

純スピンの流注入によるホイスラー合金のダンピング変調

沖宗一郎¹, 河野慎¹, 山田晋也¹, 金島岳¹, 能崎幸雄^{2,3}, 浜屋宏平^{1,3}

(¹阪大基礎工, ²慶大理工, ³JST-CREST)

Control of the effective damping constant for Heusler alloys by pure spin current

S. Oki¹, M. Kawano¹, S. Yamada¹, T. Kanashima¹, Y. Nozaki^{2,3}, K. Hamaya^{1,3}

(¹Osaka Univ., ²Keio Univ., ³JST-CREST)

【はじめに】

近年、マイクロ波アシスト磁化反転の応用として、磁性体への純スピン流注入を利用した実効ダンピング定数の変調が報告されている[1,2]。一方、これまで我々は Si 基板上に作製した $L2_1\text{-Co}_2\text{FeSi}$ (CFS)や $D0_3\text{-Fe}_3\text{Si}$ (FS)を横型スピバルブ素子へ加工し、高効率に純スピン流を生成・検出する技術を確認してきた[3,4]。本研究では、CFS から高効率に生成された純スピン流を FS へ注入し、FS の実効ダンピング定数を変調する。

【実験手法】

MBE を用いて Si 基板上に作製した膜厚 10nm/15nm の CFS/FS 薄膜を[4]、電子線描画と Ar^+ ミリングを用いて CFS/FS および FS 細線に加工し、100nm 膜厚のスピ流伝送路及びコプレーナ線路(CSW)を Cu 蒸着により作製した[2-4](Fig.1)。FMR スペクトルは Fig.1(a)の端子配置でマイクロ波を CSW に加えながら細線長軸方向から $\theta=10^\circ$ の方向に外部磁場 H_{ex} を掃引し、整流効果によって細線両端に生じる直流電圧により検出した。純スピン流は Fig.1(b)の端子配置で細線長軸方向に外部磁場 H_{ex} を掃引し、交流電圧を印加してロックインアンプを用いて非局所電圧によって検出した。

【実験結果】

Fig.2 に 15dBm のマイクロ波における FMR スペクトルの周波数依存性を示す。キッテル式による解析から飽和磁化 $M_s=871 \text{ emu/cm}^3$ と見積もられ、FMR 検出電極が高品質な FS[5]($\sim 858 \text{ emu/cm}^3$)であることが確認された。Fig.3 に CFS を表面とする CFS/FS 電極から FS 電極への純スピン流注入の結果を示す。注入・検出電極の磁化配置に対応した明瞭なヒステリシスを有する $\Delta R_s=2.6 \text{ m}\Omega$ のスピ信号が観測された。さらに直流電流を印加し、純スピン流を注入した状態で FMR スペクトルの測定を行ったところ[1,2]、印加電流に応じて FS の実効ダンピング定数が変化することが確認され、変調効率は Py[2]より大きいことが判明した。講演ではダンピング定数の変調とその効率について、詳細に報告する。

本研究の一部は JST CREST、科研費基盤 A(No.25246020)、新学術領域研究ナノスピ変換科学(No.26103003)の支援を受けた。沖および河野は日本学術振興会の支援を受けた。

参考文献

- [1] L. Xue *et al.*, Phys. Rev. Lett. **108**, 147201 (2012).
- [2] Y. Nozaki *et al.*, Appl. Phys. Exp. **8**, 043001 (2015).
- [3] K. Hamaya *et al.*, Phys. Rev. B **85**, 100104(R) (2012).
- [4] S. Oki *et al.*, Appl. Phys. Lett. **103**, 212402 (2013).
- [5] K. Hamaya *et al.*, Phys. Rev. B **83**, 144911 (2011).

