磁場勾配によるスピン流の誘起とその観測

Observation of Spin Current Induced by the Magnetic-Field-Gradient

田畑吉計
京都大学大学院工学研究科材料工学専攻
Yoshikazu Tabata
Department of Materials Science and Engineering, Kyoto University,

Here we report on an attempt to observe the inverse spin Seebeck effect, namely, *a generation of the temperature-gradient by the magnetic-field-gradient-induced spin current*. We performed an accurate temperature-gradient measurement of the archetypal antiferromagnet MnF_2 with an application of the magnetic-field-gradient. In the antiferromagnetic temperature region, the significant temperature-gradient proportional to the magnitude of the magnetic-field-gradient was observed. This *may be* the first observation of the inverse spin Seebeck effect.

1. はじめに

本稿では，我々がここ数年取り組んでいる，「磁場勾配誘起スピン流の逆スピンゼーベック効果による観測」について紹介する．

スピン流とは，スピン角運動量の流れであり，近年のスピントロニクス分野における中心的トピックスとして盛んに研究されている[1]. スピン流には, スピン流の関わる新現象に対する物理的理解と，それらを応用した新技術の開発という基礎と応用の双方の観点から注目が集められている．スピン流の関わる新現象の例としては，導体中のスピン軌道相互作用によるスピン流と電流の相互変換である「スピンホール効果」（及びその逆効果）[2]や，温度勾配によるスピン流の誘起である「スピンゼーベック効果」[3]などがある．また，新技術への応用例としては，スピンホール効果を利用した，絶縁体を介した熱損失無しの電気信号の伝達や，スピンホール効果とスピンゼーベック効果を組み合わせた，（廃熱などを利用した）温度差発電，などが考えられ，実験的に確認されてもいる．スピン流に関する研究のここ十年ほどの発展は素晴らしく，詳細は[1]に挙げた文献を参照されたい.

2. 局在スピン系におけるスピン流

ところで，基本に立ち戻って考えてみると，絶縁体中におけるスピン流とは，どの様にイメージすれば良いのだろうか？導体中であれば，伝導電子があるため（電荷同様）スピンが流れるのも容易にイメージできる．外場が無ければ試料全体に流れるマクロなスピン流は 0 になるが，何らかの理由で上向きスピン電子と下向きスピン電子にアンバランスが生じると，正味のスピン流が生じる．例えば，強磁性金属であれば，上向きスピン電子と下向きスピン電子の数密度に差があるため，電場をかけて電流を流すとスピン流も同時に流れる（スピン偏極電流）．他にも，Pt など原子番号の大きい金属に電流を流すと，強いスピン軌道相互作用により上向きスピン電子と下向きスピン電子の運動方向が逆

方向に曲げられ，電流と垂直にスピン流が流れる（図 1(a)参照）．これが前出のスピンホール効果である．

絶縁体中では，スピンは各原子に局在しているため，スピンそのものが空間的に動いてスピンの流れをつくることはない．絶縁体中のスピン流は，スピン間相互作用を通じてスピンの一部が隣に受け渡されるかたちで流れる．いわばスピンのバケツリレーである．これを，隣り合うスピン間に交換相互作用の働く 1 次元スピン系をモデルに，もう少しちゃんと考えてみよう．ハミルトニアンは，

$$\mathcal{H} = -J\sum \boldsymbol{S}_i \cdot \boldsymbol{S}_j - g\mu_{\mathrm{B}}\sum H_i S_i^z \tag{1}$$

と与えられる．この系では全スピンの z 成分 $\sum S_i^z$ は保存されるので，各サイトのスピンの z 成分 S_i^z に対し，連続の式

$$\frac{\partial S_i^z}{\partial t} - (j_{i,i-1}^z + j_{i,i+1}^z) = 0 \tag{2}$$

が成り立つ．ここで，$j_{i,i+\mu}^z$ はサイト i から $i+\mu$ へと流れるスピンの z 成分を表すスピン流演算子である．この式(2)と S_i^z の Heisenberg の運動方程式

$$\frac{\partial S_i^z}{\partial t} = \frac{1}{i\hbar}\left[S_i^z, \mathcal{H}\right] = J\left(S_i^x S_{i-1}^y - S_i^y S_{i-1}^x\right) + J\left(S_i^x S_{i+1}^y - S_i^y S_{i+1}^x\right) \tag{3}$$

