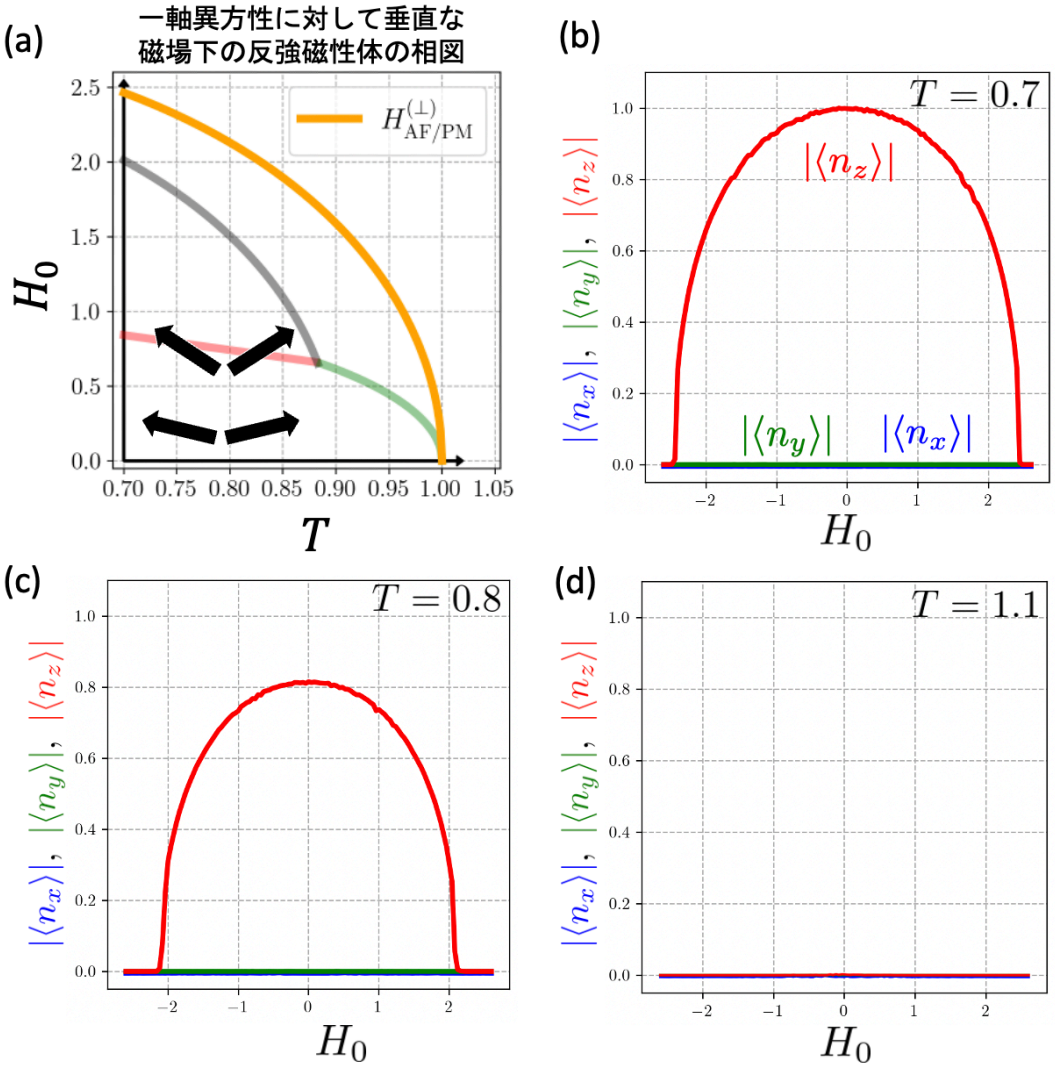

図 F.2　(a) 容易軸に対して垂直な磁場下の反強磁性体の温度・磁場相図．比較のため, 容易軸に対して平行な磁場の時の相境界 (色付きの透明のライン) を記載した．相図内の矢印は磁気モーメントの概念図．(b),(c),(d): ネールベクトルの磁場依存性．(b) は $T = 0.7$, (c) は $T = 0.8$, (d) は $T = 1.1$ の時のデータである．パラメータは図 2.4 と同様．

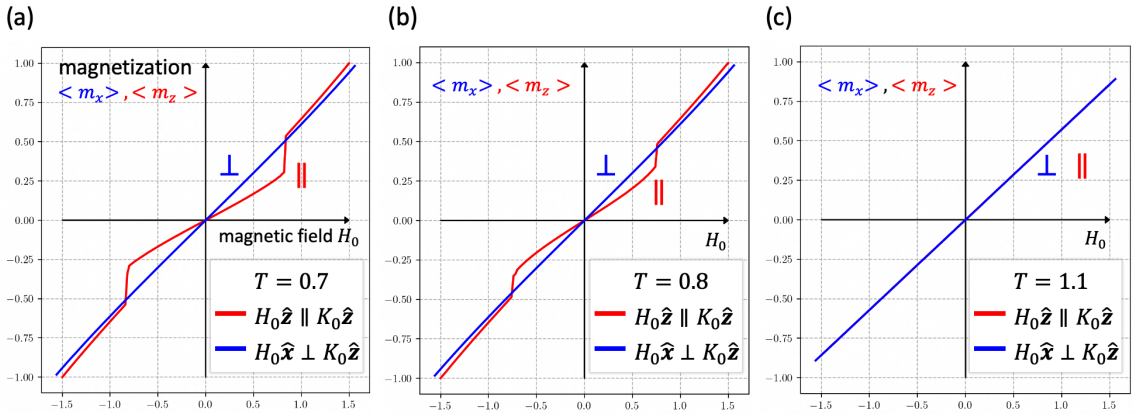

図 F.3　磁化の磁場依存性の計算結果．(a),(b),(c) はそれぞれ反強磁性体の温度が $T = 0.7,\ 0.8,\ 1.1$ の時の結果である．パラメータは図 2.4 と同様．

F.2　容易軸に対して垂直な磁場下のマグノンバンド

$\boldsymbol{n}_{\rm eq} = n_{\rm eq}\hat{\boldsymbol{z}}$, $\boldsymbol{m}_{\rm eq} = m_{\rm eq}\hat{\boldsymbol{x}}$ である事に注意し, $\delta\boldsymbol{m} = \boldsymbol{m} - \boldsymbol{m}_{\rm eq}$, $\delta\boldsymbol{n} = \boldsymbol{n} - \boldsymbol{n}_{\rm eq}$ という平衡状態周りの揺らぎを考える．この際, $m_{\rm eq}, n_{\rm eq}$ は式 (2.23) と式 (2.24) において $\theta = 0,\ D = 0$ と置くことで計算される．揺らぎ $\delta\boldsymbol{m}, \delta\boldsymbol{n}$ について時間依存ギンツブルグ・ランダウ方程式 [式 (2.2), 式 (2.1)] を線形化し, 振動解 $\delta O(t) = \delta O(\omega)\exp(-i\omega t)$ を仮定すると次式を得る:

$$(\omega - \hat{\mathcal{A}}^{(\perp)}_{\rm QFMR})\begin{bmatrix}\delta m_y\\ \delta m_z\\ \delta n_x\end{bmatrix} = \begin{bmatrix}0\\0\\0\end{bmatrix},\quad (\omega - \hat{\mathcal{A}}^{(\perp)}_{\rm flat})\begin{bmatrix}\delta m_x\\ \delta n_y\\ \delta n_z\end{bmatrix} = \begin{bmatrix}0\\0\\0\end{bmatrix} \tag{F.2}$$

ここで, $\hat{\mathcal{A}}^{(\perp)}_{\rm QFMR}$, $\hat{\mathcal{A}}^{(\perp)}_{\rm flat}$ はそれぞれ垂直磁場下の quasi-ferromagnetic-resonace(QFMR), flat-mode の行列であり, 次式で定義する:

$$\hat{\mathcal{A}}^{(\perp)}_{\rm QFMR} = \begin{bmatrix} 0 & -i\gamma H_0 & i\gamma\hbar_0 n_{\rm eq}K_0 \\ i\gamma H_0 & 0 & 0 \\ -i\gamma\hbar_0 n_{\rm eq}\chi_\perp^{-1} & 0 & 0 \end{bmatrix} \tag{F.3}$$

$$\hat{\mathcal{A}}^{(\perp)}_{\rm flat} = \begin{bmatrix} 0 & -i\gamma\hbar_0 n_{\rm eq}K_0 & 0 \\ i\gamma\hbar_0 n_{\rm eq}(\chi_\perp^{-1} - 2D' m_{\rm eq}^2) & 0 & 2i\gamma\hbar_0 n_{\rm eq}^2 m_{\rm eq}(D' - b) \\ 0 & i\gamma\hbar_0 m_{\rm eq}K_0 & 0 \end{bmatrix} \tag{F.4}$$

行列式 $|\omega - \hat{\mathcal{A}}^{(\perp)}_{\rm QFMR}| = 0$, 行列式 $|\omega - \hat{\mathcal{A}}^{(\perp)}_{\rm flat}| = 0$ と置くことで次のマグノン周波数を得る:

$$\omega^{(\perp)}_{\rm QFMR} = \sqrt{(\gamma H_0)^2 + (\gamma\hbar_0 n_{\rm eq})^2 K_0/\chi_\perp} \tag{F.5}$$

$$\omega^{(\perp)}_{\rm flat} = \sqrt{K_0(\gamma\hbar_0 n_{\rm eq})^2\left\{1/\chi_\perp + 2m_{\rm eq}^2(u_4 - 2D')\right\}} \tag{F.6}$$

ここで, $m_{\rm eq} = (r_0 + D' n_{\rm eq}^2)H_0/\hbar_0 := \chi_\perp H_0/\hbar_0$ である．得られたマグノン周波数は金森等がスピン波理論で解析した結果と整合している [104]．また, この結果がスピンフロップ相におけるマグノン周波数 [式 (2.50), 式 (2.51)] において $\chi_{\rm SF} \to \chi_\perp$, $K_1 \to K_0$ と置換したような形になる事に注意して欲しい．特に flat-mode においては, ネール秩序を安定化させる異方性が面内異方性 K_1 から一軸異方性 K_1 となっているため, このような置換が起きると考えられる．

得られたマグノン周波数を図 F.4(a) にプロットした．オレンジ色が式 (F.5), グレー色が式 (F.6) のプロットである．この図から, スピン状態の類似性から励起状態も類似した様相となっている事が伺える．式 (F.5) の QFMR モードについては, 萩原等による MnF_2 を用いた反強磁性共鳴実験の結果 [105] と整合している．ただし, flat モードに対しては言及されていない事に注意して欲しい．

次に, 2.4.2 と同様に, マグノンの極性を決定するために反強磁性共鳴実験のシミュレーションを行う．今の場合, x 方向に極性を持つため, 次の回転振動磁場を反強磁性体に照射する:

$$\boldsymbol{h}_{\mathrm{ac}} = h_{\mathrm{ac}}(0,\ \cos\omega_{\mathrm{ac}}t,\ \sin\omega_{\mathrm{ac}}t) \tag{F.7}$$