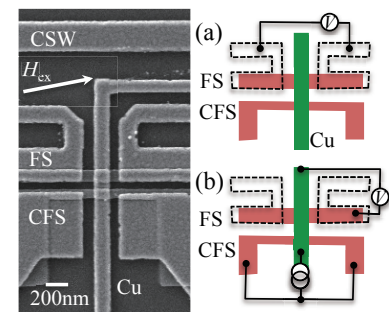


Fig.1 SEM image of the device used and schematic images of the terminal configurations.

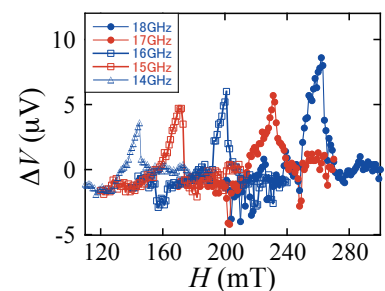


Fig.2 FMR spectra of FS for various frequencies.

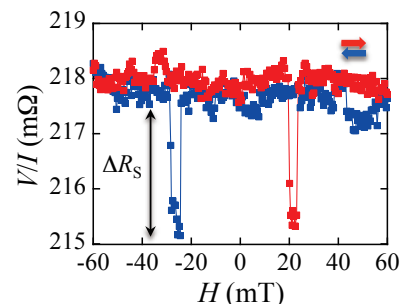


Fig.3 Nonlocal resistance at RT.

Effect of off-stoichiometry on half-metallicity of quaternary Heusler alloy $\text{Co}_2(\text{Mn},\text{Fe})\text{Si}$ investigated through saturation magnetization and tunneling magnetoresistance

Kidist Moges,¹ Yusuke Honda,¹ Hong-xi Liu,¹ Bing Hu,¹ Tetsuya Uemura,¹ Yoshio Miura,² Masafumi Shirai,³ and Masafumi Yamamoto¹
¹Hokkaido University, ²Kyoto Institute of Technology, ³Tohoku University

We have recently investigated the effect of off-stoichiometry on the tunneling magnetoresistance (TMR) of the quaternary Heusler alloy $\text{Co}_2(\text{Mn},\text{Fe})\text{Si}$ (CMFS)-based magnetic tunnel junctions (MTJs) and showed that the (Mn+Fe)-rich composition is critical to suppressing harmful $\text{Co}_{\text{Mn/Fe}}$ antisites and obtaining half-metallicity [1]. Furthermore, we demonstrated giant TMR ratios of 2610% at 4.2 K and 429% at 290 K for MTJs having Mn-rich, lightly Fe-doped CMFS electrodes [1]. The purpose of the present study was to clarify the origin of the giant TMR ratio of MTJs with Mn-rich, lightly Fe-doped CMFS electrodes. To do this, we experimentally investigated the film composition dependence of the saturation magnetization per formula unit, μ_s , of CMFS films with various compositions of α' and β' in $\text{Co}_2(\text{Mn}_{\alpha'}\text{Fe}_{\beta'})\text{Si}_{0.84}$.