とを比較すると，スピン流演算子は

$$j_{i,i+\mu}^z \equiv J\left(S_i^x S_{i,i+\mu}^y - S_i^y S_{i,i+\mu}^x\right) \tag{4}$$

と定義できる．この様に局在スピン系におけるスピン流は，着目しているスピン成分（上の場合は z 成分）に垂直な面内のスピン成分の運動によって運ばれる（図 1(b)参照）．磁気秩序状態のスピンの面内成分の運動はマグノンによって記述できることから，局在スピン系のスピン流のキャリアはマグノンと考えることができる．また，磁場の勾配 $H_{i+\mu} - H_i$ がスピン流を誘起し，スピンの z 成分の勾配を作ろうとすることもすぐ分かる．つまり，静電ポテンシャルの勾配である電場が電流を誘起するように，磁場勾配がスピン流を誘起する“共役な外場”になっているのである[4].

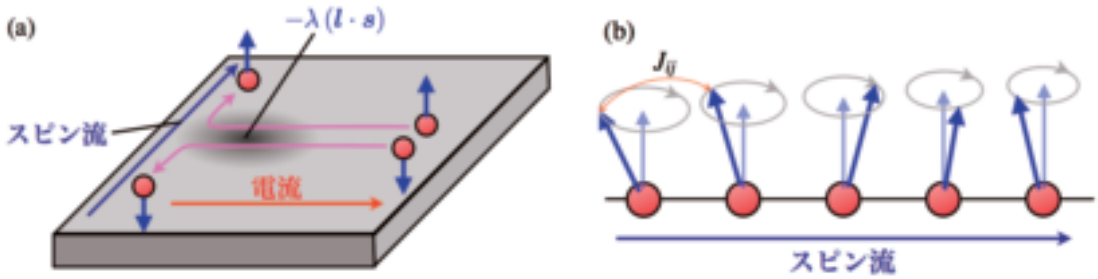

図 1 (a) スピンホール効果の概念図．スピン軌道相互作用により，上向きスピン電子と下向きスピン電子の軌道が逆方向に曲げられる．(b) 絶縁体におけるスピン流の概念図．スピン間相互作用により，面内スピンの運動により，スピンの垂直成分が隣のサイトに受け渡されて行く．

3. 熱スピン効果

それでは，実際に磁性体に磁場勾配を印加してスピン流が誘起されるのを観測できるだろうか？

スピン流研究で，スピン流の検出に良く用いられる手法は，磁性体にスピン軌道相互作用の強い常磁性金属（Pt が良く用いられる）を蒸着し，磁性体から常磁性金属に注入されるスピン流を逆スピン

ホール効果で電圧に変換し測定する，というものである．しかし，この手法では磁性体から常磁性金属へのスピン注入が界面の状態に強く依存するなど，バルク試料での実験には不向きである．

我々は，熱スピン効果による間接的な磁場勾配誘起スピン流の観測を試みた．スピンゼーベック効果に見られるように，熱（エントロピー）に共役な外場である温度の勾配によって熱流のみならずスピン流も誘起される．これは，スピン流のキャリアである伝導電子やマグノンが熱のキャリアでもあることに起因するが，この様なスピンと熱の相互変換を（熱電効果になぞらえて）熱スピン効果と呼ぶ．この熱スピン効果により，試料に磁場勾配∇Bと温度勾配∇Tがある場合のスピン流J_{S}と熱流J_{T}は，

$$\boldsymbol{J}_{\mathrm{S}} = \sigma_{\mathrm{S}}\nabla B + \sigma_{\mathrm{S}}\varsigma_{\mathrm{S}}T\left(-\frac{\nabla T}{T}\right) \qquad \boldsymbol{J}_{\mathrm{T}} = \sigma_{\mathrm{S}}\varsigma_{\mathrm{S}}T\nabla B + \kappa T\left(-\frac{\nabla T}{T}\right) \tag{5}$$

