

Negative Spin Polarization in Mn_2VAl Heusler Alloy Thin Films: Effect of Composition on Atomic Order and Electronic Structure

H. Suto^{1*}, V. Barwal¹, K. Masuda¹, K. Simalaotao¹, T. Sasaki¹, Y. Miura¹,
H. Tajiri², L.S.R. Kumara², T. Koganezawa², and Y. Sakuraba¹

¹Research Center for Magnetic and Spintronic Materials, National Institute for Materials Science (NIMS), Tsukuba, 305-0047, Japan

²Japan Synchrotron Radiation Research Institute (JASRI), Sayo, 679-5198, Japan

Introduction

Materials with negative spin polarization generate a spin-polarized current whose spin momentum direction is opposite to the net magnetization direction [1-4]. Such materials are of growing technological interest as they can implement new structures and operation of spintronic devices beyond the limitations of conventional positive spin polarization materials [5]. Mn-based ferrimagnetic Heusler alloys Mn_2VAl (MVA) are expected to possess high negative spin polarization originating from its electronic band structure with a gap in the majority-spin state. We investigated sputter-deposited MVA thin films by examining the effect of composition on atomic ordering and by evaluating magnetoresistance (MR) and spin-transfer torque effects in current-perpendicular-to-plane giant magnetoresistance (CPP-GMR) devices.

Results

Figure 1 shows the saturation magnetization (M_s) of single-layer MVA samples deposited at 600°C with various compositions. Single-phase MVA with $B2$ and $L2_1$ ordering was formed in all the compositions, as revealed by XRD (data not shown). The M_s ratio, which is defined as the experimental M_s normalized by the Slater-Pauling value, is shown on the right vertical axis. $\text{Mn}_{2.2}\text{V}_{0.8}\text{Al}$, $\text{Mn}_2\text{V}_{0.8}\text{Al}_{1.2}$, and $\text{Mn}_{2.2}\text{V}_{0.6}\text{Al}_{1.2}$ showed higher M_s ratio than the stoichiometric composition. The higher M_s ratio indicates the improved ordering in the off-stoichiometric compositions, as M_s of MVA is sensitive to disorders. Figure 2 shows MR curves measured in CPP-GMR devices consisting of MVA (10 nm)/Ag (5 nm)/CoFe (7 nm) for the four MVA compositions selected with respect to the higher M_s ratio. The MVA layer was deposited at 500°C. Negative MR was observed in all the composition indicating negative spin polarization of MVA. The amplitude of negative MR was enhanced by using off-stoichiometric compositions, indicating that these compositions increased the negative spin polarization of MVA through the improved ordering. A maximum negative MR ratio of -4.4% at room temperature was observed for the $\text{Mn}_{2.2}\text{V}_{0.6}\text{Al}_{1.2}$ sample, which is currently the largest reported negative MR in pseudo-spin-valve CPP-GMR devices, indicating very high negative spin polarization of MVA. In the presentation, spin-transfer torque induced via spin injection from MVA will be also discussed.

This work was partially supported by Advanced Storage Research Consortium (ASRC), JSPS KAKENHI (grant numbers 21K20434, 23K03934).

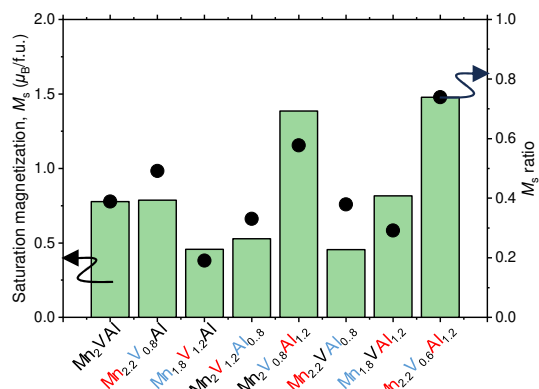


Fig. 1. Composition dependence of M_s and M_s ratio for the MVA samples deposited at 600°C.