Figure 1 shows the film composition dependence of the experimental μ_s of $\text{Co}_2(\text{Mn}_{\alpha'}\text{Fe}_{\beta'})\text{Si}_{0.84}$ and $\text{Co}_2\text{Mn}_{1.40}\text{Si}_{0.84}$ films along with the half-metallic Slater-Pauling values ($Z_{\uparrow-24}$) and the theoretical total spin magnetic moment/f.u., m_{spin} , calculated using the antisite-based site-specific formula unit (SSFU) composition model [1,2]. Although the experimental μ_s was lower than both $Z_{\uparrow-24}$ and theoretical m_{spin} for Mn-rich $\text{Co}_2\text{Mn}_{1.40}\text{Si}_{0.84}$, its value for $\text{Co}_2\text{Mn}_{1.24}\text{Fe}_{0.16}\text{Si}_{0.84}$ in which a small amount of Mn was replaced by Fe for $\text{Co}_2\text{Mn}_{1.40}\text{Si}_{0.84}$ got almost close to the half-metallic $Z_{\uparrow-24}$. Figure 2 shows how the TMR ratio at 4.2 K of MTJs with Mn-rich, lightly Fe-doped $\text{Co}_2\text{Mn}_{\alpha'}\text{Fe}_{0.16}\text{Si}_{0.84}$ electrodes depends on α' ranging from $\alpha' = 1.14$ ($\delta = \alpha' + \beta' = 1.30$) to $\alpha' = 1.24$ ($\delta = 1.40$) along with the dependence of the TMR ratio for CMS MTJs with $\text{Co}_2\text{Mn}_{\alpha}\text{Si}_{0.84}$ electrodes on the Mn composition α ranging from $\alpha = 0.73$ to 1.40. The drop in the TMR of the CMS MTJ with Mn-rich $\alpha = 1.40$ and the contrasted further increase in the TMR of CMFS MTJs with increasing δ from $\alpha = 1.30$ to 1.40 with a small amount of β' of 0.16 was consistent with the dependence of μ_s shown in Fig. 1. The theoretical m_{spin} values well explained the experimental μ_s values except Mn-rich $\text{Co}_2\text{Mn}_{1.40}\text{Si}_{0.84}$ ($\alpha = 1.40$ CMS). This discrepancy can be attributed to the assumed nominal half-metallic SSFU composition for Mn-rich $\alpha = 1.40$ CMS. Thus, the origin of the giant TMR for MTJs with Mn-rich, lightly Fe-doped CMFS electrodes was attributed to that (1) the nominal half-metallic SSFU composition was recovered by replacing a small amount of Mn by Fe for $\alpha = 1.40$ CMS and (2) the residual $\text{Co}_{\text{Mn/Fe}}$ antisites were further reduced by (Mn+Fe)-rich composition.

References

[1]. H.-x. Liu et al., J. Phys. D: Appl. Phys. 48, 164001 (2015). [2]. G.-f. Li, et al., Phys. Rev. B 89, 014428 (2014).

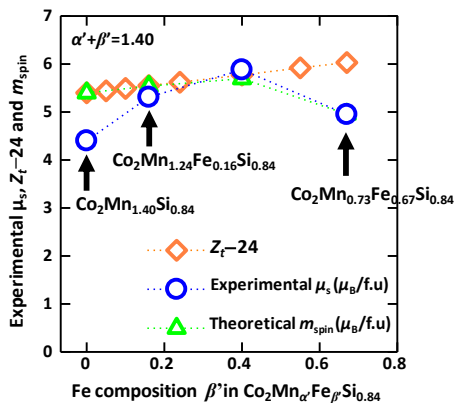


Fig. 1. Saturation magnetization per formula unit of $\text{Co}_2\text{Mn}_{1.40}\text{Si}_{0.84}$ and $\text{Co}_2\text{Mn}_{\alpha'}\text{Fe}_{\beta'}\text{Si}_{0.84}$ films with $\alpha' + \beta' = 1.40$ in comparison with Slater-Pauling value ($Z_{\uparrow-24}$) and theoretical m_{spin} .

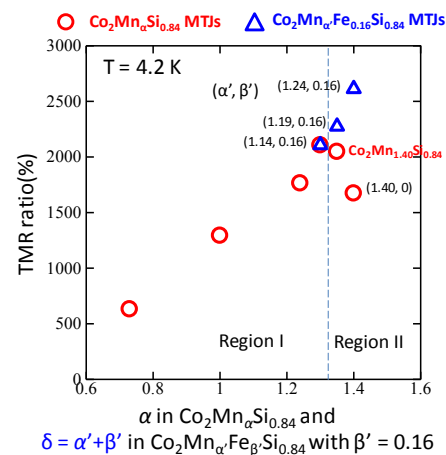


Fig. 2. TMR ratios of CMFS-based MTJs as a function of $\delta = \alpha' + \beta'$ in $\text{Co}_2\text{Mn}_{\alpha'}\text{Fe}_{\beta'}\text{Si}_{0.84}$ electrodes and that of identically fabricated CMS-based MTJs as a function of α in $\text{Co}_2\text{Mn}_{\alpha}\text{Si}_{0.84}$ electrodes.