と書ける[5]．式(5)の第一式の右辺の第一項は磁場勾配によって誘起されるスピン流であり，σ_{S}は電流における電気伝導率に相当する輸送係数で，スピン伝導率と呼ばれる．第二項はスピンゼーベック効果を表し，ς_{S}はスピンゼーベック係数である．第二式の第一項は，磁場勾配によって誘起される熱流を表し，Onsager の相反定理によりスピンゼーベック効果の項と同じ係数を持つ．第二項は通常の熱伝導の項で，κは熱伝導率である[1]．今，磁性体の一端を熱浴に取り付け，温度勾配が自由に生じるように他端を熱的に浮かせた状態にして，磁場勾配をかけることを考える．磁場勾配によってスピン流が流れようとするが，同時に熱流も発生し，温度勾配が生じる．基本的に，磁性体の外にスピン流は漏れないので，定常状態では$\boldsymbol{J}_{\mathrm{S}} = \sigma_{\mathrm{S}}\nabla B - \sigma_{\mathrm{S}}\varsigma_{\mathrm{S}}\nabla T = 0$が成り立っていると考えられ[2]，試料両端に温度差ΔTが発生する．試料内の温度勾配と磁場勾配は十分緩やかで，σ_{S}，ς_{S}ともに試料内の位置に関わらず同じ値をとるとすると，試料両端の磁場の差ΔBとΔTの間には，

$$\Delta T = \eta_{\mathrm{S}}\Delta B \qquad \eta_{\mathrm{S}} = \frac{1}{\varsigma_{\mathrm{S}}} \tag{6}$$

の関係が成り立つ．つまり，磁場勾配によってスピン流が磁性体中を流れるのであれば，定常状態で磁場勾配に比例した温度勾配が発生し，その比例係数はスピンゼーベック係数の逆数になっている．この，磁場勾配によって温度差が発生する現象は，丁度スピンゼーベック効果の逆効果になっており，「逆スピンゼーベック効果」と呼べるものである．我々は，この逆スピンゼーベック効果による温度差の観測を試みた．

4. 実験装置

図 2 に，測定装置の概略図を示す．試料への磁場の印加は，磁気天秤用勾配マグネット（Oxford Ins.）を使用している．このマグネットでは，ソレノイドコイルと逆ヘルムホルツコイルによって空間的に一様な磁場と磁場勾配を独立に印加できる仕組みになっている．マグネット中央部に，温度可変インサート部があり，ここに測定用プローブをセットする．通常，この空間に熱交換ガス（He ガス）を導入してプローブの冷却を行うが，本実験では真空排気してあり，プローブをインサート部の内壁と

[1] この式では，通常の熱電効果における伝導率，ゼーベック係数と同様にスピン伝導率，スピンゼーベック係数を定義している．

[2] 試料に取り付けた温度計やそのリード線，熱浴との熱のやり取りはあるはずなので，試料に流れる熱流は 0 になるとは限らない．従って，この磁場勾配に付随して温度勾配が発生した状態は平衡状態ではなく，非平衡定常状態である．

直接接触させることにより冷却を行っている．

図 3(a)に，測定用プローブの試料部の写真を示す．図中の赤点線で囲った部分に（透明で見にくいが）試料がある．熱浴の役割を果たす銅柱に試料ホルダーとなる銅板をネジで固定し，そこに試料の下部（図中では左部）を GE ワニスを使って取り付けている．試料ホルダーとの熱接触を良くするために，アルミ箔を試料下部を覆うように取り付けてある．実際の装置の上下方向（以下，x方向とする）が図では水平方向になっており，一様バイアス磁場(B)および磁場勾配(dB/dx)は，図の水平方向に図 3(b)に示したようにかかる．図では磁場勾配が誇張されて描かれているが，実際には試料両端での磁場の差は小さく，一様バイアス磁場を試料全体にかかっている磁場，それに加えて十分緩やかな磁場勾配がスピン流を流すための独立な外場としてかかっている，と看做せる状況になっている．