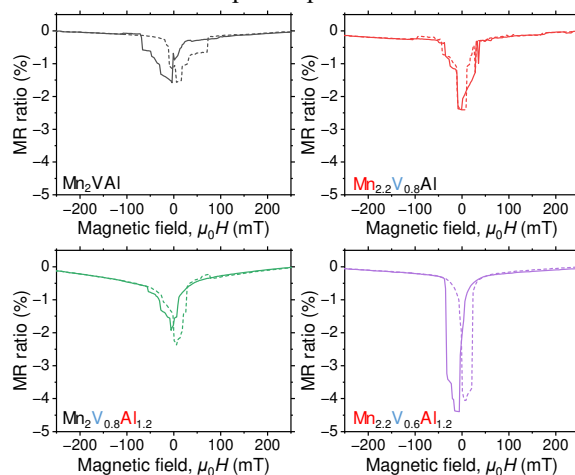


Fig. 2. MR curves measured in CPP-GMR devices consisting of MVA (10 nm)/Ag (5 nm)/CoFe (7 nm).

- [1] C. Vouille, et al., "Microscopic mechanisms of giant magnetoresistance," *Phys. Rev. B* **60**, 6710 (1999).
- [2] H. Suto, et al., "Evaluation of spin-transfer-torque efficiency using magnetization reversal against a magnetic field: comparison of FeCr with negative spin polarization and NiFe," *Appl. Phys. Express* **16**, 013003 (2023).
- [3] C. Klewe, et al., "Negative spin polarization of Mn_2VGa probed by tunnel magnetoresistance," *J. Phys. Condens. Matter* **25**, 76001 (2013).
- [4] H. Suto, et al., "Negative spin polarization of Mn_2VGa Heusler alloy thin films studied in current-perpendicular-to-plane giant magnetoresistance devices," *J. Appl. Phys.* **135**, 203901 (2024).
- [5] M. Takagishi, et al., "Design Concept of MAS Effect Dominant MAMR Head and Numerical Study," *IEEE Trans. Magn.* **57**, 3300106 (2021).

高スピン偏極 Co_2MnGe ホイスラー合金の Mn-rich 組成における ハイスループット XMCD 解析

○山崎 貴大¹, Lira Foggianto Alexandre¹, 遠山 諒², 福 健太郎¹, 山神 光平³,
大沢 仁志³, 大河内 拓雄^{3,4}, 岩崎 悠真², 桜庭 裕弥², 小嗣 真人¹
(東京理科大学¹, NIMS², JASRI³, 兵庫県立大学⁴)

XMCD Analysis of Mn-Rich High Spin-Polarized Co_2MnGe Heusler Alloy

○Takahiro Yamazaki¹, Alexandre Lira Foggianto¹, Ryo Toyama², Kentaro Fuku¹, Kohei Yamagami³,
Hitoshi Ohsawa³, Takuo Ohkochi^{3,4}, Yuma Iwasaki², Yuya Sakuraba², Masato Kotsugi¹
(Tokyo University of Science¹, NIMS², JASRI³, University of Hyogo⁴)

はじめに デジタルデータの爆発的な増加に伴い、HDD の高記録密度化が急務となっている。電流面直型巨大磁気抵抗 (CPP-GMR) 素子は、トンネル磁気抵抗 (TMR) 素子に代わる次世代 HDD リードヘッドとして大きく注目されている。しかし、従来の強磁性材料では MR 比が不十分であり、さらなる MR 比向上のためには高スピン偏極率を持つ材料探索が重要である^[1]。本研究では、機械学習を用いた仮想空間材料探索の予測結果に基づき、ハーフメタルホイスラー合金 Co_2MnGe を研究対象とした。特に、Mn-rich 領域でのより高いスピン偏極率を有する材料探索を目的とし、コンビナトリアル手法を用いて組成傾斜膜を作製した。さらに、軟 X 線磁気円二色性 (XMCD) を利用して電子・磁気状態を解析し、高スピン偏極率の発現メカニズムの解明を目指した。