Characteristic temperature dependence of spin-dependent tunneling conductance of MTJs with highly spin-polarized electrodes

Bing Hu, Kidist Moges, Yusuke Honda, Tetsuya Uemura, and Masafumi Yamamoto
Hokkaido University

Half-metallic ferromagnets are one of the most suitable spin-source materials for spintronic devices because of their complete spin polarization at the Fermi level (E_F). We recently demonstrated that controlling defects through the film composition is critical to retaining the half-metallicity of ternary Heusler alloy Co_2MnSi (CMS) and quaternary alloy $\text{Co}_2(\text{Mn}_\alpha\text{Fe}_\beta)\text{Si}$ (CMFS) [1–3]. As a result, we demonstrated giant TMR ratios for CMS/MgO/CMS magnetic tunnel junctions (CMS MTJs) and CMFS/MgO/CMFS MTJs (CMFS MTJs) of up to 2610% at 4.2 K and 429% at 290 K [1,3]. The purpose of the present study was to clarify the key mechanisms that determine the temperature (T) dependence of the spin-dependent tunneling conductances G ($=I/V$) for the parallel (P) and antiparallel (AP), G_P and G_{AP} , in particular, G_P of MTJs with highly spin-polarized electrodes. To do this, we experimentally investigated how the T dependence of G_P and G_{AP} varied with the degree of the half-metallicity of CMS and CMFS electrodes.

The preparation of fully epitaxial CMS MTJs (CMFS MTJs) with various values of α (α' and β') in $\text{Co}_2\text{Mn}_\alpha\text{Si}$ ($\text{Co}_2(\text{Mn}_\alpha\text{Fe}_\beta)\text{Si}$) electrodes has been described elsewhere [1,3]. The tunneling conductances G_P and G_{AP} were measured by a dc four-probe method at temperatures from 4.2 K to 290 K at a bias voltage of 2 mV.

Figure 1 shows the T dependence of G_P of three kinds of epitaxial MgO-based MTJs: a CMS MTJ and a CMFS MTJ both showing high TMR ratios and an identically prepared $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ (CoFe)/MgO/CoFe MTJ (CoFe MTJ) showing a relatively low TMR. Contrasting dependences were observed: G_P of the CoFe MTJ increased with increasing T , in particular, for $T > 100$ K, while G_P of the CMS MTJ and CMFS MTJ decreased with increasing T from T_1 (~ 25 K) to T_2 (~ 220 K) and then increased for $T > T_2$. This result suggests the correlation between the T dependence of G_P and the spin polarization at E_F .

The possible origin of the contrasting behaviors of the T dependence of G_P of MTJs featuring a wide range of the TMR ratio at 4.2 K can be explained by the competition between two factors involved in the tunneling mechanisms: One is a spin-flip tunneling process via a thermally excited magnon (Zhang's term) [4], which increases G_P with increasing T , and another is a spin-conserved tunneling process but under the decrease in the tunneling spin polarization, which decreases G_P with increasing T due to a spin-wave excitation (Shang's term) [5]. Note that the contribution to G_P from the Zhang's term decreased with increasing spin polarization. Thus, it is reasonable to ascribe the increase in G_P for MTJs showing lower TMR ratios to the Zhang's term and ascribe the decrease in G_P for a T range from $T_1 < T < T_2$ for MTJs showing higher TMR ratios to the Shang's model because of the relative decrease in the contribution from the Zhang's term. Given these consideration, we fitted the T dependence of G_P of MTJs showing high TMR ratios by taking into account both two factors: Shang's term responsible for the decrease in G_P for $T_1 < T < T_2$ while the Zhang's term responsible for the increase in G_P for $T > T_2$ (Fig. 2). We confirmed that the thus fitted curve well reproduced the $G_P(T)$ for a CMS MTJ showing a giant TMR ratio.