磁場勾配印加によって試料の両端に発生する温度差(ΔT)は，上下両端の温度を別々の温度計で測定する．温度計には，低温下・磁場中で測定することを考慮して，磁場依存性が弱く低温での感度の高い，Cernox温度計（LakeShore社）を使用した[3]．ハーメチックセラミックパッケージタイプの温度計A(CX-1050-SD)を，試料ホルダーの銅柱に接触した部分に取り付け，温度コントロールを行いながら，試料下部の温度(T_A)を計測する．この温度を，測定時の試料の温度($T = T_A$)とする．試料上部の温度(T_B)は，ベアチップタイプの温度計B(CX-1050-BC)を試料に直接取り付けて計測する．温度計の読みと制御には，LakeShore社の温度コントローラLS336を使用した．

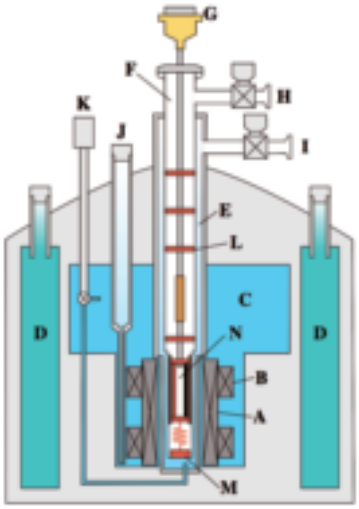

図 2 実験装置の概略図。A:メインマグネット, B:勾配マグネット，C:液体 He 層，D:液体 N_2 層，E:温度可変インサート（VTI），F:測定用プローブ挿入部, G:測定用プローブ，H:真空排気用ポート，I:液体 He 減圧用ポート，J:液体 He トランスファーロ, K:ニードルバルブ，L:熱アンカー，M:熱アンカー（VTI 底部にバネで押し付けてある），N:試料部（図 3 を参照）

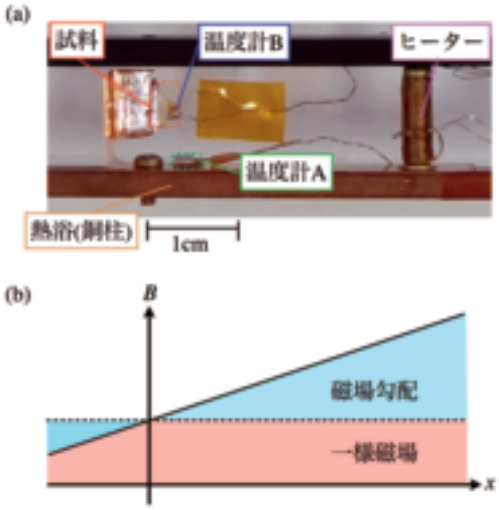

図 3 (a) 測定用プローブの試料部の写真（試料として MnF_2 を取り付けた状態）. 図の右方向が実際のプローブの上方向に対応している．(b) 試料部にかかる磁場の様子を示したもの．一様バイアス磁場に，図中右方向（実際には上方向）に向かって磁場が線形に大きくなる磁場勾配がかかっている状態を示している．

