

硬 X 線光電子分光による高スピン偏極材料の電子構造の検証 Evaluation of electronic structure of highly spin polarized materials probed by hard X-ray photoelectron spectroscopy

木村昭夫^a、浅野秀文^b、吉村 哲^b、竹田陽一^b、宮本幸治^a、島田賢也^c、生天目博文^c、
谷口雅樹^{a,c}、池永英司^d、小林啓介^e、鹿又 武^f

A. Kimura^a, H. Asano^b, S. Yoshimura^b, Y. Takeda^b, K. Miyamoto^a, K. Shimada^c, H. Namatame^c,
M. Taniguchi^a, E. Ikenaga^d, K. Kobayashi^e, T. Kanomata^f

^a 広島大院理、^b 名古屋大院工、^c 広島大放射光、^d JASRI/SPring-8,
^e NIMS/SPring-8, ^f 東北学院大工

^a Grad. Sch. Sci., Hiroshima Univ., ^b Grad. Sch. Eng., Nagoya Univ., ^c HSRC, Hiroshima Univ.,
^d JASRI/SPring-8, ^e NIMS/SPring-8, ^f Fac. Eng., Tohoku Gakuin Univ.

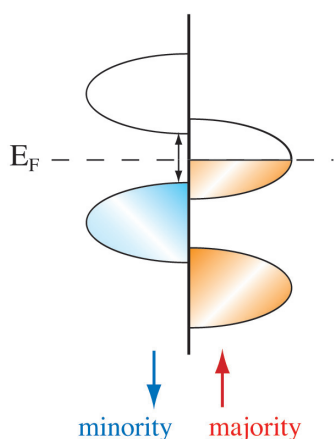
高い磁気抵抗比を示すトンネル磁気抵抗素子の強磁性材料として期待を集めているフルホイーラー型強磁性合金薄膜の電子構造を解明することを目的として、入射光エネルギー 8keV の硬 X 線光電子分光を BL29XU で行った。特に今回はハーフメタル電子構造を持つと期待される Co₂MnGe 薄膜に着目した。実験の結果、Co₂MnGe 薄膜内の電子状態は、以前行われたバルク多結晶と同様の電子状態を示した。基板の種類や成長条件を変えた試料についての光電子スペクトルはどれも似通っている結果となった。

We have tried to measure the photoemission spectrum excited by the hard X-ray synchrotron radiation (8keV) at BL29XU of the Heusler-type ferromagnets, which are expected as a key material showing a huge magnetoresistance ratio in magnetic tunneling junction (MTJ). The present study is mainly focused on Co₂MnGe film, which has been predicted to show a "half-metallicity". The obtained result of valence band photoemission is in agreement with the former result for the bulk polycrystalline sample. The several Co₂MnGe films grown on the different substrates in different conditions have shown the similarity of the valence band photoemission spectra.

背景と研究目的

「ハーフメタル強磁性体」は、その電子構造として多数スピン電子はフェルミレベルを横切り金属的で、少数スピン電子は半導体的な電子構造をとっている（その逆もある）。したがってフェルミエネルギー（ E_F ）における電子のスピン偏極度が 100% であることか

ら、トンネル磁気抵抗（TMR）素子における強磁性層の材料として有力視されている。これまで La_{0.7}Sr_{0.3}MnO₃、CrO₂ などの遷移金属酸化物などがハーフメタル強磁性体として理論的に予測され、最近のアンドレーエフ反射を利用した超伝導体ポイントコンタクトの実験でも高いスピン偏極度が観測されている [1]。



しかしながら、これら酸化物ハーフメタルの欠点は、キュリー温度が比較的室温に近く、室温での TMR 比が非常に小さいという応用上致命的な欠陥があった。

一方、 Co_2MnX ($\text{X}=\text{Si}, \text{Ge}$) 等のホイスラー型強磁性合金が「ハーフメタル」としての電子状態を示すことが石田らによりバンド計算により予言されていた。このようなホイスラー型合金が、高いキュリー温度を有することから、応用上価値が見直されつつある。特に最近では、マグネトロンスパッタ法によって Co_2MnX ($\text{X}=\text{Si}, \text{Ge}$) を強磁性層、 MgO を絶縁シートとした TMR 素子の開発が試みられはじめ、高い磁気抵抗比がいくつか報告されている。しかしながら、これらの値は実用化のために必要な値には及んでおらず、またハーフメタルを仮定したときの TMR 比からはまだほど遠い。この原因として界面における強磁性層の酸化や不規則性の存在によりハーフメタル性が破綻しているという指摘がある[2]。