[1] H.-x. Liu et al., Appl. Phys. Lett. **101**, 132418 (2012). [2] G.-f. Li et al., PRB **89**, 014428 (2014). [3] H.-x. Liu et al., J. Phys. D: Appl. Phys. **48**, 164001 (2015). [4] S. Zhang et al., PRL **79**, 19 (1997). [5] C. H. Shang et al., PRB **58**, 2917(R) (1988).

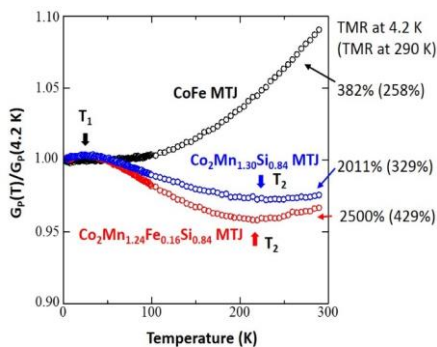


Fig 1. Typical T dependence of the normalized tunneling conductance for P of three kinds of MgO-based MTJs having a wide range of TMR ratio at 4.2 K and 290 K.

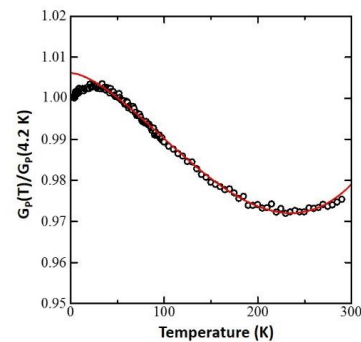


Fig 2. Experimental (open circles) and fitted (line) curve for a $\text{Co}_2\text{Mn}_{1.30}\text{Si}_{0.84}$ MTJ showing giant TMR ratios of 2011% at 4.2 K and 329% at 290 K.

スピングャップレス半導体のデバイス応用に向けた Mn_2CoAl 薄膜の作製

広瀬慎吾、植田研二、愛知慎也、羽尻哲也、浅野秀文
(名古屋大)

Fabrication of Mn_2CoAl thin films toward device applications for Spin-Gapless-Semiconductors

S. Hirose, K. Ueda, S. Aichi, T. Hajiri, H. Asano+
(Nagoya Univ.)

はじめに

近年注目されているスピングャップレス半導体(SGS)は片方のスピンを持つ価電子帯と伝導帯がフェルミエネルギー(E_F)の一点で接し、他方スピンを持つバンドは E_F においてバンドギャップとなっているという特殊なバンド構造を有しており高い分極率と高移動度を併せ持つ為、スピントロニクスデバイス材料として非常に有望である。本研究ではSGSであると理論予測されている材料のうち、バルクにおいて既にSGSに特有の伝導特性(線形MR, 高移動度 etc.)が観測されている Mn_2CoAl (MCA)に着目し、デバイスに必須となる薄膜化を試みた。

実験方法

MCA薄膜の作製は格子ミスマッチの小さな MgO (2.7%)及び MgAl_2O_4 (1.5%) 基板上にイオンビームアシストスパッタ(IBAS)法¹⁾を用いて行った。IBAS法は製膜中にアシストイオンガンを補助的に用いることで低温での成長が可能となり、界面反応やミキシングを抑えることができる手法である。X線回折法により結晶構造、試料振動型磁力計(VSM)により磁気特性、四端子法により電気抵抗、高磁場下ホール抵抗率測定により移動度及びキャリア密度の評価を行った。