[3] 但し，後の記述にある通り，本実験では Cernox 温度計と謂えどもその磁場依存性を完全には無視できない．

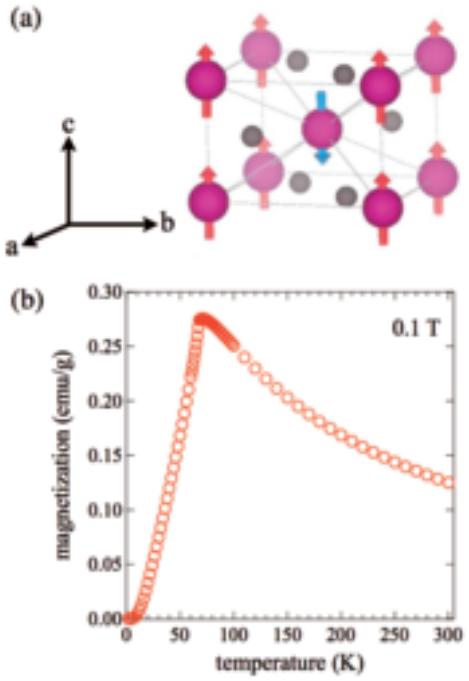

図 4 (a) MnF_2 の結晶構造と磁気構造．(b) 磁場を磁化容易軸である c 軸方向にかけた場合の磁化の温度変化．

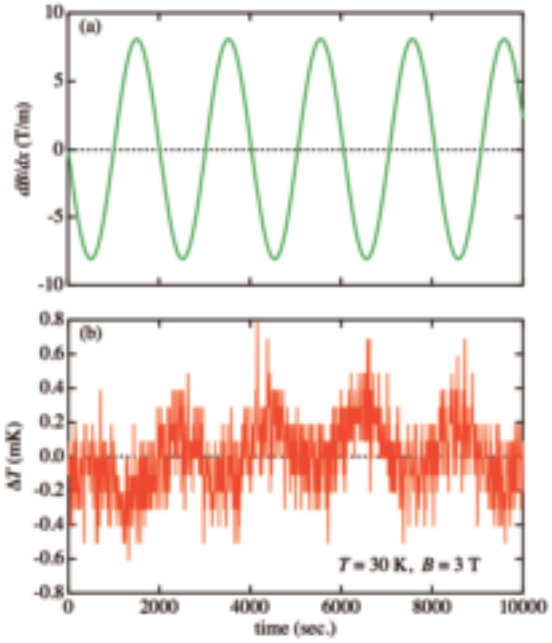

図 5 (a) 交流磁場勾配(振幅 8 T/m, 周波数 0.5 mHz) (b) (a) の磁場勾配を印加した際の [illegible] における温度差変化．なお，図では 5 周期分のみを示しているが，実際には 20 周期分の時間に渡って測定を行っている．

現実の物質に対する式(5)の形で定義されたスピンゼーベック係数の見積り，というものは一切無いので，実際にどの程度の温度差が磁場勾配によって誘起されるかは全く分からないが，（普通に考えて）非常に小さい事が予想される．そこで，微小な温度差でも精度良く捉えることができるように，磁場勾配を交流で印加し，温度差を時系列で計測し，交流磁場勾配と同じ周波数成分のみを取り出すことで，通常の測定ではノイズに埋もれてしまうような小さな温度差を精度良く測定することを試みた．

今回，磁場誘起スピン流による逆スピンゼーベック効果を観測するための試料として，反強磁性体 MnF_2($T_N = 67.2$ K)を用いた．MnF_2 は，典型的な局在スピン反強磁性体として磁性の教科書にほぼ必ず載っている物質で，磁性体の“標準試料”と看做せ[4]，今回の様に，誰もやったことのない実験を最初に行うための試料として，非常に適している．結晶構造は正方晶ルチル構造（$P4_2/mnm$）であり，反強磁性状態で各 Mn スピンは c 軸方向を向いており，図 4(a)に示した通りのコリニアな磁気構造をとる[6]．図 4(b)に，今回測定した単結晶試料の c 軸方向の磁化の温度依存性を示すが，過去の報告と良く一致している．また，試料由来ではない，2 つの温度計を用いたことに起因する“見かけの温度

[4] 他の標準的な磁性体試料として，スピンゼーベック効果の測定にも使用されている強磁性体 YIG 等が考えられるが，強磁性体では磁場や磁場勾配印加による磁壁の運動などが生じ，それによる温度差の誘起などが生じる恐れがある。これはこれで興味深い現象であるが，本研究の目的からは少し逸れるため，その様な恐れの無い反強磁性体を本研究では使用した．

差”を見積もるために，非磁性体のイットリア安定化ジルコニア（YSZ）単結晶を用いた測定も行った[5].

