

# Sputter growth and anisotropic magnetoresistance effect in epitaxial thin films of Mn-based Heusler alloys: $\text{Mn}_2\text{VGa}$ and $\text{Mn}_2\text{VAl}$

H. Suto<sup>1</sup>, V. Barwal<sup>1</sup>, Z. Li<sup>1</sup>, K. Masuda<sup>1</sup>, T. Sasaki<sup>1</sup>, S. Kokado<sup>2</sup>, and Y. Sakuraba<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Research Center for Magnetic and Spintronic Materials, NIMS, Tsukuba, 305-0047, Japan

<sup>2</sup>Graduate School of Integrated Science and Technology, Shizuoka University, Hamamatsu, 432-8561, Japan

## Introduction

Mn-based ferrimagnetic Heusler alloys:  $\text{Mn}_2\text{VGa}$  (MVG) and  $\text{Mn}_2\text{VAl}$  (MVA) are expected to possess negative spin polarization, which means that the direction of spin-polarized conduction electrons is opposite to the magnetization direction [1,2]. Such negative spin-polarization materials are of growing technological importance because they can increase the freedom in the structure of spintronics devices and improve their performance [3,4]. In this study, we sputter-deposited epitaxial thin films of  $\text{Mn}_2\text{VGa}$  and  $\text{Mn}_2\text{VAl}$  and investigated anisotropic magnetoresistance (AMR) as AMR can provide insights into the scattering process of spin-polarized conduction electrons [5].

## Results

Figure 1 shows the calculated DOS of  $L_{21}$  ordered MVG and MVA. In both materials, the majority spin band exhibits a gap-like feature near the Fermi energy, which can give rise to negative spin polarization. The spin polarization is higher for MVA as the Fermi energy exists closer to the center of the gap.

Thin films of MVG and MVA were sputter deposited on MgO (001) substrates. The MVG film was deposited at RT and post-annealed at 600°C, and the MVA film was deposited at the substrate temperature of 600°C. The formation of  $L_{21}$  order was confirmed by the 002 and 111 superlattice peaks in XRD profiles, as shown in Fig. 2.

AMR effect was measured at 10–300 K using the four-probe method. An in-plane magnetic field of 10 kOe was applied to the samples, and a current was introduced along  $\langle 100 \rangle$  and  $\langle 110 \rangle$  directions. Figure 3 shows AMR ratio defined as  $(R(\varphi) - R_{\perp}) / R_{\perp}$ . Both materials exhibited positive and negative AMR for the current along the  $\langle 110 \rangle$  and  $\langle 100 \rangle$  directions, respectively, and the AMR ratio slightly enhanced with lowering the temperature. Such a sign change of AMR by the current direction was reported for  $\text{Co}_2\text{MnGa}$  Heusler alloy [6]. In the presentation, we will report the analysis of the AMR results.

## Reference

- [1] K. Özdoğan, et al., *J. Phys.: Condens. Matter* **18**, 2905 (2006).
- [2] C. Klewe, et al., *J. Phys.: Condens. Matter* **25**, 076001 (2013).
- [3] M. Takagishi, et al., *IEEE Trans. Magn.* **57**, 3300106 (2021).
- [4] H. Suto, et al., *Appl. Phys. Express* **16**, 013003 (2023).
- [5] S. Kokado, et al., *J. Phys. Soc. Jpn.* **81**, 024705 (2012).
- [6] T. Sato, et al., *Appl. Phys. Express* **12**, 103005 (2019).

This work was supported by Advanced Storage Research Consortium (ASRC) and JSPS KAKENHI Grant Number 21K20434, 23K03934.

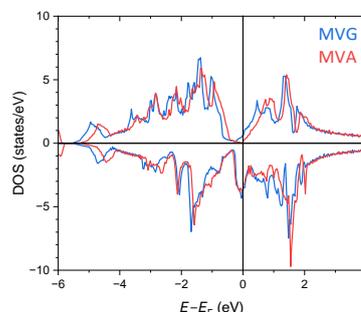


Fig. 1. Spin-resolved DOS for  $L_{21}$  ordered MVG and MVA.

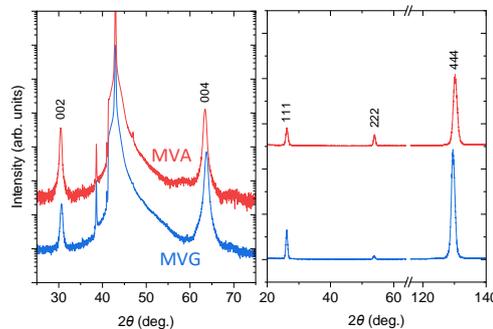


Fig. 2. XRD profile of [001]- and [111]-direction scan.