実験結果

面直、面内 X 線回折測定から基板温度(T_S)= 300 ~ 600°Cの範囲においてMCAが基板に対して45°回転してエピタキシャル成長していることが確認できた(MCA (001)[110] // MgO or MAO (001)[100]) (Fig. 1)。また、磁化測定によって室温で強磁性体又はフェリ磁性体に特有のヒステリシス曲線を観測した(Fig.2)。アシストガンをを用いた低温製膜によって T_S の減少と共に格子定数(c)と飽和磁化(M_S)が増大し、 $T_S = 300^\circ\text{C}$ で $c = 0.5792\text{ nm}$, $M_S = 235\text{ emu/cc}$ となり、バルク値(0.5798 nm, 350 emu/cc)と同等の値となった。これらは低温製膜によって界面反応やミキシング、Mn原子の欠損などが抑制されたためであると考えられる。さらに、電気抵抗測定から、温度低下に伴って抵抗値が増大するという半導体的な挙動が確認された。アレニウスプロットによって求めた活性化エネルギーは数meV程度と非常に小さな値が得られ、SGSがゼロギャップ半導体であることに対応していると考えられる。また、4 Kでのホール抵抗率測定によって得られた電子移動度及びキャリア密度はそれぞれ $17\text{ cm}^2/\text{V}\cdot\text{s}$, $5 \times 10^{20}\text{ cm}^{-3}$ であり、薄膜において報告されている値($0.45\text{ cm}^2/\text{V}\cdot\text{s}$, $1.6 \times 10^{20}\text{ cm}^{-3}$)²⁾より2桁大きな移動度が得られた。これは原子置換や欠損がより少ないためだと考えられる。

参考文献

- 1) M. Nishiwaki et. al., J. Appl. Phys., 117, 17D719 (2015).
- 2) Xu, et. al., Appl. Phys. Lett., 104, 242408 (2014).

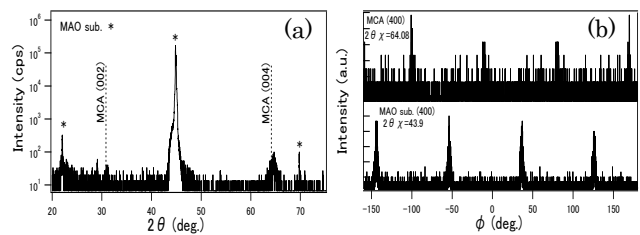


Fig. 1 (a) Out-of-plane, (b) in-plane XRD patterns for MCA films on MAO formed at 350°C

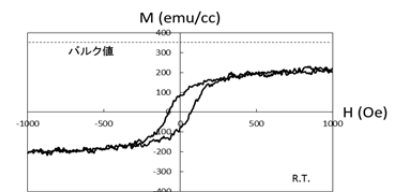


Fig. 2 Magnetic field dependence of Magnetization curves of MCA films on MAO formed at 300°C

Fe₄N エピタキシャル薄膜の窒素原子占有度の評価

伊藤啓太^{1,2,3}, 具志俊希¹, 東小菌創真¹, 竹田幸治⁴, 斎藤祐児⁴, 都甲薫¹, 柳原英人¹,
角田匡清², 小口多美夫⁵, 木村昭夫⁶, 喜多英治¹, 末益崇¹

(¹筑波大, ²東北大, ³日本学術振興会 PD, ⁴日本原子力研究開発機構, ⁵大阪大, ⁶広島大)

Characterization of occupancy of nitrogen atoms in epitaxially grown Fe₄N films

K. Ito^{1,2,3}, T. Gushi¹, S. Higashikozono¹, Y. Takeda⁴, Y. Saitoh⁴, K. Toko¹, H. Yanagihara¹,

M. Tsunoda², T. Oguchi⁵, A. Kimura⁶, E. Kita¹, and T. Suemasu¹

(¹Univ. of Tsukuba, ²Tohoku Univ., ³JSPS, ⁴JAEA, ⁵Osaka Univ., ⁶Hiroshima Univ.)