実験方法 マグネトロンスパッタ装置を用いて MgO 基板上に Co-Mn-Ge の組成傾斜膜を成膜した。X 線構造解析により広い組成範囲で L_{21} 規則構造を確認した。SPRING-8 の BL25SU ビームラインで Co および Mn の $\text{L}_{2,3}$ 吸収端で軟 X 線磁気円二色性 (XMCD) 測定を行い、各元素の磁気モーメントを評価した。異方性磁気抵抗 (AMR) 測定では、デバイス加工後に各組成の AMR 比を評価し、第一原理計算で電子密度状態とスピン偏極率の解析を実施した。

結果・考察 XMCD 測定および AMR 測定の結果、 Co_2MnGe 合金における Co 元素のスピン磁気モーメントの増大が AMR 比の増大と相関があることが示唆された。特に、Mn-rich 領域で観察された高い負の AMR 比は、 L_{21} 規則構造を持つ Co_2MnGe 合金の高い飽和磁化に起因していると考えられる。さらに、負の AMR 比が大きいことから、Mn-rich 領域での高いスピン偏極率が示唆される。この結果は、第一原理計算の結果とも一致していることが示された。このことから、高いスピン偏極率の発現が実験的および理論的に予測可能であることが明らかとなった。

謝辞 本研究は、JST-CREST「科学者の能力を拡張する階層的自律探索手法による新材料の創製」(研究代表者：岩崎悠真、課題番号：JPMJCR2101)の支援によって実施されました。

参考文献 [1] S. Tavares et al., Progress in Materials Science, 132 (2023) 101017.

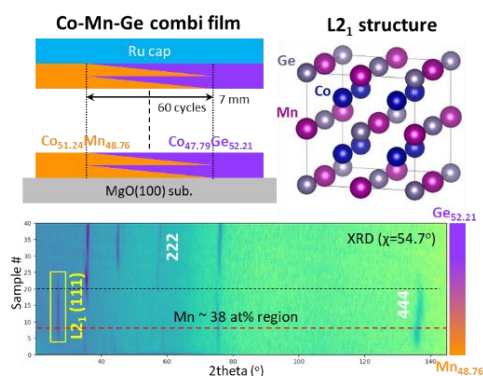


Fig. 1 Co-Mn-Ge compositional-spread thin films and the color map of XRD structure analysis.

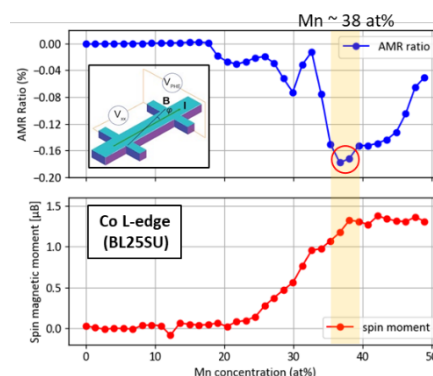


Fig. 2 Mn concentration dependence on AMR ratio and Co spin magnetic moment.

MgO(111)単結晶基板上に形成した エピタキシャル Mn₄N(111)薄膜の構造と磁気特性

桑山亮太¹・今村光佑¹・磯上慎二²・大竹充¹
(¹横浜国大, ²物材機構)

Structural and Magnetic Properties of Mn₄N(111) Epitaxial Thin Films Formed on MgO(111) Single-Crystal Substrates
Ryota Kuwayama¹, Kosuke Imamura¹, Shinji Isogami², and Mitsuru Ohtake¹
(¹Yokohama Nat. Univ., ²NIMS)