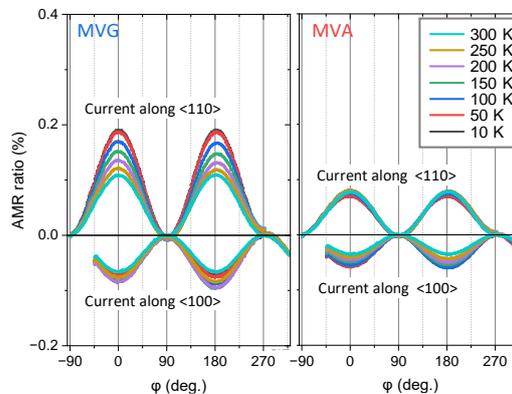


Fig. 3. AMR curves of MVG and MVA films for the two current directions along  $\langle 110 \rangle$  and  $\langle 100 \rangle$ .

# スピン角度分解光電子分光実験による Fe<sub>4</sub>N 薄膜の電子状態の観測

中西楓恋, 大和田清貴, 黒田健太, 角田一樹\*, 宮本幸治,  
奥田太一, 佐藤仁, 磯上慎二\*\*, 増田啓介\*\*, 桜庭裕弥\*\*, 木村昭夫  
(広島大, \*原子力機構, \*\*物材機構)

## Electronic Structures of Fe<sub>4</sub>N Thin Films Revealed by Spin-ARPES

K. Nakanishi, K. Ohwada, K. Kuroda, K. Sumida\*, K. Miyamoto, T. Okuda,  
H. Sato, S. Isogami\*\*, K. Masuda\*\*, Y. Sakuraba\*\*, A. Kimura  
(Hiroshima Univ., \*JAEA, \*\*NIMS)

### 背景

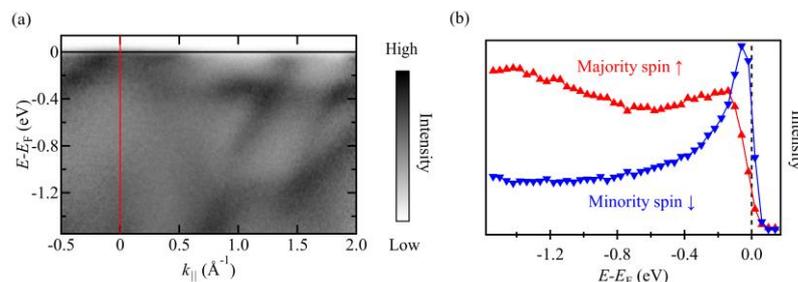
逆ペロブスカイト型窒化鉄 (Fe<sub>4</sub>N) は室温で大きな逆トンネル磁気抵抗 (TMR)効果[1], 負の異方性磁気抵抗 (AMR)効果[2]などの特徴的な輸送特性を示すことから, 物性的な興味のみならずスピントロニクス実用材料候補として注目を集めている[3]. 輸送特性の起源として, フェルミ準位近傍の状態密度が少数スピンバンドで構成されること, 加えて *d* 軌道の少数スピンの電気伝導を支配するという理論的な提案もなされている[4]. これらの理論的な提案を実証し, 輸送特性に関する従来の理解を深めるためには, フェルミ準位近傍の電子状態を直接的に観測する必要がある。

### 実験方法

そこで本研究では, スピン・角度分解光電子分光(Spin-ARPES)実験を用いた。本実験に相応しいバルク単結晶 Fe<sub>4</sub>N 作製が困難なため薄膜形成が必要であるが, それには物質・材料研究機構の超高真空マグネトロンスパッタリング装置を用いた。薄膜試料の清浄表面が必要とされるため, 成膜後は可搬型超高真空スーツケースで大気暴露なく広島大学放射光科学研究センターHiSOR に輸送した。成膜構成は, MgO(100)基板/Fe<sub>4</sub>N(膜厚 42 nm)である。ARPES と Spin-ARPES 実験をそれぞれ広島大学 HiSOR BL-7 と BL9B にて行った。また第一原理計算コード WIEN2k を用いて理論的にもバンド構造を求め実験結果と比較した。

