[12]

氏 名(国籍) アマナブロル ラジャニ カーンツ (インド)

学位の種類 博士(工 学)

学位記番号 博 甲 第 4475 号

学位授与年月日 平成 19 年 7 月 25 日

学位授与の要件 学位規則第4条第1項該当

審 查 研 究 科 数理物質科学研究科

学位論文題目 Spin polarization measurements of Heusler alloys by the point contact

Andreev reflection method

(点接触アンドレーフ反射法によるホイスラー合金のスピン分極率測定)

主 査 筑波大学教授 Ph. D. 宝 野 和 博 副 査 筑波大学教授 理学博士 進 也 字 治 副 筑波大学教授 工学博士 多 英 治 査 名古屋大学教授 工学博士 文 査 浅 野 秀 副

## 論文の内容の要旨

The tunneling magnetoresistance (TMR) of magnetic tunneling junctions (MTJs) and giant magneto-resistance (GMR) of spin valves strongly depend on electron spin polarization (P) of ferromagnetic electrodes. TMR of an MTJ is given by the Julliere's formula,  $MR = 2P_1P_2/(1-P_1P_2)$ , where  $P_1$  and  $P_2$  are the spin polarizations of the two ferromagnetic electrodes. If  $P_1 = P_2 = 1$  then the  $MR = \infty$ . Thus for achieving large MR we need ferromagnetic materials with large spin polarization. Half-metallic ferromagnets are predicted to posses 100% spin polarization. Hence search and processing of half-metal ferromagnets (HMF) has become a very active research subject in the field of spintronics. Half metals are the materials with 100% single spin density of states (100% spin polarization) near the Fermi level having a band gap in the minority (or majority) spin density of states. In order to search for a material with large spin polarization, measurement of spin polarization itself has become a very important issue, as well as the first aim of this thesis.

For this purpose we have set up a system for measuring the spin polarization by the point contact Andreev reflection (PCAR) technique. We have developed a user friendly multiple parameter fitting program for extracting the spin polarization through cumulative iterations. The second aim was to engineer materials to realize very high spin polarization P = 1.0. Though there were several ternary Heusler alloys theoretically predicted to posses 100% spin polarization, experimentally it hasn't been realized yet. The first cause that was thought for the low spin polarization is the site disorder. In this context we have studied the disorder effect on spin polarization by growing the  $Co_2MnSi$  and  $Co_2MnSi$  this films with various disorders A2, B2 and L2<sub>1</sub> at various substrate temperatures. We found amorphous A2  $Co_2MnSi$  has a spin polarization of 0.52, interestingly this alloy, in amorphous state has superparamagnetism and spin polarization of 0.52.

We have studied various types of ternary and quaternary full Heusler alloys to search for a material with high spin polarization. Co-based bulk alloys such as  $Co_2MnAl$ ,  $Co_2MnSn$ ,  $Co_2MnSb$ ,  $Co_2MnGa$ , CoMnSb, and CoMnSn alloys have high  $T_c > 800$ °C and high magnetization  $> 4\mu B$ . Out of these alloys  $Co_2MnAl$  and  $Co_2MnSn$  has P = 0.57 and P = 0.60

spin polarization respectively,  $Co_2MnSn$  has relatively high spin polarization in the point contact Andreev reflection (PCAR) regime when compared to most of the ternary full Heusler alloys. The possible reasons that were thought for the low spin polarization compared to the ideal value of 1.0 were the position of the Fermi level close to the conduction band and the presence of antisite disorders. Prevention of antisite disorders completely is a sifficult task whereas shifting the position of the Fermi level by doping or aloying would be an easy task. Hence we tried to alloy A1 with  $Co_2MnSn$  and prepared  $Co_2MnAl_{0.5}Sn_{0.5}$  alloy. Interestingly this alloy was in a two phase atate  $L2_1+B2$  which has shown a spin polarization of P=0.63 which is a high spin polarization value even in the presence of disorder. Furthermore, in order to see the effect of quaternary alloying or the effect of doping, we have chosen Fe as the dopent for the Mn site in  $Co_2MnSn$  system. Bulk  $Co_2MnFeSn$  was prepared by arc melting and very high spin polarization of P=0.65 was achieved which is the present highest value measured by PCAR in Heusler alloys. Hence we have shown experimentally that quaternary alloying dose effect the magnetization as well as the spin polarization for the Heusler alloys. And we have demonstrated that, PCAR can detect the change in spin polarization with quaternary alloying and it is very good technique for searching a material with 100% spin polarization.

## 審査の結果の要旨

近年、電子の電荷とスピンを制御して新しい電子素子を開発しようとするスピントロニクスの研究が盛んになってきているが、このようなスピントロニクス素子を開発するためには高い電子のスピン分極率を持つハーフメタルの探索が必須である。本研究は室温以上で高いスピン分極率を示すと第一原理計算によって予測されている Co 基ホイスラー合金のスピン分極率を直接測定し、スピントロニクス素子応用に適したハーフメタルを探索した研究である。スピン分極率の測定には磁性トンネル接合(MTJ)から得られるトンネル磁気抵抗(TMR)を測定し、その値から Jullier の式を用いてトンネル電子の分極率を測定する方法が広く用いられているが、この方法では MTJ を作製し、さらにそれを微細加工する必要があり、材料探索には適しない。さらに Jullier の式からはトンネル電子の分極率しか求めることができず、材料そのものの電子の分極率を求めている訳ではない。このような理由から、申請者は点接触アンドレーフ反射法によるスピン分極率を求めている訳ではない。このような理由から、申請者は点接触アンドレーフ反射法によるスピン分極率を評価するフィッティング法を確立し、それを用いて種々の Co 基ホイスラー合金のスピン分極率を測定した。

第一原理計算によりハーフメタル性の予測されていた  $Co_2MnAl$ ,  $Co_2MnGe$ ,  $Co_2MnSn$ ,  $Co_2FeSi$ ,  $Co_2FeAl$  などの合金の規則度,微細構造を評価し,スピン分極率が 0.6 程度に留まることを明らかとした。さらにこれらの合金におけるフェルミ面の位置を最適化するために,4元合金化を試み, $Co_2MnAl_{0.5}Sn_{0.5}$ ,  $Co_2FeSi_{0.5}Al_{0.5}$  などの合金において,3元合金よりも高い分極率となっていることを実験的に示すことにより,スピントロニクス素子応用に適したハーフメタル合金の設計指針を提案した。

点接触アンドレーフ反射法によるスピン分極率測定はすでに報告があるが、本研究のように合金組成を系統的に変化させ、さらに熱処理により規則度を変化させた試料の系統的な分極率測定の例は皆無であり、ハーフメタル探索の新たなアプローチを開拓したといえる。またホイスラー合金のドーピングによる分極率変化の測定は世界で始めての測定例であり、成果は世界的にも注目に値する。これらの結果はホイスラー合金のスピントロニクス応用に関して、学術的のみならず工業的にも重要な知見を与えている。これまでの成果の公表状況をも勘案して、博士(工学)の学位を授与するに値する成果であると判断される。

よって、著者は博士(工学)の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。