はじめに 近年、反強磁性の Mn₃Sn¹⁾や Mn₃GaN²⁾などのノンコリニアな磁気構造を持つ Mn 系化合物薄膜は、巨大な異常ホール効果を示すことや小さな電流密度で磁化反転が可能であることからスピントロニクス応用に向けて研究されている。また、フェリ磁性の Mn₄N は一般的にはコリニアな磁気構造³⁾であるが、ノンコリニアな磁気構造の存在が理論計算^{4,5)}や(111)面配向させた薄膜の実験⁶⁾で示唆されている。これまで、様々な基板を用いた(111)面配向の Mn₄N 薄膜の形成報告例^{6,7)}が存在するが、多くは面直方向に対して互いに 180°回転した方位関係を持つ双晶で形成されており、単結晶で形成した報告は殆どない。基本構造特性と磁気特性を調べるためには、単結晶で形成することが重要である。そこで、本研究では、反応性スパッタリング法により MgO(111)基板上に基板温度などを変化させることで、Mn₄N 薄膜をエピタキシャル成長させ、構造と磁気特性を調べた。

実験方法 製膜には超高真空 RF マグネトロン・スパッタリング装置を用いた。全圧が 0.67 Pa となるように調整した Ar と N₂の混合ガス雰囲気下で Mn ターゲットをスパッタすることにより MgO(111)基板上に Mn₄N 薄膜を形成した。このとき、N₂分圧比は 2.5%で一定とし、基板温度は 200~600 °C の間で変化させた。構造評価には RHEED, XRD, XPS, AFM, 磁気特性評価には VSM および異常ホール効果測定装置を用いた。

実験結果 Fig. 1(a)に 200~600 °C で形成した Mn₄N 膜の XRD パターンを示す。いずれも(111)面配向した Mn₄N 膜が形成されていることが分かった。Fig. 1(b)に RHEED パターンを示す。200~400 °C で形成した膜に対しては、2つの(111)バリエーションからの回折パターンが重畳して現れているのに対して、600 °C で形成した膜では、単一のパターンとなっていることから単結晶膜であることが分かる。結晶方位関係は A: Mn₄N(111)[110] || MgO(111)[110]および B: Mn₄N(111)[110] || MgO(111)[110]であり、単結晶膜は A の方位関係のみで結晶成長が起こっていた。また、Fig. 2 に 400 および 600 °C で形成した Mn₄N 膜の 111 反射に対して極点図形を測定した結果を示す。RHEED と同様な結果が極点図形測定によっても確かめられた。当日は、異常ホール効果測定の結果などを踏まえて総合的に議論する。

- 1) T. Higo, et al.: *Appl. Phys. Lett.*, **113**, 202402 (2018).
- 2) T. Hajiri, et al.: *Appl. Phys. Lett.*, **115**, 052403 (2019).
- 3) S. Isogami, et al.: *Adv. Electron. Mater.*, **9**, 2200515 (2023).
- 4) M. Uhl, et al.: *Phys. Rev. B*, **55**, 2995 (1997).
- 5) D. Fruchart, et al.: *J. Phys. F: Met. Phys.*, **9**, 2431 (1979).
- 6) S. Isogami, et al.: *AIP. Adv.*, **11**, 105314 (2021).
- 7) Z. Zhang, et al.: *AIP. Adv.*, **10**, 015238 (2022).

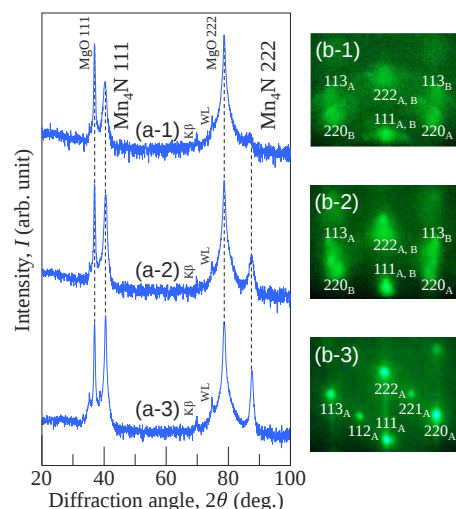


Fig. 1 (a-1)–(a-3) out-of-plane XRD and (b-1)–(b-3) RHEED patterns of Mn₄N films formed on MgO(111) substrates at (a-1, b-1) 200 °C, (a-2, b-2) 400 °C, (a-3, b-3) 600 °C.