### 実験結果

まず入射光エネルギー( $h\nu$ )を 50 - 120 eV の範囲で変化させて ARPES 実験を行うことにより, 面直波数との関係を見出した。その結果,  $\Gamma$ 点と  $M$ 点を囲む電子ポケットが観測された。次に,  $h\nu = 85$  eV に設定し, Brillouin zone の $\Gamma$ - $M$  高対称線に沿ったバンド構造[Fig.1(a)]といくつかの面内波数 ( $k_{\parallel}$ )におけるスピン分解エネルギー分布曲線を測定した。 $k_{\parallel} = 0 \text{ \AA}^{-1}$ におけるスピン分解エネルギー分布曲線を Fig.1(b)に示す。その結果, 観測されたフェルミ準位を横切るすべてのバンドが少数スピン状態に帰属できることが判明した。これらは, 負の AMR 比や逆 TMR 効果の起源として理論提案された電子状態と矛盾しない結果と言える[4]。また, 第一原理計算との比較を行ったところ,  $\Gamma$ 点と  $M$ 点を囲む電子ポケットは, それぞれ FeII サイトの  $t_{2g}$ および  $e_g$ 軌道成分が優勢であることもわかった。さらに, 講演では Co を Fe サイトに置換した電子状態の変化についても議論したい。



**Fig.1** (a) ARPES energy dispersion curves along the  $\Gamma M$  line acquired at  $h\nu = 85$  eV. (b) Spin-resolved energy distribution curves acquired at a wavenumber position denoted with red dashed line in panel (a).

### 参考文献

- [1] Y. Komazaki *et al.* J. Appl. Phys. **105**, 07C928 (2009).  
 [2] M. Tsunoda *et al.*, Appl. Phys. Exp. **2**, 083001 (2009).  
 [3] S. Isogami *et al.*, Adv. Elect. Mater. **9**, 2200515 (2023); 磯上慎二, 日本磁気学会会報「まぐね」 **17**, 89 (2022).  
 [4] S. Kokado *et al.*, Phys. Rev. B. **73**, 172410 (2006).

## Co<sub>2</sub>MnSi のバルク敏感スピン分解電子状態

上田茂典, 三浦良雄, 藤田裕一, 桜庭裕弥  
物質・材料研究機構

Bulk-sensitive spin-resolved electronic structures of Co<sub>2</sub>MnSi

S. Ueda, Y. Miura, Y. Fujita, Y. Sakuraba

National Institute for Materials Science

フェルミ準位近傍でのスピン偏極度が 100% であるハーフメタルは、伝導に寄与する電子が完全にスピン偏極しているためスピントロニクス素子への応用が期待されている。ハーフメタル候補物質の 1 つである Co<sub>2</sub>MnSi を強磁性体電極に用いた磁気抵抗素子において、低温での巨大な磁気抵抗比は室温では急激に減少することが知られており [1]、この強い温度依存性は、解決すべき課題として残されている。磁気抵抗比の温度依存性と Co<sub>2</sub>MnSi のバルク領域のスピン偏極度との相関関係の有無を明らかにするために、我々は近年開発されたバルク敏感なスピン分解硬 X 線光電子分光 [2] にて、Co<sub>2</sub>MnSi 薄膜のスピン分解電子状態の温度依存性測定を行った。測定は、SPring-8 BL15XU にて X 線エネルギーを 5.95 keV、総エネルギー分解能を 0.65 eV に設定し、低温 (21 K) と室温 (300 K) にて行った。試料は、MgO (2 nm) 層でキャップされた Co<sub>2</sub>MnSi (30 nm) エピタキシャル薄膜を用いた。

図 1(a) に、低温で行った Co<sub>2</sub>MnSi のスピン分解硬 X 線光電子スペクトルを示す [3]。多数スピンと少数スピン状態に明瞭な差が見られることが分かる。加えて多数スピン状態は金属的なフェルミ端を示すのに対し、少数スピン状態はフェルミ準位でギャップが開いているのが分かる。図 1(b) および (c) はそれぞれ低温および室温で測定したスピン偏極度スペクトルである。両者は互いによく似ており、温度依存性は殆ど見られない。また、ハーフメタル性から予測されるようにフェルミ準位で高いスピン偏極度 (~90%) を示した。これらの結果は、Co<sub>2</sub>MnSi のバルク領域では少なくとも 300 K まではハーフメタル性が保持されていることを示している。