そして, 反強磁性スピンが吸収する平均エネルギー式 (2.53) を計算すると, 図 F.4(b) におけるオレンジ色のデータが得られる．この結果から, 垂直磁場下の QFMR モードは $\omega_{\mathrm{ac}}/\omega_{\mathrm{AFMR}} \sim +2.2$ で共鳴状態となる事が分かる．この位置は, マグノンのバンド図 (図 F.4(a)) と一致している．従って, QFMR モードは右巻きの極性 ($\omega_{\mathrm{ac}} > 0$) を持つ事が明らかとなった．一方, 回転磁場の下では flat-mode が共鳴していない事が読み取れる．この事情はスピンフロップ相における flat-mode と同様である．実際, 図 F.4(a) の該当箇所で flat-mode は共鳴していない．そこで, 今度は x 方向の直線振動磁場でスピン系を揺さぶる:

$$\boldsymbol{h}_{\mathrm{ac}} = h_{\mathrm{ac}}(\cos\omega_{\mathrm{ac}}t,\ 0,\ 0) \tag{F.8}$$

その結果, 図 F.4(b) のグレー色のデータが得られた．このデータから, $\omega_{\mathrm{ac}}/\omega_{\mathrm{AFMR}} \sim \pm 0.9$ 程度で共鳴状態が起きている事が確認できる．この共鳴位置は, 図 F.4(a) と整合している．従って, 垂直磁場下の flat-mode はスピンフロップ相の flat-mode と同様に直線偏光に対応する極性を持っている事が明らかとなった．

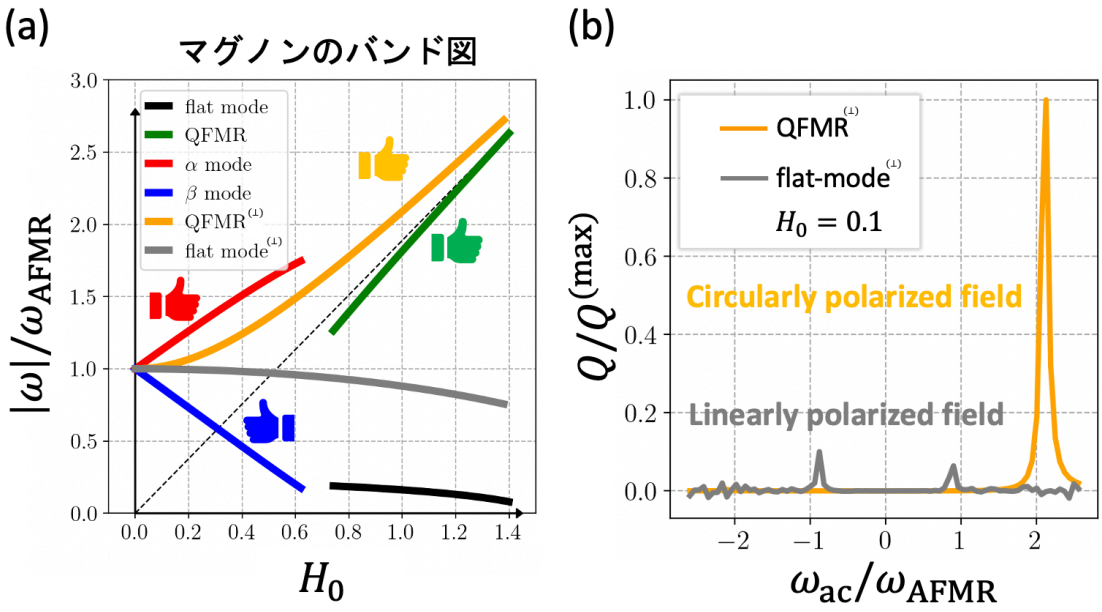

図 F.4　(a) マグノンのバンド図．容易軸に平行な磁場下のマグノンバンド図 2.9(a) に, 容易軸に垂直な磁場下のマグノンバンド [オレンジ色で示されているマグノン周波数式 (F.5), 及び, グレー色で示されているマグノン周波数式 (F.6)] を追加した．(b) 反強磁性共鳴吸収エネルギーの周波数依存性．オレンジ色は回転振動磁場 [式 (F.7)], グレー色は直線振動磁場 [式 (F.8)] によるシミュレーション結果を表している．パラメータは文献 [68](APS) の Fig. 3 と同様．

F.3　容易軸に対して垂直な磁場下の反強磁性スピンゼーベック効果

以上で, 反強磁性体のギンツブルグ・ランダウ模型が垂直磁場下の平衡状態とマグノンを適切に記述できる事を確認できた. 以降では, スピンゼーベック効果の計算を行う. スピン流を評価する手順は本論と同様で, 式 (2.19) の下に記載した手順で熱揺らぎを取り入れた時間依存ギンツブルグ・ランダウ方程式と Bloch 方程式を解き (Langevin 法), スピン流の統計平均 [式 (3.13)] を評価する. ただし, 今はマグノンの運ぶスピンは容易軸と垂直な x 方向であるため, スピン流の定義は $I_s := \langle \partial s_x / \partial t \rangle$ に変更される事に注意が必要である. シミュレーションでは, Bloch 方程式 [式 (2.7)] を用いて次の差分化された量に置き換えてスピン流を評価する:

$$I_s = \begin{cases} \dfrac{1}{N_{\rm step}} \dfrac{J_{\rm sd}}{\hbar} \displaystyle\sum_{p=1}^{N_{\rm step}} \{ m_y(t_p) s_z(t_p) - s_y(t_p) m_z(t_p) \} & \text{for magnetic coupling} \\ \dfrac{1}{N_{\rm step}} \dfrac{J_{\rm sd}}{\hbar} \displaystyle\sum_{p=1}^{N_{\rm step}} \{ n_y(t_p) s_z(t_p) - s_y(t_p) n_z(t_p) \} & \text{for Néel coupling} \end{cases} \tag{F.9}$$

最初にスピン流の温度差応答を計算し, 温度差が無い場合に有意なスピン流が生じない事, 温度差に対してスピン流が線形応答の範囲にある事を確認する. その後, スピン流の磁場・温度依存性の計算結果を示す.

(1) スピン流の温度差応答

スピン流の温度差応答の計算結果が図 F.5 に示されている. (a) は magnetic coupling, (b) は Néel coupling の場合である. いずれもスピン流が温度差に対して線形応答の範囲にある事が確認できる. また, 容易軸に垂直な磁場下ではスピンフロップ相と同様に偏極スピンを運ぶ励起モードは QFMR のみであるから, 得られたスピン流は本論で紹介したスピンフロップ相におけるスピン流と同符号 ($I_s > 0$) である.

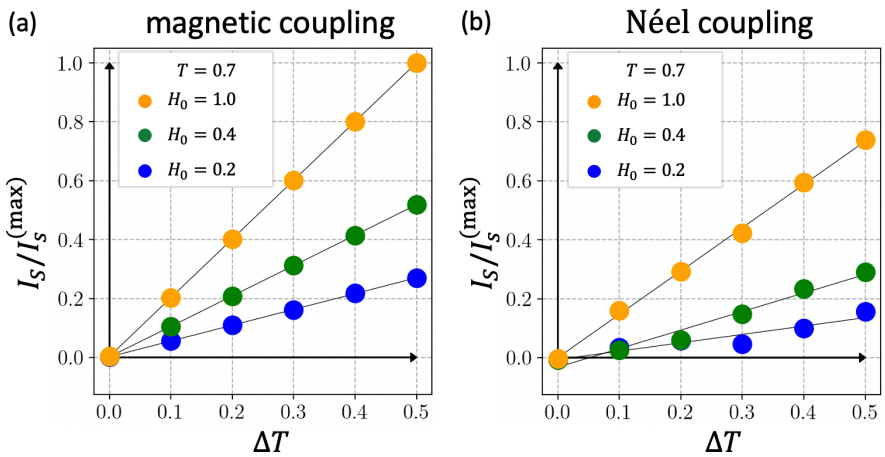

図 F.5　$\tilde{\omega}_0 = 0.5$ に対する, (a)magnetic coupling, 及び, (b)Néel coupling の場合のスピン流の温度差応答. 反強磁性体の温度は $T = 0.7$ に固定している. 青色, 緑色, オレンジ色のデータは磁場が $H_0 = 0.2,\ 0.4,\ 1.0$ の時のデータである. パラメータは, magnetic coupling で $N_{\rm step} = 1 \times 10^{10}$, Néel coupling で $N_{\rm step} = 1 \times 10^{12}$ とした事以外, 図 4.1 と同様.

(2) スピン流の磁場依存性

次にスピン流の磁場依存性の計算結果を図 F.6 に示す．左枠が magnetic coupling, 右枠は Néel coupling の場合である．

まず, magnetic coupling の場合の計算結果 [図 F.6(a),(c),(e)] について述べる．(a),(c) は, 温度がそれぞれ $T = 0.7,\ 0.8$ の時のスピン流の磁場依存性である．スピンフロップ磁場よりも低磁場側では, 垂直磁場下 ($H_0\hat{\boldsymbol{x}} \perp K_0\hat{\boldsymbol{z}}$) のスピン流の方が平行磁場下 ($H_0\hat{\boldsymbol{z}} \parallel K_0\hat{\boldsymbol{z}}$) のスピン流よりも大きい．しかし, スピンフロップ磁場よりも高磁場側ではこの関係は逆転している．この振る舞いは, MnF_2[67], FeF_2[5] におけるスピンゼーベック効果実験の結果と整合している．この振る舞いが得られる原因は, スピン流が反強磁性スピン帯磁率に比例しているためと考えられる [図 F.3 参照]．より温度を上昇させて $T = 1.1$ の常磁性領域に達すると [図 F.6(e)], 磁場方向に関わらず同強度のスピン流が得られている．これは, 常磁性相にある MnF_2[67] 及び FeF_2[5] におけるスピンゼーベック効果実験の結果と整合している．

次に Néel coupling の場合の計算結果 [図 F.6(b),(d),(f)] について述べる．(b),(d) は, 温度がそれぞれ $T = 0.7,\ 0.8$ の時のスピン流の磁場依存性である．(b),(c) における垂直磁場下のスピン流 [青色のデータ] の大きさは, 平行磁場下のスピン流とほとんど変わらない．しかし, スピンフロップ磁場を越えると磁化の大きさを反映した振る舞いとなっている事が分かる．$T = 1.1$ の常磁性領域に達すると [図 F.6(e)], magnetic coupling と同様, 磁場方向に関わらず同強度のスピン流が得られている．

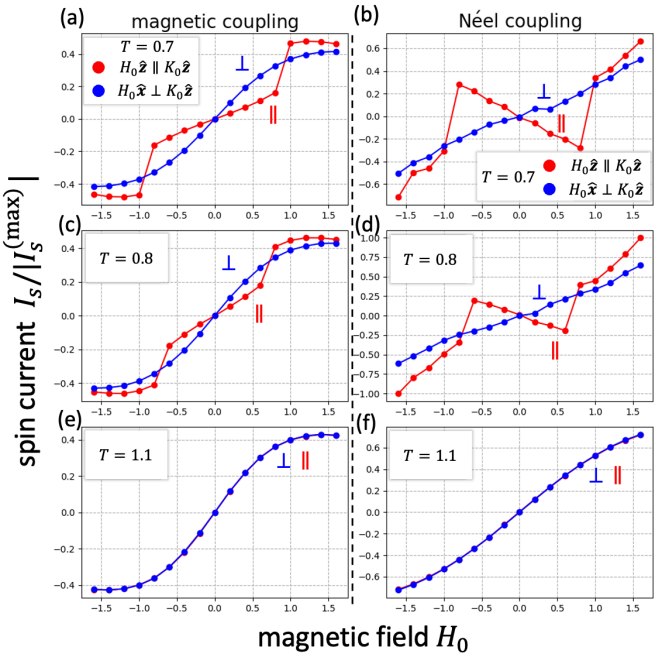

図 F.6　$\widetilde{\omega}_0 = 0.5$ に対する,magnetic coupling[left panel], 及び, Néel coupling[right panel] におけるスピン流の磁場依存性．(a),(c),(e) はそれぞれ反強磁性体の温度が $T = 0.7,\ 0.8,\ 1.1$ の時のデータ．(b),(d),(f) はそれぞれ反強磁性体の温度が $T = 0.7,\ 0.8,\ 1.1$ の時のデータ．縦軸は, (d) の最大値のスピン流で規格化している．パラメータは, magnetic coupling で $N_{\mathrm{step}} = 1 \times 10^{10}$, Néel coupling で $N_{\mathrm{step}} = 3 \times 10^{11}$ とした事以外, 図 4.3 と同様．平行磁場下のデータ [赤色のデータ] は, 文献 [68] のデータを再利用してプロット．Copyright (2022) by the American Physical Society.