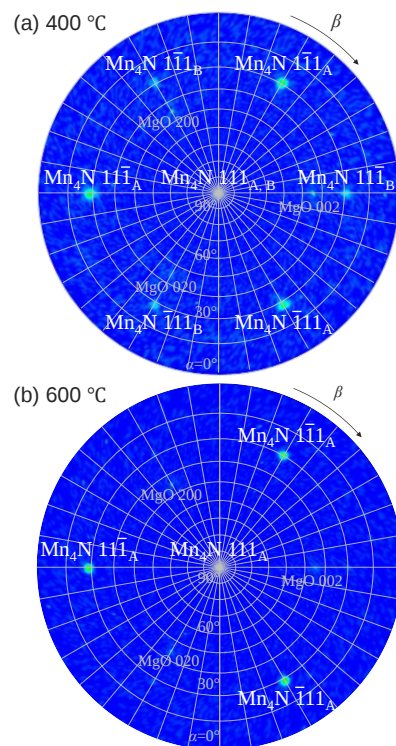


Fig. 2 Pole-figure XRD patterns measured for Mn₄N films formed on MgO(111) substrates at (a) 400 and (b) 600 °C.

Mn/Co 垂直磁化膜/n-GaAs ヘテロ接合を用いた 横型スピバルブ素子の評価

小川峰登、奈良晃太郎、山ノ内路彦、植村哲也
(北海道大)

Characterization of four-terminal nonlocal signals in lateral spin valves
consisting of perpendicularly magnetized Mn/Co/n-GaAs junctions
M. Ogawa, K. Nara, M. Yamanouchi, T. Uemura
(Hokkaido Univ.)

はじめに

スピントランジスタやスピン LED のようなスピンの機能を利用した半導体デバイスの実現には、垂直磁化膜をスピン源とした半導体への面直方向スピンの注入、輸送、検出技術が必要とする。近年、Co や CoFe をはじめとする Co 系強磁性体と δ -Mn 反強磁性体を積層させることにより垂直磁気異方性が誘起されることが報告されている[1]。本研究では n 型 GaAs 上に成長させた Mn/Co 垂直磁化膜を横型スピン注入素子に加工し、スピン注入を示唆するスピバルブ型の磁気抵抗効果を得たので報告する。

実験方法

GaAs(001)基板上に表面側から Ru(2 nm)/Mn(1.7 nm)/Co(1.0 nm)/n⁺-GaAs (15 nm, $n = 7 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$)/n⁺←n⁻ GaAs transition layer (15 nm)/n⁻-GaAs (2000 nm, $n = 5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$)/un-doped GaAs(250 nm)構造を作製した。それを EB リソグラフィと Ar イオンミリングを用いてホールバー構造および非局所四端子デバイスに加工した。Mn/Co 二層膜の磁気特性はホールバー構造を用いて異常ホール効果(AHE)測定によって評価し、Mn/Co/GaAs ヘテロ構造に生じる、半導体中でのスピン蓄積、輸送に由来する磁気抵抗は非局所四端子法によって評価した。

実験結果

図 1 にホールバーの 77 K における横抵抗 R_{yx} の膜面垂直方向の外部磁場 $\mu_0 H_z$ 依存性を示す。ここで、 μ_0 は真空の透磁率である。ヒステリシスカーブが観測され、Mn/Co 二層膜が明瞭な垂直磁気異方性を有することが確認された。また、77 K における Mn/Co 二層膜の保磁力はおよそ 0.41 T と見積もられた。

図 2 に横型スピバルブ素子の 77 K における非局所抵抗 R_{NL} の $\mu_0 H_z$ 依存性を示す。GaAs の磁気抵抗効果または基板の傾きによって生ずる磁場の面内成分によるスピン緩和を排除するため、掃引する外部磁場を印加したのちに磁場をゼロにした状態で R_{NL} を測定した。 $|\mu_0 H_z| \approx 0.41 \text{ T}$ においてスピバルブ型の磁気抵抗変化が観察され、このことは Mn/Co 二層膜から GaAs に面直スピンの注入、輸送、検出されたことを示唆している。

参考文献

1) R. K. Han *et al.*, Phys. Rev. Applied **19**, 024033 (2023).