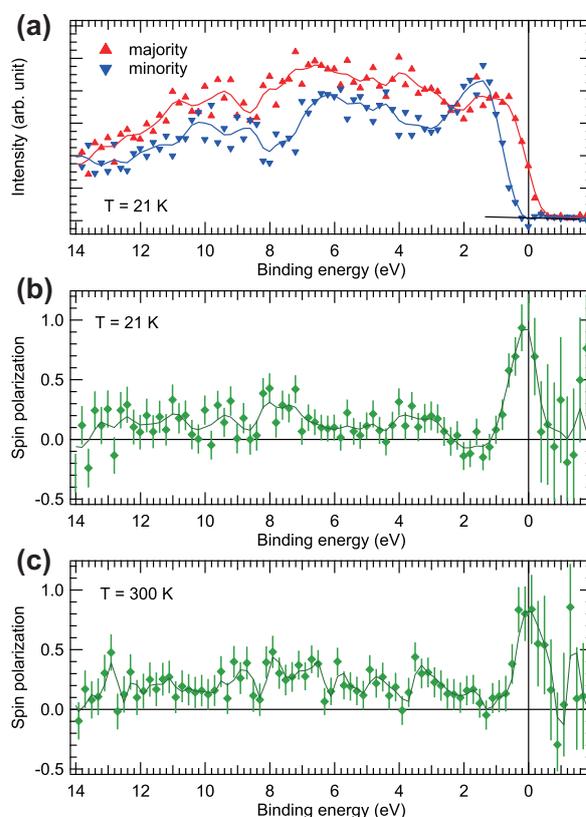


図 1: (a)  $T = 21$  K での Co<sub>2</sub>MnSi 薄膜のスピン分解光電子スペクトル。スピン偏極度スペクトル (b) 21 K, (c) 300 K [3]。

### 参考文献

- 1) K. Elphick *et al.*, *Sci. Tech. Adv. Mater.* **22**, 235 (2021).
- 2) S. Ueda, Y. Sakuraba, *Sci. Tech. Adv. Mater.* **22**, 317 (2021).
- 3) S. Ueda, Y. Miura, Y. Fujita, Y. Sakuraba, *Phys. Rev. B* **106**, 075101 (2022).

# スピン輸送測定を用いた歪み $\text{Si}_{0.1}\text{Ge}_{0.9}$ 伝導帯バレー分裂の推定と低温における不純物散乱の影響

岡田拓也<sup>1</sup>, 川島一彰<sup>1</sup>, 山田道洋<sup>2,3,4</sup>, 内藤貴大<sup>1</sup>, 我妻勇哉<sup>5</sup>, 澤野憲太郎<sup>5</sup>, 浜屋宏平<sup>2,1,4</sup>  
 (<sup>1</sup>阪大基礎工システム創成, <sup>2</sup>阪大基礎工 CSRN, <sup>3</sup>JST さきがけ, <sup>4</sup>阪大 OTRI, <sup>5</sup>東京都市大)

Estimation of valley splitting energy in strained  $\text{Si}_{0.1}\text{Ge}_{0.9}$  by lateral spin transport measurements and effect of impurity scattering at low temperatures

T. Okada<sup>1</sup>, K. Kawashima<sup>1</sup>, M. Yamada<sup>2,3,4</sup>, T. Naito<sup>1</sup>, Y. Wagatsuma<sup>5</sup>, K. Sawano<sup>5</sup>, and K. Hamaya<sup>2,1,4</sup>  
 (<sup>1</sup>Grad. Sch. Eng. Sci., Osaka Univ., <sup>2</sup>CSRN, Osaka Univ., <sup>3</sup>JST PRESTO, <sup>4</sup>OTRI, Osaka Univ., <sup>5</sup>Tokyo City Univ.)

最近我々は、Ge と同様の伝導帯バンド構造を有する歪み  $n\text{-Si}_{0.1}\text{Ge}_{0.9}$  が、 $n\text{-Ge}$  を超えるスピン拡散長( $\lambda$ )およびスピン緩和時間( $\tau$ )を示すことを明らかにした[1]. これは、歪み印加による伝導帯バレー分裂( $\Delta E$ )に起因する移動度の向上およびバレー間スピン反転散乱の減少によるものと考えられる[2]. 歪み  $n\text{-Si}_{0.1}\text{Ge}_{0.9}(111)$  の  $\Delta E$  は、理論的に 55-90 meV と予測されているが[2,3], 実験的な検証は行われていない. 本研究では、異なるキャリア濃度( $n$ )を有する歪み  $n\text{-Si}_{0.1}\text{Ge}_{0.9}$  において低温でのスピン輸送特性を調べ、 $\Delta E$  の値を実験的に考察した.