5. MnF_2における逆スピンゼーベック効果

図 5(a)に，実際に試料に印加した磁場勾配の波形($dB/dx = G(t) = G_0 \sin\omega_0 t$)を，図 5(b)に，そのとき試料両端に生じた温度差($\Delta T(t) = T_A(t) - T_B(t)$)を示す．図は，$T(=T_A) = 30$ K にコントロールして，一様バイアス磁場 $B = 3$ T をかけたときのもので，磁場勾配の振幅は $G_0 = 8$ T/m，周波数は $\omega_0 = 0.5$ mHz である．両図を見比べると，交流磁場勾配と同じ周波数で温度差の応答が現れているのが分かる．これをより明瞭な形で見るために，温度差 $\Delta T(t)$ をフーリエ変換したものを，図 6(a), (b)に示す．(a)は交流磁場勾配と同位相の成分 $\tilde{a}(\omega)$，(b)は $\pi/2$ だけ位相がずれた成分 $\tilde{b}(\omega)$ の周波数依存性である．これを見ると，(I) $\tilde{a}(\omega)$ には交流磁場勾配と同じ周波数($\omega = 0.5$ mHz)に鋭い負のピーク(≈ -0.15 mK)があり，交流磁場勾配印加による負の温度応答がある，(II) $\tilde{b}(\omega)$ には目立ったピークは無く，(0.5 mHz という周波数では)温度応答の遅れはない，(III) 交流磁場勾配の定数倍の周波数 $\omega = 2\omega_0, 3\omega_0, 4\omega_0, \cdots$ の応答は無く，磁場勾配に対する応答は線形である，といったことが分かる．また，この測定により，(IV) 約 0.01 mK 程度の誤差で温度差を観測できることも分かる．

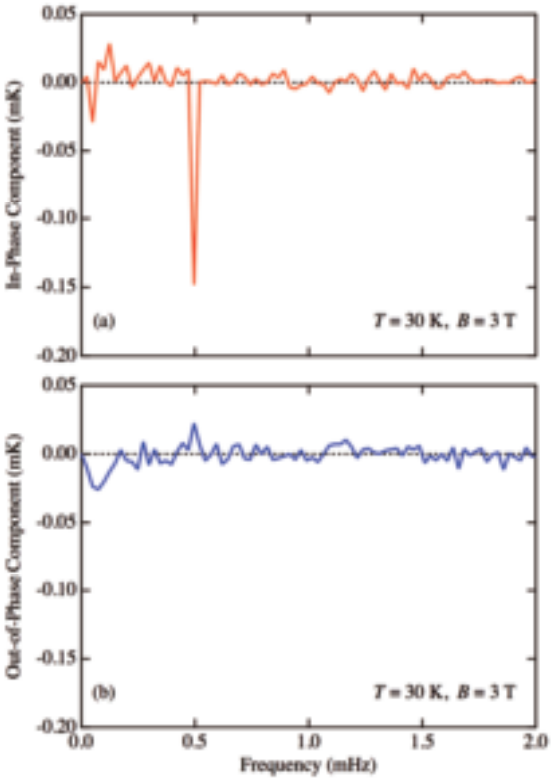

図 6 図 5(b)の温度差変化をデジタルフーリエ変換したもの. (a) 交流磁場勾配と同位相成分, (b) $\pi/2$ 位相がずれた成分.

この様な測定を，温度，一様バイアス磁場を変えて行い，YSZ を用いて見積もった見かけの応答を差し引いてまとめたものが，図 7 である．どの温度磁場でも，交流磁場勾配に対する応答の遅れはほとんど見えないので，$\tilde{a}(\omega)$ だけを解析の対象とし，MnF_2 および YSZ の結果 $\tilde{a}_{MnF_2}$，$\tilde{a}_{YSZ}$ から，

$$\eta_S = \frac{\tilde{a}_{MnF_2}(\omega_0) - \tilde{a}_{YSZ}(\omega_0)}{G_0 L} \tag{7}$$

の様に逆スピンゼーベック係数 η_S を求めた．L (≈ 2 mm)は試料の実効的な長さ(温度差を測定している試料ホルダと温度計 B との距離)である．図 7 は，この η_S を温度で割った η_S/T の一様バイアス磁場依存性を示したものである．測定温度は，$T = 90$ K ($> T_N$)，$T = 30, 50$ K ($< T_N$) の 3 点である．ど