謝辞

本研究の一部は科研費(22K18961), 文科省 X-NICS (JPJ011438), 文科省 ARIM (JPMXP1224HK0020), JST CREST (JPMJCR22C2), JST SPRING (JPMJSP2119)の支援を受けたものである。

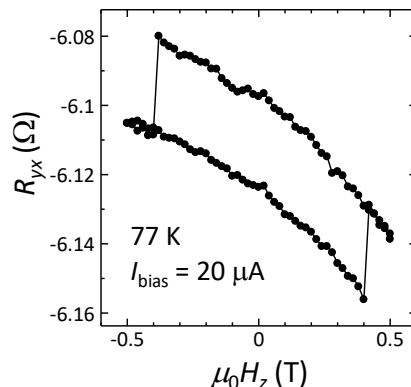


図 1. 77 K における R_{yx} の $\mu_0 H_z$ 依存性

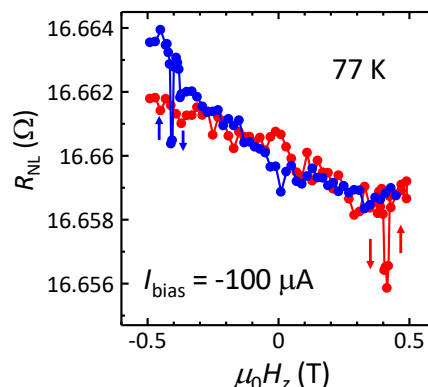


図 2. 77 K における R_{NL} の $\mu_0 H_z$ 依存性

Gd₃Ga₅O₁₂(111)基板上に形成した Y₃Fe₅O₁₂ 単結晶薄膜の構造と磁気特性に及ぼすスパッタ条件の影響

横山琳咲・今村光佑・関口康爾・大竹充
(横浜国大)

Influence of Sputtering Condition on the Structural and Magnetic Properties
of Single-Crystal Y₃Fe₅O₁₂ Thin Film Formed on Gd₃Ga₅O₁₂(111) Substrate

Risa Yokoyama, Kosuke Imamura, Koji Sekiguchi, and Mitsuru Ohtake.

(Yokohama Nat. Univ.)

はじめに 希土類鉄ガーネットは鉱物の柘榴石と同じ結晶構造を持ち、R₃Fe₅O₁₂ (R: 希土類元素) の組成を有する安定的な化合物である。スピントロニクス分野では、Y₃Fe₅O₁₂ (YIG) は小さなダンピング定数¹⁾を示すことから、スピン波の伝搬性能に優れ、古くから注目されている材料のひとつである。この応用目的では、YIG は薄膜として形成され、非晶質 Y-Fe-O 膜を形成後に熱処理により結晶化させる方法が用いられている。しかしながら、熱処理プロセスとそれに伴う核生成機構に基づいて、結晶成長を制御する試みは殆ど行われていなかった。そこで、著者らは、熱処理プロセスの検討を行い、急加熱により核生成サイトが増加し、その結果、粗大化が起こりづらく、平坦表面が実現され易いこと、また、徐冷することにより、格子歪が低減されることを報告した^{2),3)}。YIG 薄膜の構造や磁気特性は熱処理条件だけでなく、熱処理前の非晶質膜の状態によっても変化する可能性がある。そこで本研究では、Ar ガス圧力、ターゲット-基板間距離、RF/DC 投入電力量といったスパッタ条件を系統的に変化させることにより非晶質 Y-Fe-O 薄膜を作製し、急加熱および徐冷の熱処理を施すことにより結晶化させた。そして、構造と磁気特性を調べた。