(3) スピン流の温度依存性

スピン流の温度依存性の計算結果を図 F.7 に示す．(a) は magnetic coupling, (b) は Néel coupling の場合である．magnetic coupling の場合 [図 F.7(a)], 平行磁場下に比べ, 垂直磁場下のスピン流はネール温度に弱いピーク構造が確認できる．一方, Néel coupling の場合には垂直磁場下のスピン流はより鋭いピークを持つ．特に magnetic coupling におけるスピン流の符号も考慮すれば, magnetic coupling の結果は Li 等による FeF_2 を用いたスピンゼーベック効果実験の結果と整合している．常磁性領域 ($T > 1.0$) では秩序は存在しないため, 磁場方向に関わらずスピン流は同強度となっていると考えられる．

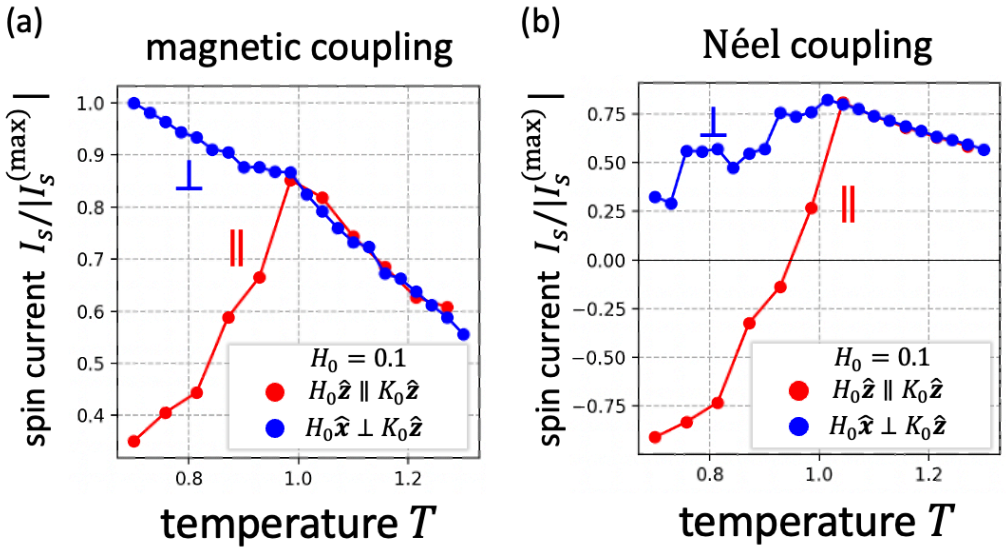

図 F.7　$\tilde{\omega}_0 = 0.5$ に対する, (a)magnetic coupling, 及び, Néel coupling におけるスピン流の温度依存性．比較のため, 本論で計算した容易軸と平行な磁場下 ($H_0\hat{\boldsymbol{x}} \parallel K_0\hat{\boldsymbol{z}}$) のデータ (赤色) も記載した．磁場は $H_0 = 0.1$ で固定している．パラメータは magnetic coupling で $N_{\rm step} = 5 \times 10^{10}$, Néel coupling で $N_{\rm step} = 5 \times 10^{12}$ とした事以外, 図 4.5(a) と同様．平行磁場下のデータ [赤色のデータ] は, 文献 [68] のデータを再利用してプロット．Copyright (2022) by the American Physical Society.

付録 G

反強磁性スピンポンピング

スピンゼーベック効果では, 磁性体中の熱ノイズを駆動力として非磁性金属にスピン角運動量が流れる. 一方, スピンポンピングでは電磁場を駆動源として非磁性金属にスピン流を流し込む. ここでは, 特に反強磁性スピンポンピングにおけるスピン流を実際に計算することでその違いを説明する. 最初に (1) スピン変数の計算, 次に (2) スピン流の計算, の順に説明する.

(1) スピン変数の計算

スピンポンピングでは, 外部から磁性体に振動磁場 $\boldsymbol{h}_{\mathrm{ac}}(t)$ を照射し, 磁気共鳴を起こして大きなスピン流を得る. 磁気共鳴の対象として反強磁性体を考えると, 交流磁場は磁化ベクトル $\boldsymbol{m}$ と結合する. これに留意して, 式 (2.2), 式 (2.1), 式 (2.7) において熱揺らぎ場を無視し, 振動解 $\delta O_i(t) = \delta O_i(\omega)\exp(-i\omega t)$ を仮定して回転座標表示 $\delta O^- = \delta O_x - i\delta O_y$ に移ると, 振動磁場がある時のスピン変数は次のように求まる:

$$\begin{bmatrix} \delta m_\omega^- \\ \delta n_\omega^- \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} G_m^-(\omega) & G_n^-(\omega) \\ F_n^-(\omega) & F_m^-(\omega) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} -m_{\mathrm{eq}}\gamma h_{\mathrm{ac}}^-(t) \\ -n_{\mathrm{eq}}\gamma h_{\mathrm{ac}}^-(t) \end{bmatrix} \tag{G.1}$$

ただし, $G_m^-(\omega)$, $G_n^-(\omega)$, $F_m^-(\omega)$, $F_n^-(\omega)$ は式 (3.30) で定義されている. 式 (3.26) と比較すると, 駆動力が次のように熱揺動から電磁場に変わった事が分かる:

$$\begin{bmatrix} i\xi^-(\omega) \\ i\eta^-(\omega) \end{bmatrix} \to \begin{bmatrix} -m_{\mathrm{eq}}\gamma h_{\mathrm{ac}}^-(t) \\ -n_{\mathrm{eq}}\gamma h_{\mathrm{ac}}^-(t) \end{bmatrix} e^{i\omega t} \tag{G.2}$$

熱白色ノイズはスペクトル強度が一定のランダムな熱励起であるが, 振動磁場はある特定の周波数でのみピークを持つ構造をしている. 従って, 系の固有モード (今の場合, α 又は β モードの反強磁性マグノン) を選択的に励起できる点で熱揺らぎ場とは異なる場である.

次に $\chi(\omega) = \chi_{\mathrm{M}}/(1 - i\omega\tau_{\mathrm{M}})$ を用いると, 非磁性金属のスピン密度は次の式で与えられる:

$$\delta s^-(\omega) = \begin{cases} \chi(\omega) J_{\mathrm{sd}} \delta m^-(\omega) & \text{for magnetic coupling} \\ \chi(\omega) J_{\mathrm{sd}} \delta n^-(\omega) & \text{for Néel coupling} \end{cases} \tag{G.3}$$

これは, 非磁性金属スピンが $J_{\mathrm{sd}}\delta m^-(\omega)$ 又は $J_{\mathrm{sd}}\delta n^-(\omega)$ という動的な有効磁場を感じて応答する事を意味している.

(2) スピン流の計算

スピン流を非磁性金属スピン密度の変化率として定義する:

$$I_s = \frac{1}{T_{\mathrm{ac}}} \int_0^{T_{\mathrm{ac}}} \frac{\partial s_z(t)}{\partial t} dt \tag{G.4}$$

スピンゼーベック効果ではスピン流の定義に熱平均が必要であるが [式 (3.12)], スピンポンピングでは磁気共鳴を用いるため, 振動磁場 $\boldsymbol{h}_{\mathrm{ac}}(t)$ の周期 $T_{\mathrm{ac}} = 2\pi/|\omega_{\mathrm{ac}}|$ で平均を取っている. Bloch eq.[式 (2.7)] の z 成分を用いると, スピン流 I_s は次の式に変形される:

$$I_s = \begin{cases} \dfrac{J_{\mathrm{sd}}}{\hbar}\dfrac{1}{T_{\mathrm{ac}}}\displaystyle\int_0^{T_{\mathrm{ac}}} \mathrm{Im}[\delta m^-(t)(\delta s^-(t))^*]dt & \text{for magnetic coupling} \\ \dfrac{J_{\mathrm{sd}}}{\hbar}\dfrac{1}{T_{\mathrm{ac}}}\displaystyle\int_0^{T_{\mathrm{ac}}} \mathrm{Im}[\delta n^-(t)(\delta s^-(t))^*]dt & \text{for Néel coupling} \end{cases} \tag{G.5}$$

これに, 先程求めたスピン変数を代入すると次式を得る:

$$I_s = \begin{cases} -\dfrac{J_{\mathrm{sd}}^2}{\hbar}\mathrm{Im}\chi(\omega)|\delta m^-(\omega)|^2 & \text{for magnetic coupling} \\ -\dfrac{J_{\mathrm{sd}}^2}{\hbar}\mathrm{Im}\chi(\omega)|\delta n^-(\omega)|^2 & \text{for Néel coupling} \end{cases} \tag{G.6}$$

ただし, $\omega_{\mathrm{ac}} > 0$ を右巻きの極性として $\boldsymbol{h}_{\mathrm{ac}}(t) = h_{\mathrm{ac}}(\cos\omega_{\mathrm{ac}}t, \sin\omega_{\mathrm{ac}}t, 0)$ という円偏光を照射するとした. $\delta m^-(\omega)$ 及び $\delta n^-(\omega)$ は反強磁性体の応答関数 $G_m^-(\omega)$, $G_n^-(\omega)$, $F_n^-(\omega)$, $F_m^-(\omega)$ を含むため, α マグノンと β マグノンを固有振動数として持つ. 従って, 振動磁場の周波数 ω_{ac} がこれらのマグノン周波数に近い時に磁気共鳴を起こし, 量子化軸に対して垂直な方向の揺らぎ $\delta m^-(\omega)$, $\delta n^-(\omega)$ が大きくなる. この絶対値は歳差運動の半径に相当するため, 歳差運動の半径が大きくなる事は磁気量子数が減少する事と等価である. 即ち, 磁気共鳴の時には多数のマグノンが生成されてスピン流を増幅させている. また, $\mathrm{Im}\chi(\omega) \propto \omega$ であるから, α マグノンの共鳴の時には $I_s < 0$, β マグノンの共鳴の時には $I_s > 0$ となる. つまり, 共鳴させるマグノンの極性を利用してスピン流の符号を操作できる. ただし, 実際には磁気共鳴時の吸収熱によってスピンゼーベック効果が重畳する可能性があるため, 符号の原因には十分な注意が必要である.

最後に実験について言及しておく. 既に MnF_2[88] や Cr_2O_3[6] といった反強磁性体を使ったスピンポンピング実験が行われており, マグノンの極性によってスピン流の符号が変化する事が確認されている. この点で上記の結果 [式 (G.6)] は実験と整合する.