光電子分光は、価電子帯の電子構造を直接的に観測出来る大変有力な手法である。しかしながら、このようなハーフメタルを示すと考えられているホイスラー型強磁性合金について光電子分光を用いて実験的に電子構造を

見いだした例は非常に少ない。その一つの理由として、従来の真空紫外光源を用いた光電子分光では、電子の平均脱出深さが数オングストローム程度であるので、ごく表面近傍の電子構造しかとらえることが出来ず、有用性に欠けていた。最近、SPRING-8 の高輝度性、低エミッタンス性、および光電子分析器の高性能化の恩恵を受けて、最大 10keV の光エネルギーでの光電子分光が可能になり、全エネルギー分解能 100meV 以下での測定が実現された。これによって表面にとらわれない形で、電子構造の直接観測が可能になった。また、光電子の脱出深さが格段に大きくなったため、薄膜試料を外部から持ち込んで測定し、内部の電子構造をとらえられるようになった。

今回は、作成条件や基板配向性の違いによって、 Co_2MnGe 薄膜の電子構造がどのように変化するかを調べることを目的として実験を行った。

実験

今回は異なる基板およびシード層を持つ Co_2MnGe 薄膜試料を 4 種類測定した。それぞれの基板、シード層、製膜温度を Table I に示す。すべての薄膜について、バッファ層は Cr を用いている。試料 2,3,4 については熱酸

Co ₂ MnGe 薄膜試料名	バッファ層	シード層	基板
#1	Cr	-	MgO(100)
#2	Cr	-	Si 基板
#3	Cu	Ta	Si 基板
#4	Cr	Ni-Ta	Si 基板

Table I：異なる基板およびシード層・バッファ層を持つ Co_2MnGe 薄膜。製膜温度はすべて 300°C。

化膜 Si 基板を使用した。光電子分光実験は SPring-8 BL29XU で行った。入射光エネルギーは 8keV に設定した。光電子分光スペクトルは Gamdata-Scienta 社の R4000 型半球アナライザーを用い、全エネルギー分解能を 270meV 以下に設定した。測定は 17K で行った。

結果および考察

Fig. 2 には、入射光エネルギー 8keV で励起した価電子帯スペクトルを示す。試料 1 (#1) についてまずは見てみると、フェルミレベルから順番に A($E_B=1\text{eV}$), B(2eV), C(2.5eV), D(6.3eV), E(10.5eV) にピーク構造が観測された。この結果は基本的に、以前当グループでバルク多結晶試料について行った実験結果と一致している [3]。ここで注意しなければならないのは、入射光のエネルギーが増加していった場合、Co や Mn3d 軌道に対する Ge 4s, 4p 電子の光イオン化断面積の比が大きくなっていく。そのため、入射光 8keV では、構造 C, D は主に Ge 4p 軌道から構成されると考えられ、構造 E は Ge 4s 軌道と帰属される。また、試料 2, 3, 4 を見てみても、光電子バックグラウンド形状に多少の違いが見受けられ

るものの、基本的には、試料 1 と同じ結果となった。

参考文献

- 1) R. J. Soulen Jr. et al., Science **282** (1998) 85.
- 2) S. Picozzi et al., Phys. Rev. B 66 (2002) 094421.
- 3) K. Miyamoto et al., unpublished.

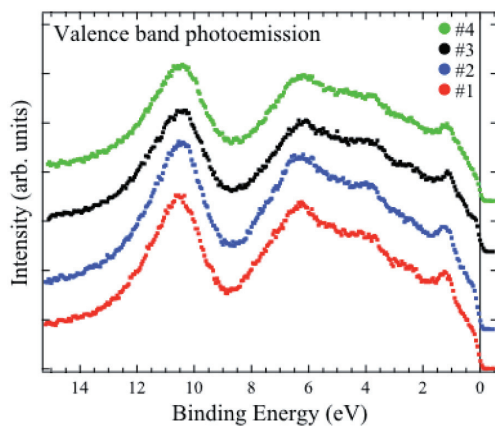


Fig. 2 Valence band photoemission spectra of the four different Co_2MnGe films for $h\nu=8\text{keV}$.