キャリア濃度の異なる歪み  $n\text{-Si}_{0.1}\text{Ge}_{0.9}$  チャネルを用いた横型スピンバルブ素子を作製し、スピン輸送測定を行った. 非局所スピン信号の電極間距離依存性からそれぞれの濃度に対して  $\lambda$  を見積もり、ホール効果測定により得られた拡散係数( $D$ )を用いて  $\tau$  を計算した. Fig. 1 に、 $n \sim 1 \times 10^{18}$ ,  $2 \times 10^{18}$ ,  $5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  の歪み  $n\text{-Si}_{0.1}\text{Ge}_{0.9}$  と  $n \sim 5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  の  $n\text{-Ge}$  における  $\tau$  の温度( $T$ )依存性を示す.  $n \sim 5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  の歪み  $n\text{-Si}_{0.1}\text{Ge}_{0.9}$  (赤)と  $n\text{-Ge}$  (黒)の結果を比較すると、200 K 以下の低温において歪み  $n\text{-Si}_{0.1}\text{Ge}_{0.9}$  の  $\tau$  は顕著に増大している. これは Fig. 2 に示すように、歪みによる伝導帯バレー分裂によってスピン反転散乱が抑制されているためである[1,4]. 200 K 以下で歪みの効果が見られていることから、歪み  $n\text{-Si}_{0.1}\text{Ge}_{0.9}$  の  $\Delta E$  は、 $n \sim 5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  における 200 K でのフェルミ準位( $E_F$ )と熱エネルギー( $k_B T$ )の和( $\sim 82 \text{ meV}$ )より大きいと推定される. さらに  $n \sim 5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  の歪み  $n\text{-Si}_{0.1}\text{Ge}_{0.9}$  において、すでにバレー間スピン反転散乱が抑制されているにもかかわらず、より低濃度の  $n \sim 1 \times 10^{18}$  (青),  $2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  (緑)の歪み  $n\text{-Si}_{0.1}\text{Ge}_{0.9}$  において 50 K 以下でさらに  $\tau$  が顕著に増大している. これは、歪み印加によるバレー間スピン反転散乱抑制後も、バレー内での不純物誘起スピン反転散乱が存在することを示唆している.

本研究の一部は、日本学術振興会科研費(No. 19H05616, No. 19H02175, No. 21H05000), JST さきがけ(No. JPMJPR20BA), スピントロニクス学術研究基盤と連携ネットワーク (Spin-RNJ), 文部科学省 X-NICS (No. JPJ011438)の支援を受けて行われた.

## 参考文献

- [1] T. Naito *et al.*, Phys. Rev. Applied **18**, 024005 (2022).
- [2] J.-M. Tang *et al.*, Phys. Rev. B **85**, 045202 (2012); Y. Song *et al.*, Phys. Rev. Lett. **113**, 167201 (2014).
- [3] Q. M. Ma and K. L. Wang, Appl. Phys. Lett. **58**, 1184 (1991); R. Vrijen *et al.*, Phys. Rev. A **62**, 012306 (2000).
- [4] T. Naito *et al.*, Phys. Rev. Applied **13**, 054025 (2020).

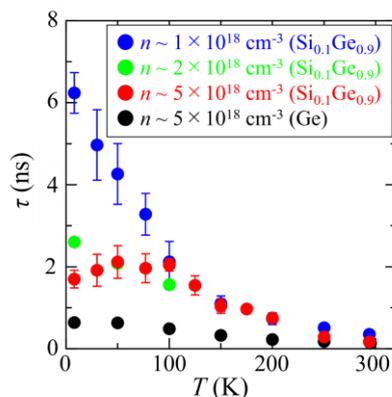


Fig. 1.  $T$  dependence of  $\tau$  for the strained  $n\text{-Si}_{0.1}\text{Ge}_{0.9}$  with  $n \sim 1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  (blue),  $n \sim 2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  (green), and  $n \sim 5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  (red), together with that for  $n\text{-Ge}$  with  $n \sim 5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  (black).

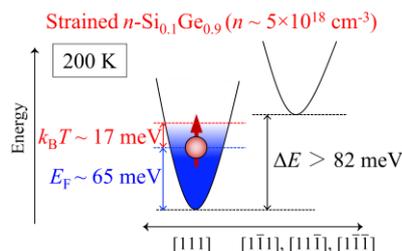


Fig. 2. Schematic of the conduction band valleys in the strained  $n\text{-Si}_{0.1}\text{Ge}_{0.9}$  with  $n \sim 5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  at 200 K.