付録 H

スピン依存散乱に起因する外因性スピンホール効果

不純物のスピン軌道相互作用が作り出すポテンシャルの下で, スピン依存の散乱現象が起きることを説明する．ここでは, 部分波展開による手法を用いて説明する．そのための準備として平面波展開, 中心力ポテンシャル下の部分波展開の方法を与えている．

H.1　平面波の部分波展開

平面波の部分波展開を説明する [106, 107].

散乱問題では, $r \to \infty$ における $\exp(i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r})$ の漸近形が必要になるからここで導出しておく．自由粒子の Schrödinger 方程式 $(\nabla^2 + k^2)\psi(\boldsymbol{r}) = 0$ $(E = \hbar^2 k^2/2m)$ の解は, $\psi(\boldsymbol{r}) = R_l(r)Y_{lm}(\theta,\phi)$ である．ここで, $\boldsymbol{r}$ の方向は (θ,ϕ) であり, $Y_{lm}(\theta,\phi)$ は軌道量子数 l と磁気量子数 m で決まる球面調和関数である．今, 動径方向の波動関数は次式の解である．

$$\frac{1}{r}\frac{d^2}{dr^2}rR_l(r) - \frac{l(l+1)}{r^2}R_l(r) + k^2 R_l(r) = 0$$

原点で有限な解は球ベッセル関数 $R_l(r) = j_l(kr)$ であるが, あらゆる l, m の波を重ね合わせた次の波も解となる．

$$\sum_L \sum_M A_{LM} j_L(kr) Y_{LM}(\hat{\boldsymbol{r}})$$

一方, 自由粒子の Schrödinger 方程式 $(\nabla^2 + k^2)\psi(\boldsymbol{r}) = 0$ の解として平面波 $\exp(i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r})$ があるため,

$$\exp(i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}) = \sum_L \sum_M A_{LM} j_L(kr) Y_{LM}(\hat{\boldsymbol{r}}) \tag{H.1}$$

と展開した形を考える事ができる．後は, 係数 A_{LM} を求めれば良い．そのために, 上式の両辺に $Y^*_{lm}(\hat{\boldsymbol{r}})$ を掛けて積分する:

$$\begin{aligned}\int d\hat{\boldsymbol{r}}\ \mathrm{e}^{i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}} Y^*_{lm}(\hat{\boldsymbol{r}}) &= \sum_L \sum_M A_{LM} j_L(kr) \int d\Omega\ Y_{LM} Y^*_{lm}(\hat{\boldsymbol{r}}) \\ &= A_{lm} j_l(kr)\end{aligned} \tag{H.2}$$

ここで, 球面調和関数の正規直交性を用いた．続いてこの式の左辺 (I とする) を評価しよう．今, I における積分変数の角度 $\hat{\boldsymbol{r}} = (\theta,\phi)$ の基準を波数ベクトル $\boldsymbol{k}$ の方向に取ると, $\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r} = kr\cos\theta$ と

なるから

$$
\begin{aligned}
I &= \int \mathrm{e}^{ikr\cos\theta} Y_{lm}^*(\hat{\boldsymbol{r}}) \sin\theta d\theta d\phi \\
&= \int d\phi \int_{-1}^{1} \mathrm{e}^{ikrt} Y_{lm}^*(\hat{\boldsymbol{r}}) dt \ (\because t := \cos\theta) \\
&= \int d\phi \left[\frac{\mathrm{e}^{ikr}}{ikr} Y_{lm}^*(\hat{\boldsymbol{r}}) \bigg|_{-1}^{1} - \frac{1}{ikr} \int_{-1}^{1} dt \mathrm{e}^{-ikr} \frac{\partial}{\partial t} Y_{lm}^*(\hat{\boldsymbol{k}}) \right] \\
&= \int d\phi \left[\frac{\mathrm{e}^{ikr}}{ikr} Y_{lm}^*(\hat{\boldsymbol{k}}) - \frac{\mathrm{e}^{-ikr}}{ikr} Y_{lm}^*(-\hat{\boldsymbol{k}}) - \frac{1}{ikr} \int_{-1}^{1} dt \mathrm{e}^{ikrt} \frac{\partial}{\partial t} Y_{lm}^*(\hat{\boldsymbol{k}}) \right]
\end{aligned}
$$

最後の項をさらに部分積分すると, この項は $1/r^2$ で速やかに減衰する. また, $Y_{lm}(\hat{\boldsymbol{k}})$ は ϕ に依存しないため,

$$
\begin{aligned}
I &\approx \frac{2\pi}{ikr} \left[\mathrm{e}^{ikr} Y_{lm}^*(\hat{\boldsymbol{k}}) - \mathrm{e}^{-ikr} Y_{lm}^*(-\hat{\boldsymbol{k}}) \right] \\
&= \frac{2\pi}{ikr} (\mathrm{e}^{ikr} - (-1)^l \mathrm{e}^{-ikr}) Y_{lm}^*(\hat{\boldsymbol{k}}) \quad (\because Y_{lm}(-\hat{\boldsymbol{r}}) = (-1)^l Y_{lm}(\hat{\boldsymbol{r}})) \\
&= 4\pi i^l Y_{lm}^*(\hat{\boldsymbol{k}}) \frac{\sin(kr - \pi l/2)}{kr}
\end{aligned}
$$

一方, 式 (H.2) の右辺は $A_{lm} j_l(kr) \to A_{lm} \sin(kr - \pi l/2)/kr$ (when $r \to \infty$) であるから, $A_{lm} = 4\pi i^l Y_{lm}^*(\hat{\boldsymbol{k}})$ を得る. これを式 (H.1) に代入して

$$
\begin{aligned}
\exp(i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}) &= \sum_L 4\pi i^L j_L(kr) \sum_M Y_{lm}^*(\hat{\boldsymbol{k}}) Y_{lm}(\hat{\boldsymbol{r}}) \\
&= \sum_L 4\pi i^L j_L(kr) \cdot \frac{2L+1}{4\pi} P_L(\cos\alpha) \\
&= \sum_l i^l (2l+1) j_l(kr) P_l(\cos\alpha)
\end{aligned}
$$

ただし, α は $\boldsymbol{r}$ と $\boldsymbol{k}$ の成す角であり, 途中で加法定理 $P_l(\cos\alpha) = (4\pi/(2l+1)) \sum_m Y_{lm}^*(\hat{\boldsymbol{k}}) Y_{lm}(\hat{\boldsymbol{r}})$ を用いた. $P_l(\cos\alpha)$ はルジャンドル多項式である. 特に $\boldsymbol{k}$ が z 軸方向の場合は $\cos\alpha = \cos\theta$ であるから

$$
\exp(i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}) = \sum_l i^l (2l+1) j_l(kr) P_l(\cos\theta) \tag{H.3}
$$

H.2 中心力ポテンシャル下の部分波展開

前節では, 自由粒子の平面波を部分波で重ね合わせて表現した. ここでは, 中心力ポテンシャル下では波動関数がどのように変更を受けるかを説明したい. 結論から言えば, ポテンシャル下では外向き球面波の位相がずれるという結果が得られる.

中心力ポテンシャル下の自由粒子の波動関数を $\psi = R_l(r) Y_{lm}(\hat{\boldsymbol{r}})$ とすると, 動径方向の Schrödinger 方程式は

$$
\left[r^2 \frac{d^2}{dr^2} - l(l+1) + r^2 (k^2 - U(r)) \right] \chi_l(r) = 0
$$

ただし, $U(r) = (2m/\hbar^2) V(r)$, $E = \hbar^2 k^2/2m$, $R_l(r) = \chi_l(r)/r$ である.

(1) まず原点付近の漸近解を求める.

$r \to 0$ において $r^2 U(r) \to 0$ を仮定すると

$$r^2 \frac{d^2 \chi_l(r)}{dr^2} - l(l+1)\chi_l(r) = 0$$

$\chi_l(r) = r^s$ を仮定すると $(s+l)(s-(l+1)) = 0$ を得るが, 有限な解は $s = l+1$ に限られる. よって $\chi_l(r) = Ar^{l+1}$ (near $r = 0$).

(2) 次に, この解を境界条件として遠方での解を探索する.

動径方向の Schrödinger 方程式は,

$$\left[\frac{d^2}{dr^2} r - \frac{l(l+1)}{r} - rU(r) + k^2 r\right] R_l(r) = 0$$

ポテンシャル $U(r)$ が $1/r^2$ より速やかに減衰するとすれば, 十分遠方での Schrödinger 方程式は

$$\frac{d^2 R_l}{d\rho^2} + \frac{2}{\rho}\frac{dR_l}{d\rho} + (1 - l(l+1)/\rho^2)R_l = 0$$

これは球ベッセル微分方程式であり, 球ベッセル関数 j_l と球ノイマン関数 n_l を解に持つ. この微分方程式は平面波の部分波展開でも登場したが, 今の場合は遠方での解を考えているため, 原点で発散する球ノイマン関数も解であることに注意してほしい. 即ち, もはやポテンシャルが十分に減衰している遠方での解は, $R_l(r) = A_l(\cos\delta_l\ j_l(kr) - \sin\delta_l\ n_l(kr))$. 自由粒子の場合, 原点での発散を回避するため $\delta_l = 0$ であるが, ポテンシャル下で散乱された十分に遠方の波動関数は, ポテンシャルの影響が位相のずれとして現れるということである (位相を求める方法は次節で説明している). 十分に遠方では $j_l(kr) \sim \sin(\rho - \pi l/2)/\rho$, $n_l(kr) \sim -\cos(\rho - \pi l/2)/\rho$ なので, 解は

$$R_l(r) = A_l \left[i^{-l}\exp(ikr + i\delta_l) - i^l \exp(-ikr - i\delta_l)\right]/(2ikr) \tag{H.4}$$

ここまでは特定の部分波 $\psi = R_l(r)Y_{lm}(\hat{\boldsymbol{r}})$ を解として考えてきたが, 様々な部分波を重ね合わせた波もまた, Schrödinger 方程式の解である:

$$\psi = \sum_l \sum_m a_{lm} R_l(r) Y_{lm}(\hat{\boldsymbol{r}})$$

遠方での解 (式 (H.4)) を代入すると

$$\begin{aligned}\psi &= \sum_l \sum_m a_{lm} R_l(r) Y_{lm}(\hat{\boldsymbol{r}}) \\ &= \frac{\mathrm{e}^{ikr}}{2ikr}\sum_{l,m} a_{lm} A_{lm} i^{-l} \mathrm{e}^{i\delta_l} Y_{lm}(\hat{\boldsymbol{r}}) - \frac{\mathrm{e}^{-ikr}}{2ikr}\sum_{l,m} a_{lm} A_{lm} i^l \mathrm{e}^{-\delta_l} Y_{lm}(\hat{\boldsymbol{r}})\end{aligned} \tag{H.5}$$

最後に, 十分遠方での振幅 $a_{lm}A_{lm}$ を求めれば, 解の探索が完了する. これを求めるために, 十分遠方での波動関数が入射波と散乱波の重ね合わせで表現される事を使う (これについては後で示そう):

$$\psi \to e^{i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}} + f(\hat{\boldsymbol{r}})\frac{\mathrm{e}^{ikr}}{r}$$