はじめに

逆ペロブスカイト型遷移金属強磁性窒化物(Fig. 1)は近年スピントロニクス応用材料として注目を浴びている。特に Fe₄N は、スピン依存電気伝導度計算から大きな負のスピン分極率($P_{\sigma} = -1.0$)が予想されている¹⁾。我々はこれまでに分子線エピタキシー(MBE)法により、SrTiO₃(STO)(001)基板上へのエピタキシャル膜の作製に成功している²⁾。一方、N 原子の占有度はスピン分極率に影響すると考えられ、それを調べる事は応用上の観点からも重要である。

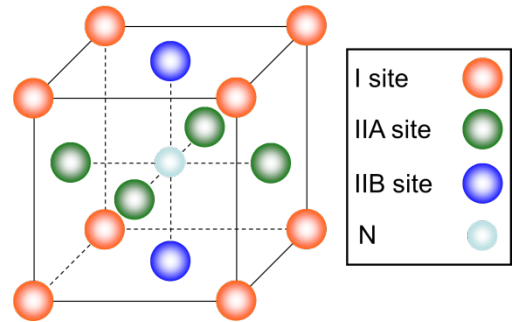


Fig. 1 Lattice of anti-perovskite nitride.

これまで X 線回折(XRD)法を用いた評価結果が報告されているが³⁾、平均的な情報を取り扱うため、詳細な情報は得られていなかった。そこで本研究では、MBE 法により Fe₄N 薄膜をエピタキシャル成長し、内部転換電子メスバウアー(CEMS)測定、X 線吸収分光(XAS)、X 線磁気円二色性(XMCD)測定を行い、XRD 法ではわからない局所的な情報が得られる、新たな Fe₄N 中の N 原子の占有度評価手法の提案を試みた。

実験方法

固体 Fe と高周波プラズマ N₂ の同時供給による MBE 法により、STO(001)基板上に Fe₄N(20 nm)をエピタキシャル成長し、300 K にて CEMS 測定を行った。Fe 原料は⁵⁷Fe の割合を 20%程度にエンリッチした特殊原料を用いた。XAS および XMCD 測定には Au(3 nm)/Fe₄N(10 nm)を用いた。300 K にて試料の面直方向に±3 T の磁場を印加し、飽和状態で測定した。全電子 FLAPW 法に基づく第一原理電子状態計算の結果とフェルミの黄金則を用いて XAS および XMCD スペクトルを計算し、実験結果と比較した。

実験結果

理想的には各 Fe site の占有比率は Fe I:Fe II = 1:3 だが、CEMS スペクトルの解析結果は Fe I:Fe II = 0.53:3 となった。理想と異なり N 原子が隣り合う 2 つの Fe I site 間に侵入した場合、Fe I site が Fe II site と等価になる。よって、N 原子の過剰侵入または不規則占有に起因して、Fe I site の見かけの占有比率が小さくなったと考えられる⁴⁾。XAS および XMCD スペクトルの Fe L_{2,3} 吸収端には肩構造が現れ、理論計算からも再現された。この肩構造は、Fe II site の Fe 3d 軌道と N 2p 軌道との混成に起因した局所的な電子状態を反映したものであり⁵⁾、N 原子の侵入量や規則度との関連性が高いといえる。

謝辞

本研究は JSPS 科研費(No. 26249037)、特別研究員奨励費(No. 14J01804)の支援を受けた。CEMS 測定は、筑波大学研究基盤総合センター応用加速器部門にて行った。XAS および XMCD 測定は、ナノネット支援課題(Nos. 2010A3877 and 2010B3876)のもと、SPring-8 BL23SU にて行った。

参考文献

1) S. Kokado *et al.*, Phys. Rev. B **73**, 172410 (2006). 2) K. Ito *et al.*, J. Cryst. Growth **322**, 63 (2011). 3) K. Kabara *et al.*, Appl. Phys. Express, **7**, 063003 (2014). 4) K. Ito *et al.*, J. Appl. Phys. **117**, 17B717 (2015). 5) K. Ito *et al.*, J. Appl. Phys. **117**, 183906 (2015).