実験方法 超高真空マグネトロン・スパッタリング装置を用いて Gd₃Ga₅O₁₂(111)単結晶基板上に室温で 70 nm 厚の非晶質 Y-Fe-O 膜を作製した。その後、大気中で熱処理を行った。このとき、室温から+1500 °C/h の速度で 900 °C まで加熱し、5 分間保持したのち、-100 °C/h の速度で室温まで冷却させた。構造評価には Ge2 結晶により Cu-Kα₁ のみに単色化した線源を利用した XRD、表面形態観察には AFM、磁化特性評価には VSM を用いた。

実験結果 はじめに、Ar ガス圧力を 0.67 から 4.0 Pa の範囲で変化させて試料を作製した。Fig. 1 に XRD パターンを示す。Ar ガス圧力の上昇に伴い、YIG 888 反射は低角側へシフトした。これは YIG の格子定数の増加を示しており、Ar ガス圧力を大きくすることで酸素空孔の発生⁴⁾が抑制された可能性が考えられた。Fig. 2 に AFM 像を示す。Ar ガス圧力が大きいほど表面粗さは小さくなり、島状起伏は減少した。0.67 Pa の試料に観察された起伏は、基板に由来する<111>方向とガーネット構造の優先成長方向である<110>方向の 2 方向への結晶成長によって三角形に形成されたものである。Fig. 3 に磁化曲線を示す。Ar ガス圧力が大きい試料ほど飽和磁化 (M_s) が増加することが分かった。最も大きい M_s は Ar ガス圧力を 4.0 Pa とした試料の 139 emu/cm³であった。LPE 法で作製したバルク YIG における M_s⁵⁾ を考慮すると、Ar ガス圧力の上昇によって YIG 薄膜の磁気特性が向上することが明らかになった。当日はその他のスパッタ条件による効果も併せて報告する。

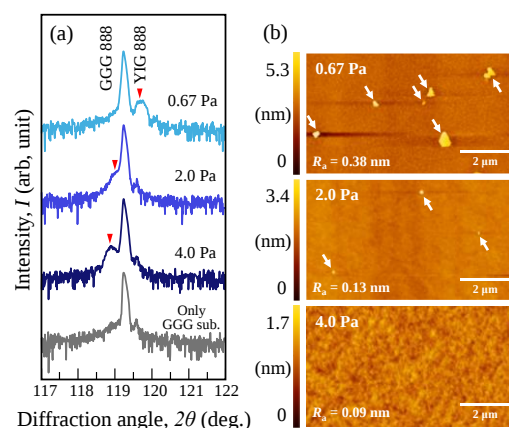


Fig. 1 (a) XRD patterns and (b) AFM images.

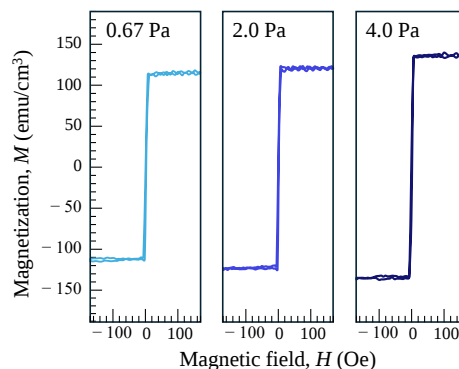


Fig. 2 In-plane magnetization curves.

1) H. Chang, et al.: *IEEE Magn. Lett.*, **5**, 6700104 (2014).

2) 横山琳咲, 今村光佑, 林龍之介, 松井拓磨, 関口康爾, 大竹充:
第 47 回日本磁気学会学術講演会, 27pC-8 (2023).

3) R. Yokoyama, K. Imamura, K. Sekiguchi, and M. Ohtake: *10th International Symposium on Advanced Functional Materials* (2024).

4) S. A. Manuilov, R. Fors, S. I. Khartsev, and A. M. Grishin: *J. Appl. Phys.*, **105**, 3 (2009).

5) B. Bhoi, N. Venkataramani, Ramnath P. R. C. Aiyar, S. Prasad, M. Kostylev: *J. Appl. Phys.*, **123**, 20 (2018).