ただし, $f(\Omega)$ は入射波に対する散乱波の振幅である. 平面波展開 (式 (H.3)) の十分遠方での表現 $\mathrm{e}^{i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}} \sim \sum_{l,m} 4\pi Y^*_{lm}(\hat{\boldsymbol{k}})Y_{lm}(\hat{\boldsymbol{r}})[\mathrm{e}^{ikr} - (-1)^l \mathrm{e}^{-ikr}]/(2ikr)$ を代入すると,

$$\psi = \frac{\mathrm{e}^{ikr}}{2ikr}\left[\sum_{l,m} 4\pi Y^*_{lm}(\hat{\boldsymbol{k}})Y_{lm}(\hat{\boldsymbol{r}}) + 2ikf(\hat{\boldsymbol{r}})\right] - \frac{\mathrm{e}^{-ikr}}{2ikr}\sum_{l,m} 4\pi(-1)^l Y^*_{lm}(\hat{\boldsymbol{k}})Y_{lm}(\hat{\boldsymbol{r}})$$

これを式 (H.5) と比較して次の関係を得る:

$$\sum_{l,m} 4\pi Y_{lm}^*(\hat{\boldsymbol{k}})Y_{lm}(\hat{\boldsymbol{r}}) + 2ikf(\hat{\boldsymbol{r}}) = \sum_{l,m} a_{lm}A_{lm}i^{-l}\mathrm{e}^{i\delta_l}Y_{lm}(\hat{\boldsymbol{r}})$$

$$\sum_{l,m} 4\pi(-1)^l Y_{lm}^*(\hat{\boldsymbol{k}})Y_{lm}(\hat{\boldsymbol{r}}) = \sum_{l,m} a_{lm}A_{lm}i^{l}\mathrm{e}^{-\delta_l}Y_{lm}(\hat{\boldsymbol{r}})$$

第二式より得られる $a_{lm}A_{lm} = 4\pi i^l \mathrm{e}^{i\delta_l}Y_{lm}^*(\hat{\boldsymbol{k}})$ を第一式に代入すると,

$$f(\Omega) = \sum_l \frac{\mathrm{e}^{2i\delta_l}-1}{2ik}\cdot(2l+1)P_l(\cos\alpha)$$

を得る. 特に, $\boldsymbol{k}$ を z 軸方向に取れば $\alpha = \theta$ となるから,

$$f(\theta) = \sum_l (2l+1)f_l(k)P_l(\cos\theta) \tag{H.6}$$

ここで, $f_l(k) := (\mathrm{e}^{2i\delta_l}-1)/2ik$ は部分波振幅と呼ばれている. 部分波振幅が求まったので, 実際に十分遠方の解 (式 (H.5)) に代入すると次を得る:

$$\psi \sim \frac{2\pi}{ikr}\sum_{l,m}(\mathrm{e}^{2i\delta_l}\mathrm{e}^{ikr} - (-1)^l\mathrm{e}^{-ikr})Y_{lm}^*(\hat{\boldsymbol{k}})Y_{lm}(\hat{\boldsymbol{r}}) \tag{H.7}$$

一方, 平面波部分波展開の漸近形は

$$\mathrm{e}^{i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}} \xrightarrow{r\to\infty} \frac{2\pi}{ikr}\sum_{l,m}(\mathrm{e}^{ikr} - (-1)^l\mathrm{e}^{-ikr})Y_{lm}^*(\hat{\boldsymbol{k}})Y_{lm}(\hat{\boldsymbol{r}})$$

これらを比較すると, 中心力ポテンシャルは外向き球面波の位相を $2i\delta_l$ だけずらす事が分かる. さらに $\mathrm{e}^{2i\delta_l}\mathrm{e}^{ikr} = \mathrm{e}^{ikr} + (\mathrm{e}^{2i\delta_l}-1)e^{ikr}$ と書き直すと, 十分遠方での波動関数 (式 (H.7)) は

$$\psi \xrightarrow{r\to\infty} \frac{2\pi}{ikr}\sum_{l,m}\left(\mathrm{e}^{ikr} + (\mathrm{e}^{2i\delta_l}-1)e^{ikr} - (-1)^l\mathrm{e}^{-ikr}\right)Y_{lm}^*(\hat{\boldsymbol{k}})Y_{lm}(\hat{\boldsymbol{r}})$$

となるから, 平面波の部分波展開との比較から $(\mathrm{e}^{2i\delta_l}-1)e^{ikr}$ の部分が散乱波であると分かる.

H.3 位相のずれを求める積分公式

中心力ポテンシャルの下では, 十分遠方における散乱波の位相は, 自由粒子の散乱波に比べて δ_l だけずれることが分かった. ここでは, この位相を求める積分公式を求める [107].

ポテンシャル $V(r)$ がない時の Schrödinger 方程式の解 $R_l^{(0)}(r)$ は, 次式を満たす:

$$\frac{d^2}{dr^2}R_l^{(0)}(r) - \frac{l(l+1)}{r^2}rR_l^{(0)}(r) + k^2rR_l^{(0)}(r) = 0 \tag{H.8}$$

微分操作を実行すると, 球ベッセル微分方程式を得るため $R_l^{(0)}(r) = j_l(kr)$ を得る. 一方, ポテンシャルがある時の Schrödinger 方程式の解 $R_l^{(1)}(r)$ は次式を満たす:

$$\frac{d^2}{dr^2}R_l^{(1)}(r) - \frac{l(l+1)}{r^2}rR_l^{(1)}(r) + k^2rR_l^{(1)}(r) = rU(r)R_l^{(1)}(r) \tag{H.9}$$

ただし, $U(r) = (2m/\hbar^2)V(r)$ である. 式 (H.8)$\times rR_l^{(1)}(r)$-式 (H.9)$\times rR_l^{(0)}(r)$ より,

$$rR_l^{(1)}(r)\frac{d^2}{dr^2}rR_l^{(0)}(r) - rR_l^{(0)}(r)\frac{d^2}{dr^2}rR_l^{(1)}(r) = -U(r)r^2R_l^{(0)}(r)R_l^{(1)}(r)$$

これを動径方向に対して積分すると, 左辺は

$$\begin{aligned}
&\int_0^\infty \left[rR_l^{(1)}(r)\frac{d}{dr}\left(\frac{d}{dr}rR_l^{(0)}(r)\right) - rR_l^{(0)}(r)\frac{d}{dr}\left(\frac{d}{dr}rR_l^{(1)}(r)\right)\right] \\
&= \left[rR_l^{(1)}(r)\frac{d}{dr}rR_l^{(0)}(r) - rR_l^{(0)}(r)\frac{d}{dr}rR_l^{(1)}(r)\right]_0^\infty \\
&= \frac{1}{k}\left[\rho\frac{\sin\left(\rho - \frac{\pi l}{2} + \delta_l\right)}{\rho}\cdot\cos\left(\rho - \frac{\pi l}{2}\right) - \frac{\sin\left(\rho - \frac{\pi l}{2}\right)}{\rho}\cdot\cos\left(\rho - \frac{\pi l}{2} + \delta_l\right)\right] \\
&= \frac{\sin\delta_l}{k}
\end{aligned}$$

ただし, 最初の等号で部分積分, 2 つ目の等号で境界条件 $rR_l(r) = 0$ (when $r \to 0$), $R_l^{(1)}(r) \sim \sin(\rho - \pi l/2 + \delta_l)$, $R_l^{(0)}(r) \sim \sin(\rho - \pi l/2)$ (when $r \to \infty$), 最後に加法定理を用いた. 従って,

$$\sin\delta_l = -\frac{2mk}{\hbar^2}\int_0^\infty r^2V(r)R_l^{(0)}(r)R_l^{(1)}(r)dr$$

を得る. 今, ポテンシャルが弱い状況を想定すると $R_l^{(0)}(r) \sim R_l^{(1)}(r)$ である. さらに低ネルギーの入射粒子を仮定すると $R_l^{(0)}(r) = j_l(\rho) \sim (kr)^l$. 従って, 上式の右辺は $(kr)^{2l+2}$ に比例する. この時 δ_l は小さく $\sin\delta_l \sim \delta_l$ と期待されるため,

$$\delta_l = -\frac{2mk}{\hbar^2}\int_0^\infty (kr)^{2l+2}V(r)dr$$

この結果は, 十分にポテンシャルが弱ければ軌道量子数 l が大きい波動は位相のずれに関与せず, 主に $l = 0$ の S 波によって決定されることを意味する.

H.4 スピン軌道相互作用によるスピン依存散乱

H.4.1 散乱振幅の演算子

系に存在する一つの不純物が, 新たにスピン軌道相互作用によるポテンシャルを作っている状況を考える. 即ち $V(r) = V_0(r) + V_{\rm so}(r)\boldsymbol{l}\cdot\boldsymbol{s}$. ここで, $\boldsymbol{l}, \boldsymbol{s}$. はそれぞれ軌道量子数と電子スピンである. この時, 良い量子数は全角運動量 $\boldsymbol{j} = \boldsymbol{l} + \boldsymbol{s}$ であるから, $j = l \pm 1/2$ である. これまでの散乱理論では, スピンを無視していたが, わざわざ理論を構築し直す必要はない. なぜなら, 我々はポテンシャルの影響が十分遠方における散乱波の位相に押し込められる事を知っているから. 従って, 散乱波に含まれる部分散乱振幅を演算子に置換してその振る舞いを調査すれば良い. 即ち $f_l \to \hat{f}_l$ を考えるが, 今は $\boldsymbol{l}^2$ を保存するために可換 ($[\hat{f}_l, \boldsymbol{l}^2] = 0$) でなければならない. そのような演算子として $\hat{f}_l = \hat{a} + \hat{b}\boldsymbol{l}\cdot\boldsymbol{s}$ を考える [106]. ただし, $\hat{a}, \hat{b}$ は $\boldsymbol{l}^2$ と可換であることを要請する. より解析を進めるために, $\boldsymbol{l}\cdot\boldsymbol{s}$ の固有値を調べておこう.

$$\begin{aligned}
2\boldsymbol{l}\cdot\boldsymbol{s} &= \boldsymbol{j}^2 - \boldsymbol{l}^2 - \boldsymbol{s}^2 \\
&= \begin{cases} (l+1/2)(l+3/2) - l(l+1) - \frac{1}{2}(\frac{1}{2}+1) & \text{for } j = l + \frac{1}{2} \\ (l-1/2)(l+1/2) - l(l+1) - \frac{1}{2}(\frac{1}{2}+1) & \text{for } j = l - \frac{1}{2} \end{cases}
\end{aligned}$$

$$= \begin{cases} l & \text{for } j = l + \frac{1}{2} \\ -(l+1) & \text{for } j = l - \frac{1}{2} \end{cases}$$

従って,

$$\boldsymbol{l} \cdot \boldsymbol{s} = \begin{cases} \frac{1}{2} l & \text{for } j = l + \frac{1}{2} \\ -\frac{1}{2}(l+1) & \text{for } j = l - \frac{1}{2} \end{cases}$$

演算子 $\hat{f}_l$ は $P_l(\cos\theta)\chi_\pm$ に作用するから ($\chi_\pm$ は電子スピンの波動関数)

$$f_l = \begin{cases} a_l + b_l \cdot \frac{1}{2} & \text{for } j = l + \frac{1}{2} \\ a_l + b_l \cdot \left(-\frac{1}{2}(l+1)\right) & \text{for } j = l - \frac{1}{2} \end{cases}$$