# 単結晶ダイヤモンドを応用した横型スピバルブ素子における導電性ナノカーボンオーミック電極の成膜とスピン注入の評価

綿谷 敦志<sup>1</sup>, 牧 謙汰<sup>1</sup>, Sreenath Mylo Valappil<sup>1</sup>, 堺 研一郎<sup>2</sup>, 大曲 新矢<sup>3</sup>, 吉武 剛<sup>1</sup>  
(九大<sup>1</sup>, 久留米高専<sup>2</sup>, 産総研<sup>3</sup>)

Conductive Nanocarbon Ohmic Electrode and Evaluation of Spin Injection  
into Spin Valve Devices Utilizing Single Crystal Diamond  
A.Watatani<sup>1</sup>, K.Maki<sup>1</sup>, S.M.Valappil<sup>1</sup>, K.Sakai<sup>2</sup>, S.Oomagari<sup>3</sup>, T.Yoshitake<sup>1</sup>  
(Kyushu Univ.<sup>1</sup>, Nit, Kurume College.<sup>2</sup>, AIST<sup>3</sup>)

## 研究背景

半導体パワーデバイスにおいて、単結晶ダイヤモンドは高い絶縁耐力と広いバンドギャップを持ち、SiCよりも優れた材料として注目されている。スピントランジスタは、来のトランジスタに比べて小型化の限界を克服するため、ソースやドレイン電極に強磁性体材料を使用するデバイスである。材料ではスピン拡散長が長くなる傾向があり、結晶ダイヤモンドは炭素原子で構成されており、最も原子番号が小さいため、長いスピン拡散長が期待される。しかし、単結晶ダイヤモンドは広いバンドギャップと負の電子親和力のため、オーミック接触の形成が難しいという課題がある。本研究では、超ナノ微結晶ダイヤモンド膜とフォトリソグラフィ法を用いて、単結晶ダイヤモンドを中間層として組み込んだ横型スピバルブ素子を作製、その評価を行った。

## 実験方法

まず単結晶ダイヤモンド基板を有機洗浄し、アークプラズマ蒸着法により導電性ナノカーボンオーミック電極（膜厚：10nm）を成膜した。その後、フォトリソグラフィ法を用いてレジストパターンを形成し、対向ターゲット式直流スパッタリング法を用いて強磁性電極Fe（膜厚：50nm）を成膜した。さらに、酸素プラズマの影響を抑えるためにPd膜（膜厚：5nm）を成膜し、リフトオフを行い、電極間に10 $\mu$ mのギャップを形成した。磁気抵抗曲線の測定は、局所スピバルブ効果測定回路を使用し、4端子プローブを用いて室温で行った。

## 結果と考察

Fig. 2に異なるBドーブ濃度 (10<sup>22</sup> cm<sup>-3</sup>) を有する単結晶ダイヤモンド基板を用いたスピバルブ素子に導電性ナノカーボンオーミック電極を成膜した試料の磁気抵抗曲線を示す。明瞭なスピバルブ効果が観測されなかったが、接触抵抗の低減と磁化反転による抵抗値の変化が確認された。これは、プロセスの複雑化やPd膜、導電性ナノカーボンオーミック電極の成膜によるFe電極の保持力変化が磁化反転機能に影響を与えたと推測される。

## 参考文献

- 1) K. Takahashi et al., Jpn. J. Appl. Phys. 49, 110001 (2010).
- 2) M. Ohishi, et. al., Jpn. J. Appl. Phys. 46, L605 (2007).

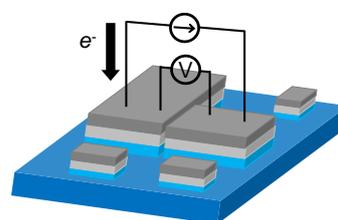


Fig. 1 electrical circuit for measuring local spin valve signal.

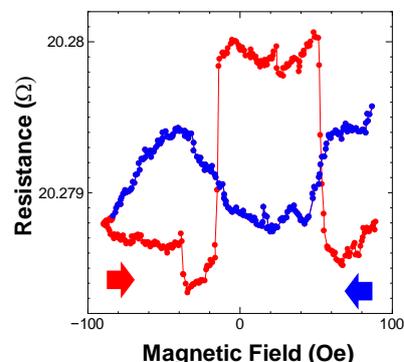


Fig. 2 magnetoresistance curves of spinvalve junctions  
B Concentration: 10<sup>22</sup> cm<sup>-3</sup>