[5] Cernox 温度計の磁場依存性は小さいが，磁気抵抗による温度の読みのずれがあることはある．本実験で使用している 2 つの温度計 A, B の磁気抵抗は全く同じではないため，各温度計の磁場依存性の違いによる見かけの温度差が生じる．また，図 3(a)を見ると分かるが，温度計 A,B の位置は x 方向に僅かに（1 mm 程度）ずれている．磁場勾配をかけると，この位置のずれにより温度計 A,B に異なる大きさの磁場がかかり（最大で約 100 G），それによるずれも生じる．これらの原因による見かけの温度差を見積もってみると，$\Delta T/T \approx 10^{-6}$ 程度と非常に小さいが，本実験ではこの程度の小さい温度差を問題にしているので，非磁性体を使って測定しておく必要がある．

の温度でも，$B=0$ T では $\eta_S/T \approx 0$ T^{-1} であるが，有限磁場での振舞が異なる．常磁性状態である $T=90$ K では磁場をかけても温度の応答は現れず，$\eta_S/T \approx 0$ T^{-1} のままである．一方，（十分 T_N より温度が低い）反強磁性状態である $T=30$ K では磁場をかけると負の温度応答が現れ，1 T 以上では $\eta_S/T \approx -6\times10^{-5}$ T^{-1} とほぼ一定の値をとっている．次に，同じく反強磁性状態であるが，T_N に近い $T=50$ K を見ると，2 T までは $T=90$ K 同様ほぼ $\eta_S/T \approx 0$ T^{-1} で，3 T で僅かに正の値をとっている．しかし，誤差も大きく有限の値をとっているかどうかは微妙で，30 K の結果と比較すると，温度応答が現れているとは言い難い．まとめると，(i) 零磁場では磁場勾配印加による温度応答は無し，(ii) 磁場をかけると，(ii-a) 反強磁性領域では負の温度応答が出現するが，(ii-b) 常磁性領域あるいは反強磁性領域でも転移温度に近くなると温度応答はほとんど現れない，という結果となった．

これらの結果は，反強磁性体で期待される振舞とコンシステントである．反強磁性体では，零磁場では上向きスピンと下向きスピンが同じ数あるため，磁場勾配をかけても正味のスピン流は流れない．そのため温度差が生じることもなく，$\eta_S=0$ になる．磁場をかけると，この打ち消しのバランスが崩れるためスピン流が流れるが，常磁性状態や，反強磁性状態であっても転移温度付近ではマグノンの寿命がスピン流を伝えられるほど長くなくやはり $\eta_S \approx 0$ のまま，一方，マグノンの寿命が十分長くなる低温では η_S が有限となる，と予想される．また，反強磁性状態では，磁化は磁場方向のスピンの熱平均が伸び，逆向きスピンの熱平均が縮むことによって現れ，スピン流を担うのは，主に磁場によって縮む磁場と逆向きスピンのゆらぎである．そのため，磁場勾配 ∇B と温度勾配 ∇T によって誘起されるスピン流の向きが同じになり，両者が打ち消し合う定常状態では磁場勾配と温度勾配の向きが逆，つまり $\eta_S<0$ となると考えられる（図 7 挿入図参照）[6]．実験結果もまさにその通りになっている．