$j = l \pm 1/2$ に対応して位相のずれ $\delta_{l_\pm}$ を定義すると, 部分波散乱振幅は

$$\begin{cases} a_l + b_l \cdot \frac{1}{2} = \frac{\exp(2i\delta_{l_+})-1}{2ik} & \text{for } j = l + \frac{1}{2} \\ a_l + b_l \cdot \left(-\frac{1}{2}(l+1)\right) = \frac{\exp(2i\delta_{l_-})-1}{2ik} & \text{for } j = l - \frac{1}{2} \end{cases}$$

これらより

$$\begin{cases} a_l = \frac{1}{2l+1}\left[(l+1)\frac{\exp(2i\delta_{l_+})-1}{2ik} + l\frac{\exp(2i\delta_{l_-})-1}{2ik}\right] \\ b_l = \frac{2}{2l+1}\frac{\exp(2i\delta_{l_+})-\exp(2i\delta_{l_2})}{2ik} \end{cases}$$

ここで,

$$\begin{aligned} \boldsymbol{l} \cdot \boldsymbol{s} P_l(\cos\theta) &= \left[\frac{1}{2}(l_+ s_- + l_- s_+) + l_z s_z\right] P_l(\cos\theta) \\ &= \frac{1}{2}(-\mathrm{e}^{i\phi} P_l^1(\cos\theta)) s_- + \frac{1}{2}(+\mathrm{e}^{-i\phi} P_l^1(\cos\theta)) s_+ \quad (\because l_\pm P_l(\cos\theta) = \mp \mathrm{e}^{\pm i\phi} P_l^1(\cos\theta)) \\ &= \frac{1}{2}\left[(\mathrm{e}^{-i\phi} - \mathrm{e}^{i\phi}) s_x + i(\mathrm{e}^{-i\phi} + \mathrm{e}^{i\phi}) s_y\right] P_l(\cos\theta) \\ &= i(-\sin\phi, \cos\phi, 0) \cdot \boldsymbol{s} P_l(\cos\theta) \\ &= i\boldsymbol{\nu} \cdot \boldsymbol{s} P_l(\cos\theta) \end{aligned}$$

ただし, 最後の等式で $\boldsymbol{\nu} = (\boldsymbol{n} \times \boldsymbol{n}')/|\boldsymbol{n} \times \boldsymbol{n}'|$(粒子の入射方向 $\boldsymbol{n} = (0,0,1)$, 粒子の散乱方向 $\boldsymbol{n}' = (\sin\theta\cos\phi, \sin\theta\sin\phi, \cos\theta)$) を用いた.

以上から, 散乱振幅の演算子は

$$\begin{aligned} \hat{f}(\theta) &= \sum_l (2l+1)(a_l + b_l \boldsymbol{l} \cdot \boldsymbol{s}) P_l(\cos\theta) \\ &= A + 2B\boldsymbol{\nu} \cdot \boldsymbol{s} \end{aligned}$$

ただし,

$$\begin{aligned} A &= \frac{1}{2ik}\sum_l \left[(l+1)(\mathrm{e}^{2i\delta_{l_+}} - 1) + l(\mathrm{e}^{2i\delta_{l_-}} - 1)\right] P_l(\cos\theta) \\ B &= \frac{1}{2k}\sum_l (\mathrm{e}^{2i\delta_{l_+}} - \mathrm{e}^{2i\delta_{l_-}}) P_l^1(\cos\theta) \end{aligned}$$

H.4.2 散乱によるスピン偏極

十分遠方における散乱後の電子の波動関数は $\psi_\pm = (\mathrm{e}^{i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}} + \hat{f}(\Omega))\chi_\pm$ である．散乱波 $\psi_{\mathrm{out}} = \hat{f}(\Omega)\chi_\pm$ に含まれるスピン偏極を調べるためには, この波動関数の下で期待値を考えれば良い．即ち, $\boldsymbol{P'} \propto \sum_\chi \langle\chi|\hat{f}^\dagger \boldsymbol{s} \hat{f}|\chi\rangle$ を考える (ただし, 以降の計算では, 初期状態であらゆるスピン状態が同確率で存在するとしており, スピン偏極していないとする．また, スピン 1/2 を考えている.)．この際, 散乱振幅が入るから, 規格化のためスピン偏極を次のように定義する [106]:

$$\boldsymbol{P'} = \frac{\overline{(\hat{f}^\dagger(2\boldsymbol{s})\hat{f})_{\chi\chi}}}{\overline{(\hat{f}_\dagger\hat{f})_{\chi\chi}}}$$

ただし, バーは初期状態に対する平均で, $\sum_\chi \langle\chi|(...)|\chi\rangle/2$ を意味する．以下では, (1) $\overline{(\hat{f}_\dagger\hat{f})_{\chi\chi}}$, (2)$\overline{(\hat{f}^\dagger(2\boldsymbol{s})\hat{f})_{\chi\chi}}$, の順に計算していく.

(1) $\overline{(\hat{f}_\dagger\hat{f})_{\chi\chi}}$ の評価

$$\begin{aligned} f^\dagger f &= (A^* + 2B^*\boldsymbol{\nu}\cdot\boldsymbol{s})(A + 2B\boldsymbol{\nu}\cdot\boldsymbol{s}) \\ &= |A|^2 + 4|B|2(\boldsymbol{\nu}\cdot\boldsymbol{s})^2 + 2\mathrm{Re}[AB^*]\boldsymbol{\nu}\cdot 2\boldsymbol{s} \end{aligned}$$

ここで,

$$\begin{aligned} (\boldsymbol{\nu}\cdot\boldsymbol{s})^2 &= (\nu_x s_x + \nu_y s_y + \nu_z s_z)^2 \\ &= \nu_x^2 s_x^2 + \nu_y^2 s_y^2 + \nu_x s_x \nu_y s_y + \nu_x \nu_y s_x s_y + \nu_y \nu_x s_y s_x \\ &= \frac{1}{4}\sin^2\phi(s_+^2 + s_-^2 + s_+ s_- + s_- s_+) - \frac{1}{4}\cos^2\phi(s_+^2 + s_-^2 - s_+ s_- - s_- s_+) \\ &- \frac{1}{4i}\sin\phi\cos\phi(2s_+^2 - s_-^2) \\ &= \frac{1}{4} \end{aligned}$$

初期状態でスピン偏極していないから ($\boldsymbol{P} := 2\bar{\boldsymbol{s}} = 0$)

$$\overline{(\hat{f}_\dagger\hat{f})_{\chi\chi}} = |A|^2 + |B|^2 \tag{H.10}$$

(2)$\overline{(\hat{f}^\dagger(2\boldsymbol{s})\hat{f})_{\chi\chi}}$ の評価

$$f^\dagger \boldsymbol{s} f = |A|^2\boldsymbol{s} + 4|B|^2(\boldsymbol{\nu}\cdot\boldsymbol{s})\boldsymbol{s}(\boldsymbol{\nu}\cdot\boldsymbol{s}) + 2AB^*(\boldsymbol{\nu}\cdot\boldsymbol{s})\boldsymbol{s} + 2A^*B\boldsymbol{s}(\boldsymbol{\nu}\cdot\boldsymbol{s})$$

である．まずは $\overline{((\boldsymbol{\nu}\cdot\boldsymbol{s})\boldsymbol{s})_{\chi\chi}}$ 及び $\overline{(\boldsymbol{s}(\boldsymbol{\nu}\cdot\boldsymbol{s}))_{\chi\chi}}$ を求めよう.

$$\begin{aligned} [(\boldsymbol{\nu}\cdot\boldsymbol{s})\boldsymbol{s}]_x &= (\nu_x s_x + \nu_y s_y)s_x \\ &= \frac{1}{4}\nu_x(s_+^2 + s_-^2 + s_+ s_- + s_- s_+) + \frac{1}{4i}\nu_y(s_+^2 - s_-^2 + s_+ s_- - s^- s_+) \\ &= \begin{cases} \frac{1}{4}\nu_x + \frac{1}{4i}\nu_y & \text{for } |\chi\rangle = |+\rangle \\ \frac{1}{4}\nu_x - \frac{1}{4i}\nu_y & \text{for } |\chi\rangle = |-\rangle \end{cases} \end{aligned}$$

$$[(\boldsymbol{\nu}\cdot\boldsymbol{s})\boldsymbol{s}]_y = (\nu_x s_x + \nu_y s_y)s_y$$

$$
\begin{aligned}
&= \frac{1}{4i}\nu_x(s_+^2 - s_-^2 - s_+s_- + s_-s_+) - \frac{1}{4}\nu_y(s_+^2 + s_-^2 - s_+s_- - s_-s_+) \\
&= \begin{cases} -\frac{1}{4i}\nu_x + \frac{1}{4}\nu_y & \text{for } |\chi\rangle = |+\rangle \\ \frac{1}{4i}\nu_x + \frac{1}{4i}\nu_y & \text{for } |\chi\rangle = |-\rangle \end{cases}
\end{aligned}
$$

$$
\begin{aligned}
[\boldsymbol{s}(\boldsymbol{\nu}\cdot\boldsymbol{s})]_x &= s_x(\nu_x s_x + \nu_y s_y) \\
&= \frac{1}{4}\nu_x(s_+^2 - s_-^2 + s_+s_- + s_-s_+) + \frac{1}{4i}\nu_y(s_+^2 - s_-^2 - s_+s_- + s_-s_+) \\
&= \begin{cases} \frac{1}{4}\nu_x - \frac{1}{4i}\nu_y & \text{for } |\chi\rangle = |+\rangle \\ \frac{1}{4}\nu_x + \frac{1}{4i}\nu_y & \text{for } |\chi\rangle = |-\rangle \end{cases}
\end{aligned}
$$

$$
\begin{aligned}
[\boldsymbol{s}(\boldsymbol{\nu}\cdot\boldsymbol{s})\boldsymbol{s}]_y &= s_y(\nu_x s_x + \nu_y s_y) \\
&= \frac{1}{4i}\nu_x(s_+^2 - s_-^2 + s_+s_- - s_-s_+) - \frac{1}{4}\nu_y(s_+^2 + s_-^2 - s_+s_- - s_-s_+) \\
&= \begin{cases} \frac{1}{4i}\nu_x + \frac{1}{4}\nu_y & \text{for } |\chi\rangle = |+\rangle \\ -\frac{1}{4i}\nu_x + \frac{1}{4}\nu_y & \text{for } |\chi\rangle = |-\rangle \end{cases}
\end{aligned}
$$

また, z 成分に関しては初期状態と最終状態の直交から,$[(\boldsymbol{\nu}\cdot\boldsymbol{s})\boldsymbol{s}]_z = [\boldsymbol{s}(\boldsymbol{\nu}\cdot\boldsymbol{s})]_z = 0$ であるため. $\overline{((\boldsymbol{\nu}\cdot\boldsymbol{s})\boldsymbol{s})_{\chi\chi}} = \overline{(\boldsymbol{s}(\boldsymbol{\nu}\cdot\boldsymbol{s}))_{\chi\chi}} = \boldsymbol{\nu}/4$ を得る.

続いて, $(\boldsymbol{\nu}\cdot\boldsymbol{s})\boldsymbol{s}(\boldsymbol{\nu}\cdot\boldsymbol{s})$ を求める.

$$
\begin{aligned}
[(\boldsymbol{\nu}\cdot\boldsymbol{s})\boldsymbol{s}(\boldsymbol{\nu}\cdot\boldsymbol{s})]_x &= (\nu_x s_x^2 + \nu_y s_y s_x)(\nu_x s_x + \nu_y s_y) \\
&= \nu_x^2 s_x^3 + \nu_x\nu_y s_x^2 s_y + \nu_x\nu_y s_y s_x^2 + \nu_y^2 s_y s_x s_y \\
&= 0 \ (\because \text{奇数回の昇降演算子のため})
\end{aligned}
$$

同様に $[(\boldsymbol{\nu}\cdot\boldsymbol{s})\boldsymbol{s}(\boldsymbol{\nu}\cdot\boldsymbol{s})]_y = 0$.

z 成分は

$$
\begin{aligned}
[(\boldsymbol{\nu}\cdot\boldsymbol{s})\boldsymbol{s}(\boldsymbol{\nu}\cdot\boldsymbol{s})]_z &= \nu_x^2 s_x s_z s_x + \nu_x\nu_y s_x s_z s_y + \nu_y\nu_x s_y s_z s_x + \nu_y^2 s_y s_z s_y \\
&= \frac{1}{4}\nu_x^2(s_+s_zs_+ + s_+s_zs_- + s_-s_zs_+ + s_-s_zs_-) \\
&- \frac{1}{4i}\nu_x\nu_y(s_+s_zs_+ - s_+s_zs_- + s_-s_zs_+ + s_-s_zs_+ - s_-s_zs_-) \\
&- \frac{1}{4i}\nu_x\nu_y(s_+s_zs_+ + s_+s_zs_- - s_-s_zs_+ - s_-s_zs_-) \\
&- \frac{1}{4}\nu_y^2(s_+s_zs_+ - s_+s_zs_- - s_-s_zs_+ + s_-s_zs_-) \\
&= \begin{cases} \frac{1}{4}\nu_x^2\cdot(-\frac{1}{2}) - \frac{1}{4i}\nu_x\nu_y\cdot(+\frac{1}{2}) - \frac{1}{4i}\nu_x\nu_y\cdot(-\frac{1}{2}) - \frac{1}{4}\nu_y^2\cdot(+\frac{1}{2}) & \text{for } |+\rangle \\ \frac{1}{4}\nu_x^2\cdot(+\frac{1}{2}) - \frac{1}{4i}\nu_x\nu_y\cdot(+\frac{1}{2}) - \frac{1}{4i}\nu_x\nu_y\cdot(-\frac{1}{2}) - \frac{1}{4}\nu_y^2\cdot(-\frac{1}{2}) & \text{for } |-\rangle \end{cases} \\
&= \begin{cases} -\frac{1}{8}\nu_x^2 - \frac{1}{8}\nu_y^2 & \text{for } |+\rangle \\ +\frac{1}{8}\nu_x^2 + \frac{1}{8}\nu_y^2 & \text{for } |-\rangle \end{cases}
\end{aligned}
$$

以上から, $\overline{[(\boldsymbol{\nu}\cdot\boldsymbol{s})\boldsymbol{s}(\boldsymbol{\nu}\cdot\boldsymbol{s})]_{\chi\chi}} = 0$ と分かる. 従って,

$$
\begin{aligned}
\overline{(f^\dagger(2\boldsymbol{s})f)} &= |A|^2\cdot 2\overline{\boldsymbol{s}} + 8|B|^2\overline{(\boldsymbol{\nu}\cdot\boldsymbol{s})\boldsymbol{s}(\boldsymbol{\nu}\cdot\boldsymbol{s})} + 4AB^*\overline{(\boldsymbol{\nu}\cdot\boldsymbol{s})\boldsymbol{s}} + 4A^*B\overline{\boldsymbol{s}(\boldsymbol{\nu}\cdot\boldsymbol{s})} \\
&= |A|^2\boldsymbol{P} + 4AB^*\boldsymbol{\nu} + 4A^*B\boldsymbol{\nu} \\
&= 2\mathrm{Re}[AB^*]\boldsymbol{\nu} \ (\because \boldsymbol{P} = 0)
\end{aligned} \tag{H.11}
$$

式 (H.10), 式 (H.11) より, 初期状態でスピン偏極していないビームが散乱される時, 散乱波に含まれるスピン偏極は

$$\boldsymbol{P'} = \frac{2\mathrm{Re}[AB^*]}{|A|^2 + |B|^2}\boldsymbol{\nu} \tag{H.12}$$

$\boldsymbol{\nu} \propto \boldsymbol{n} \times \boldsymbol{n'}$(入射方向 $\boldsymbol{n}$, 散乱方向 $\boldsymbol{n'}$) を考慮すると, 入射方向に対して右向きに散乱される電子は下向きのスピン偏極, 左向きに散乱される電子は上向きのスピン偏極を作る.

謝辞

本研究を遂行するに当たって, 安立先生と市岡先生から多くの貴重な助言とご指導を賜りました. また, 岡山大学及び JST 次世代研究者挑戦的研究プログラム JPMJSP2126, 大本育英会様, 日本学生支援機構様には研究に集中するための支援を頂きました. 研究においては, 旭旭硝子財団様及び岡山大学及び JST 次世代研究者挑戦的研究プログラム JPMJSP2126 より研究費の支援を頂きました. 皆様に心より感謝を申し上げます.

研究指導においては, 学部 4 年生の頃より指導教員の安立先生から熱心な指導を賜りました. その御蔭で国際学会や国内学会に多く参加する事ができ, 非常に有意義で楽しい研究生活を送る事が出来ました. 市岡先生からは何度も貴重な助言を賜ったり, 研究しやすい場を設けて頂きました. 博士論文予備審査会においては, 岡田先生, 木原先生, 野上先生から貴重な助言を賜り, より洗練された博士論文を執筆する事が出来ました. また, 同期の清水くんや平くん, そして小田先輩からも多く学ぶことがあり, 研究の刺激になりました. 皆様に心より感謝を申し上げ, 今後の益々のご活躍とご健康を願っております.

最後に, 私をいつも支えて下さった家族に心より感謝を申し上げ, 本論文を捧げます.

参考文献

[1] K. Uchida, S. Takahashi, K. Harii, J. Ieda, W. Koshibae, K. Ando, S. Maekawa, E. Saitoh, Nature **455**, 778 (2008).

[2] K. Uchida, H. Adachi, T. Kikkawa, A. Kirihara, M. Ishida, S. Yorozu, S. Maekawa, E. Saitoh, Proc. IEEE 1**104**, 1946 (2016).

[3] K. Uchida, J. Xiao, H. Adachi, J. Ohe, S. Takahashi, J. Ieda, T. Ota, Y. Kajiwara, H. Umezawa, H. Kawai, G. E. W. Bauer, S. Maekawa, E. Saitoh, Nat. Mater. **9**, 894 (2010).

[4] H. Adachi, K. Uchida, E. Saitoh, S. Maekawa, Rep. Prog. Phys. **76**, 036501 (2013).

[5] J. Li, Z. Shi, V. H. Ortiz, M. Aldosary, C. Chen, V. Aji, P. Wei, J. Shi, Phys. Rev. Lett. **122**, 217204 (2019).

[6] J. Li, C. B. Wilson, R. Cheng, M. Lohmann, M. Kavand, W. Yuan, M. Aldosary, N. Agladze, P. Wei, M. S. Sherwin, J. Shi, Nature **578**, 70 (2020).

[7] A. Y. Cho, J. R. Arthur, Prog. Solid. State Ch. **10**, 157 (1975).

[8] E. Vélu, C. Dupas, D. Renard, J. P. Renard, J. Seiden, Phys. Rev. B **37**, 668(R) (1988).

[9] E. D. Dahlberg, K. Riggs, G. A. Prinz, J. Appl. Phys. **63**, 4270 (1988).

[10] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Eitenne, G. Creuzet, A. Friederich, J. Chazelas, Phys. Rev. Lett. **61**, 2472 (1988).

[11] T. McGuire, R. Potter, IEEE Trans. Magn. **11**, 1018 (1975).

[12] G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach, W. Zinn, Phys. Rev. B **39**, 4828(R) (1989).

[13] W. H. Meiklejohn, C. P. Bean, Phys. Rev. **102**, 1413 (1956).

[14] B. Dieny, V. S. Speriosu, S. Metin, S. S. P. Parkin, B. A. Gurney, P. Baumgart, D. R. Wilhoit, J. Appl. Phys. **69**, 4774 (1991).

[15] M. Julliere, Phys. Lett. A **54**, 225 (1975).

[16] S. Ikeda, J. Hayakawa, Y. Ashizawa, Y. M. Lee, K. Miura, H. Hasegawa, M. Tsunoda, F. Matsukura, H. Ohno, Appl. Phys. Lett. **93**, 082508 (2008).

[17] L. Berger, Phys. Rev. B **54**, 9353 (1996).

[18] J. C. Slonczewski, J. Magn. Magn. Mater. **159** (1996).

[19] E. B. Myers, D. C. Ralph, J. A. Katine, R. N. Louie, R. A. Buhrman, Science **285**, 867 (1999).

[20] S. Takahashi, S. Maekawa, Phys. Rev. B **67**, 052409 (2003).

[21] F. J. Jedema, A. T. Filip, B. J. van Wees, Nature **410**, 345 (2001).

[22] F. J. Jedema, H. B. Heersche, A. T. Filip, J. J. A. Baselmans, B. J. van Wees, Nature **416**, 713 (2002).

[23] S. Takahashi, S. Maekawa, Sci. Tech. Adv. Mater. **9**, 014105 (2008).

[24] Y. Kajiwara, K. Harii, S. Takahashi, J. Ohe, K. Uchida, M. Mizuguchi, H. Umezawa, H. Kawai, K. Ando, K. Takanashi, S. Maekawa, E. Saitoh, Nature **464**, 262 (2010).

[25] M. I. Dyakonov,V. I. Perel, JETP Lett. **13**, 467 (1971).

[26] Y. K. Kato, R. C. Myers, A. C. Gossard, D. D. Awschalom, Science **306**, 1910 (2004).

[27] J. Wunderlich, B. Kaestner, J. Sinova,T. Jungwirth, Phys. Rev. Lett. **94**, 047204 (2005).

[28] H. Kontani, T. Tanaka, D. S. Hirashima, K. Yamada, J. Inoue, Phys. Rev. Lett. **102**, 016601 (2009).

[29] J. Sinova, D. Culcer, Q. Niu, N. A. Sinitsyn, T. Jungwirth, A. H. MacDonald, Phys. Rev. Lett. **92**, 126603 (2004).

[30] S. Murakami, N. Nagaosa, S. Zhang, Science **301**, 1348 (2003).

[31] A. Manchon, S. Zhang, Phys. Rev. B **78**, 212405 (2008).

[32] E. Saitoh, M. Ueda, H. Miyajima, G. Tatara, Appl. Phys. Lett. **88**, 182509 (2006).

[33] S. O. Valenzuela, M. Tinkham, Nature **442**, 176 (2006).

[34] T. Kimura, Y. Otani, T. Sato, S. Takahashi, S. Maekawa, Phys. Rev. Lett. **98**, 156601 (2007).

[35] S. Maekawa, H. Adachi, K. Uchida, J. Ieda, E. Saitoh, J. Phys. Soc. Jpn. **82**, 102002 (2013).

[36] K. Ando, S. Takahashi, J. Ieda, H. Kurebayashi, T. Trypiniotis, C. H. W. Barnes, S. Maekawa, E. Saitoh, Nat. Mater. **10**, 655 (2011).