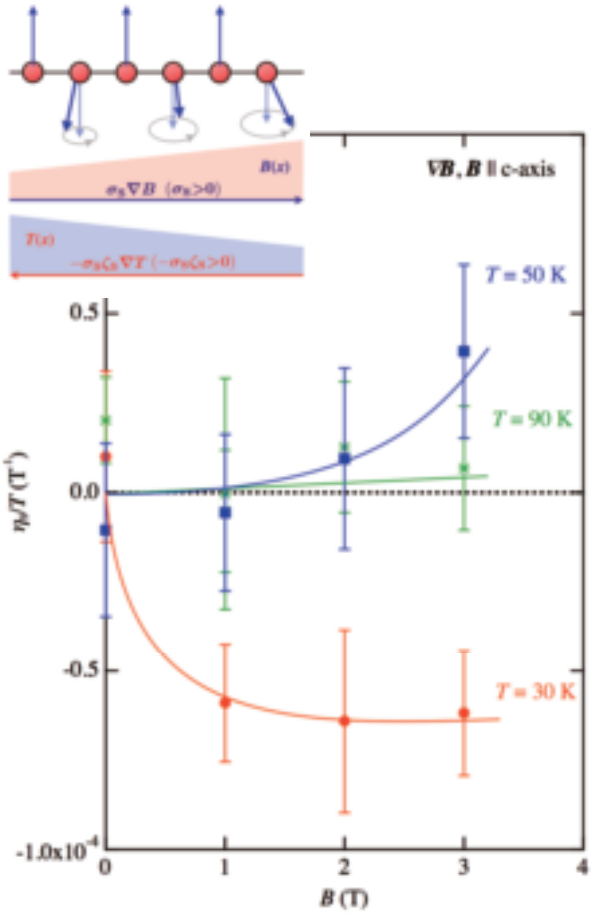

図 7 逆スピンゼーベック係数 η_S を温度で割ったものの磁場依存性（実線は guide to eyes）．左上の挿入図は，反強磁性体で磁場勾配，温度勾配を印加した場合のスピン流の流れる様子を示したもの．

6. まとめにかえて

以上の結果は，磁場勾配誘起スピン流による逆スピンゼーベック効果が起こっている，と看做しても良いだろうか？ 残念ながら，まだそうとはっきり言える段階にはない．観測された温度応答の振舞は，反強磁性体で期待される振舞と矛盾してはいない．しかし，測定温度点数や磁場範囲は十分ではなく，「期待される通りである」

[6] 熱電効果で，電子がキャリアの場合ゼーベック係数が負になるのと同じ理屈である．

と断言はできるほどの結果は得られていない．また，観測している温度差は非常に小さく，実験上のアーチファクトである可能性もある．再現性も含め，今後さらに実験を進めていく必要がある．

謝辞

本研究は，京都大学大学院工学研究科材料工学専攻磁性物理学研究室のメンバー（中村裕之教授，和氣剛助教，多くの大学院生）との共同研究である．特に，高橋顕（現 産業技術総合研究所），栗山公威（現 日揮株式会社），山田広信（現 島津製作所），妹尾岳彦（修士 2 回生）の 4 名は，修士課程在学中に本研究に参加し，中心となって実験を遂行して頂いた．深く感謝致します．

また，本実験の遂行には，液体ヘリウム，液体窒素が欠かせず，日頃からその安定供給にご尽力頂いている LTM センターに，この場を借りて厚く御礼申し上げます．

参 考 文 献

[1] S. Maekawa *et al*., J. Phys. Soc. Jpn. 82, 102002 (2013)., G. E. W. Bauer *et al*., Nature Materials 11, 391 (2012).

[2] Y. Kato *et al*., Science 306, 1910 (2004)., S. O. Valenzuela and M. Tinkham, Nature 442, 176 (2006).

[3] G. E. Bauer *et al*., Phys. Rev. B 81, 024427 (2010)., K. Uchida *et al*., Nature Mat. 9, 894 (2010).

[4] この辺りの話は，以下の文献を参考にすると良い． L. P. Kadanoff and P. C. Martix, Ann. Phys. 24, 419 (1963)., M. Sentef *et al*., Phys. Rev. B 75, 214403 (2007)., F. D. M. Haldane and D. P. Arovas, Phys. Rev. B 52, 4223 (1995).

[5] S. Furukawa *et al*., J. Phys. Soc. Jpn. 74, 3241 (2005)., F. Heidrich-Meisner et al., Phys. Rev. B 71, 184415 (2005)., G. D. Mahan, *Many-Particle Physics* (Pluenum, NY, 1990).

[6] R. A. Erickson, Phys. Rev. 90, 779 (1953).

著者略歴

田畑 吉計（Yoshikazu Tabata）
京都大学大学院工学研究科材料工学専攻　准教授

2001年　大阪大学大学院理学研究科物理学専攻　博士（理学）
2001年　理化学研究所播磨研究所　放射光利用連携研究員
2001年　大阪大学大学院理学研究科宇宙地球科学専攻　助手
2007年　京都大学大学院工学研究科材料工学専攻　助教
2008年　京都大学大学院工学研究科材料工学専攻　准教授（現職）