[37] Y. Tserkovnyak, A. Brataas, G. E. W. Bauer, Phys. Rev. B **66**, 224403 (2002).

[38] S. Mizukami, Y. Ando, T. Miyazaki, Phys. Rev. B **66**, 104413 (2002).

[39] M. Hatami, G. E. W. Bauer, S. Takahashi, S. Maekawa, Solid State Commun. **150**, 480 (2010).

[40] H. Adachi, J. Ohe, S. Takahashi, S. Maekawa, Phys. Rev. B **83**, 094410 (2011).

[41] S. Blundell, *Magnetism in Condensed Matter*, 1st ed. (Oxford University Press, 2001).

[42] K. Uchida, H. Adachi, T. Ota, H. Nakayama, S. Maekawa, E. Saitoh, Appl. Phys. Lett. **97**, 172505 (2010).

[43] R. Karplus, J. M. Luttinger, Phys. Rev. **95**, 1154 (1954).

[44] M. H. Kryder, E. C. Gage, T. W. McDaniel, W. A. Challener, R. E. Rottmayer, G. Ju, Y. Hsia, M. F. Erden, Proc. IEEE **96**, 1810 (2008).

[45] C. D. Stanciu, F. Hansteen, A. V. Kimel, A. Kirilyuk, A. Tsukamoto, A. Itoh, Th. Rasing, Phys. Rev. Lett. **99**, 047601 (2007).

[46] T. Jungwirth, X. Marti, P. Wadley, J. Wunderlich, Nat. Nanotechnol. **11**, 231 (2016).

[47] J. Železný, P. Wadley, K. Olejník, A. Hoffmann, H. Ohno, Nat. Phys. **14**, 220 (2018).

[48] V. Baltz, A. Manchon, M. Tsoi, T. Moriyama, T. Ono, Y. Tserkovnyak, Rev. Mod. Phys. **90**, 015005 (2018).

[49] H. Wang, C. Du, P. Chris. Hammel, Y. Chris, F. Yang, Phys. Rev. Lett. **113**, 097202 (2014).

[50] W. Lin, K. Chen, S. Zhang, C. L. Chien, Phys. Rev. Lett. **116**, 186601 (2016).

[51] R. Lebrun, A. Ross, S. A. Bender, A. Qaiumzadeh, L. Baldrati, J. Cramer, A. Brataas,

R. A. Duine, M. Kläui, Nature **561**, 222 (2018).

[52] C. Hahn, G. De Loubens, V. V. Naletov, J. Ben Youssef, O. Klein, M. Viret, EPL **108**, 57005 (2014).

[53] P. Wadley, B. Howells, J. Železný, C. Andrews, V. Hills, R. P. Campion, V. Novák, K. Olejník, F. Maccherozzi, S. S. Dhesi, S. Y. Martin, T. Wagner, J. Wunderlich,F. Freimuth, Y. Mokrousov, J. Kuneš, J. S. Chauhan, M. J. Grzybowski, A. W. Rushforth, K. W. Edmonds, B. L. Gallagher, T. Jungwirth, Science **351**, 587 (2016).

[54] S. Yu. Bodnar, L. Šmejkal, I. Turek, T. Jungwirth, O. Gomonay, J. Sinova, A. A. Sapozhnik, H. J. Elmers, M. Klaüi, M. Jourdan, Nat. commun. **9**, 348 (2018).

[55] X. Z. Chen, R. Zarzuela, J. Zhang, C. Song, X. F. Zhou, G. Y. Shi, F. Li, H. A. Zhou, W. J. Jiang, F. Pan, Y. Tserkovnyak, Phys. Rev. Lett. **120**, 207204 (2018).

[56] T. Moriyama, K. Oda, T. Ohkochi, M. Kimata, T. Ono, Sci. Rep. **8**, 14167 (2018).

[57] L. Baldrati, O. Gomonay, A. Ross, M. Filianina, R. Lebrun, R. Ramos, C. Leveille, F. Fuhrmann, T. R. Forrest, F. MacCherozzi, S. Valencia, F. Kronast, E. Saitoh, J. Sinova, M. Klaüi, Phys. Rev. Lett. **123**, 177201 (2019).

[58] Y. Ohnuma, H. Adachi, E. Saitoh, S. Maekawa, Phys. Rev. B **87**, 014423 (2013).

[59] Y. Ohnuma, H. Adachi, E. Saitoh, S. Maekawa, Phys. Rev. B **89**, 174417 (2014).

[60] S. M. Rezende, A. Azevedo, R. L. Rodríguez-Suárez, J. Appl. Phys. **126**, 151101 (2019).

[61] S. M. Rezende, R. L. Rodríguez-Suárez, R. O. Cunha, A. R. Rodrigues, F. L. A. Machado, G. A. Fonseca Guerra, J. C. Lopez Ortiz, A. Azevedo, Phys. Rev. B **89**, 014416 (2014).

[62] J. Holanda, D. S. Maior, O. A. Santos, L. H. Vilela-Leão, J. B. S. Mendes, A. Azevedo, R. L. Rodríguez-Suárez, S. M. Rezende, Appl. Phys. Lett. **111**, 172405 (2017).

[63] Y. Shapira, Y. S. Foner, Phys. Rev. B **1**, 3083 (1970).

[64] Y. Shapira, J. Appl. Phys. **42**, 1588 (1971).

[65] W. Yuan, J. Li, J. Shi, Appl. Phys. Lett. **117**, 100501 (2020).

[66] S. Seki, T. Ideue, M. Kubota, Y. Kozuka, R. Takagi, M. Nakamura, Y. Kaneko, M. Kawasaki, Y. Tokura, Phys. Rev. Lett. **115**, 266601 (2015).

[67] S. M. Wu, W. Zhang, A. KC, P. Borisov, J. E. Pearson, J. S. Jiang, D. Lederman, A. Hoffmann, A. Bhattacharya, Phys. Rev. Lett. **116**, 097204 (2016).

[68] Y. Yamamoto, H. Adachi, M. Ichioka, Phys. Rev. B **105**, 104417 (2022).

[69] Y. Yamamoto, H. Adachi, M. Ichioka, Phys. Rev. B **100**, 064419 (2019).

[70] R. Freedman, G. F. Mazenko, Phys. Rev. B **13**, 4967 (1976).

[71] B. I. Halperin, P. C. Hohenberg, E. D. Siggia, Phys. Rev. B **13**, 1299 (1976).

[72] H. Mori, H. Fujisaka, H. Shigematsu, Prog. Theor. Phys. **51**, 109 (1974).

[73] H. Adachi, Y. Yamamoto, M. Ichioka, J. Phys. D: Appl. Phys. **51**, 144001 (2018).

[74] C. Fang, C. H. Wan, B. S. Yang, J. Y. Qin, B. S. Tao, H. Wu, X. Zhang, X. F. Han, A. Hoffmann, X. M. Liu, Z. M. Jin, Phys. Rev. B **96**, 134421 (2017).

[75] F. E. Hoare, J. C. Matthews, Proc. R. Soc. A **212**, 137 (1952).

[76] G. Parisi, Nucl. Phys. B **180**, 378 (1981).

[77] A. Greiner, W. Strittmatter, J. Honerkamp, J. Stat. Phys. **51**, 95 (1988).

[78] M. W. Daniels, W. Guo, G. M. Stocks, D. Xiao, J. Xiao, New J. Phys. **17**, 103039 (2015).

[79] I. Gray, T. Moriyama, N. Sivadas, G. M. Stiehl, J. T. Heron, R. Need, B. J. Kirby, D. H. Low, K. C. Nowack, D. G. Schlom, D. C. Ralph, T. Ono, G. D. Fuchs, Phys. Rev. X **9**, 041016 (2019).

[80] R. L. Stamps, J. Phys. D: Appl. Phys. **33**, R247 (2000).

[81] L. D. Landau, L. P. Pitaevskii, E. Lifshitz, *Electrodynamics of Continuous Media* (Butterworth-Heinemann, 1984).

[82] V. Jaccarino, A. R. King, M. Motokawa, T. Sakakibara, M. Date, J. Magn. Magn. Mater. **31 − 34**, 1117 (1983).

[83] A. S. Carriço, R. E. Camley, R. L. Stamps, Phys. Rev. B **50**, 13453 (1994).

[84] W. Wernsdorfer, E. B. Orozco, K. Hasselbach, A. Benoit, B. Barbara, N. Demoncy, A. Loiseau, H. Pascard, D. Mailly, Phys. Rev. Lett. **78**, 1791 (1997).

[85] J. L. García-Palacios, F. J. Lázaro, Phys. Rev. B **58**, 14937 (1998).

[86] I. S. Jacobs, J. Appl. Phys. **32**, S61 (1961).

[87] C. Kittel, Phys. Rev. **82**, 565 (1951).

[88] P. Vaidya, S. A. Morley, J. Van Tol, Y. Liu, R. Cheng, A. Brataas, D. Lederman, E. Del Barco, Science **368**, 160 (2020).

[89] D. Reitz, J. Li, W. Yuan, J. Shi, Y. Tserkovnyak, Phys. Rev. B **102**, 020408(R) (2020).

[90] K. Cheng, S, Zhang, Phys. Rev. Lett. **114**, 126602 (2015).

[91] L. Zhu, D. C. Ralph, R. A. Buhrman, Phys. Rev. Lett. **122**, 077201 (2019).

[92] L. D. Landau, E. Lifshitz, *Statistical Physics, Part 1* (Butterworth-Heinemann, 1984).

[93] S. M. Wu, J. E. Pearson, A. Bhattacharya, Phys. Rev. Lett. **114**, 186602 (2015).

[94] L. Vila, T. Kimura, Y. Otani, Phys. Rev. Lett. **99**, 226604 (2007).

[95] F. B. Anderson, H. B. Callen, Phys. Rev. **136**, 1068 (1964).

[96] W. Yung-Li, H. B. Callen, J. Phys. Chem. Solids **25**, 1459 (1964).

[97] J. Nogués, I. K. Schuller, J. Magn. Magn. Mater. **192**, 203 (1999).

[98] F. Keffer, C. Kittel, Phys. Rev. B **85**, 329 (1952).

[99] 小口武彦, 磁性体の統計理論 (裳華房, 1970).

[100] K. Uchida, T. Ota, H. Adachi, J. Xiao, T. Nonaka, Y. Kajiwara, G. E. W. Bauer, S. Maekawa, E. Saitoh, J. Appl. Phys. **111**, 103903 (2012).

[101] C. M. Jaworski, J. Yang, S. Mack, D. D. Awschalom, R. C. Myers, J. P. Heremans, Phys. Rev. Lett. **106**, 186601 (2011).

[102] G. A. Slack, Phys. Rev. **122**, 1451(1961).

[103] K. W. Blazey, H. Rohrer, Phys. Rev. **173**, 574 (1968).

[104] J. Kanamori, K. Yoshida, Prog. Theor. Phys. **14**, 423 (1955).

[105] M. Hagiwara, K. Katsumata, H. Yamaguchi, M. Tokunaga, I. Yamada, M. Gross, P. Goy, International Journal of Infrared and Millimeter Waves **20**, 617 (1999).

[106] L. D. Landau, E. M. Lifshitz, *Quantum Mechanics* (Non-relativistic Theory), 3rd ed. (Butterworth-Heinemann, 1981).

[107] A. Messiah, *Quantum Mechanics* (Dover Publications, 2017).

[108] C. Kittel, *Introduction to Solid State Physics* (Weily, 1986).