

硬スピン偏極材料 Co_2MnGe 薄膜の硬 X 線光電子分光 Hard X-ray photoelectron spectroscopy of highly spin polarized material Co_2MnGe

木村昭夫^a、浅野秀文^b、吉村 哲^b、竹田陽一^b、高橋佑介^b、宮本幸治^a、
島田賢也^c、生天目博文^c、谷口雅樹^{a,c}、竹田幸治^d、斉藤祐児^d、小林啓介^e
A. Kimura^a, H. Asano^b, S. Yoshimura^b, Y. Takeda^b, Y. Takahashi^b, K. Miyamoto^a,
K. Shimada^c, H. Namatame^c, M. Taniguchi^a, E. Ikenaga^d, K. Kobayashi^e

^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

^a Grad. Sch. Sci., Hiroshima Univ., ^b Grad. Sch. Eng., Nagoya Univ.,

^c HSRC, Hiroshima Univ., ^d JASRI/SPring-8, ^e NIMS/SPring-8

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 Co_2MnGe 薄膜の Co や Mn 3d 電子構造を解明することを目的として硬 X 線光電子分光を行った。実験の結果、 Co_2MnGe 薄膜内の電子状態は、以前行われたバルク多結晶のものと同様の振る舞いを示した。基板の種類やシード層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 of the Co_2MnGe films, which are expected as a key material showing a huge magneto resistance ratio in magnetic tunneling junction (MTJ) in order to clarify the bulk Co and Mn 3d electronic states. The obtained result of valence band photoemission is in agreement with the former result for the bulk polycrystalline sample. The several Co_2MnGe films grown on the different substrates with different seed layers have shown a 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、Fig.1 に示すように、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）。このようなハーフメタル強磁性体はトンネル磁気抵抗（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 $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ 、 CrO_2 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も実験的にも確かめられている。しかしながら、これら酸化物ハーフメタル強磁性体の欠点は、キュリー温度が比較的室温に近く、室温における 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 (X=Si, Ge) 等のホイスラー型強磁性合金がハーフメタル性を示すことが石田らによりバンド計算から予言されてい

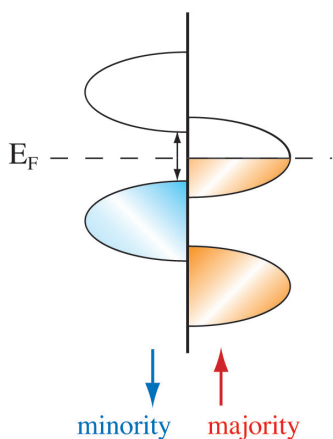


Fig. 1 Schematic figure of electronic structure for "half-metallic" ferromagnet.

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、応用上の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 TMR 素子の開発が試みられはじめ、すでに高い磁気抵抗比が報告されてきている。しかしながら、これらの値は実用化のためには未だ不十分である。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 [1]。

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。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、3.5-10keV の硬 X 線領域における光エネルギーでの光電子分光が可能になり、これまで困難であった全エネルギー分解能 100-300meV での測定が実現した。光電子の脱出深さが格段に大きくなったため、表面にあまりにとらわれない形で、結晶内部の電子構造の直接観測が可能になったといえる。Co₂MnGe の場合、光のイオン化断面積を考慮すると、6keV 以上の光エネルギーでは、価電子帯光電子スペクトルは主に、Ge 4sp 電子の

寄与が大きいと考えられる。一方で、Co₂MnGe の磁性を支配するのは、やはり Co や Mn 3d 電子であると考えられるので、このような 3d 電子を反映し、かつバルク敏感な光電子スペクトルを観測することも非常に重要である。硬 X 線ビームライン JAEA/SPring-8 BL22XU では、励起光エネルギー 3.5keV にて、光電子スペクトルが観測出来る。入射光 3.5keV では、6keV 以上の場合に比べ、比較的遷移金属の 3d 状態のイオン化断面積比が依然大きいことから、バルクの 3d 電子状態をとらえることの出来る特色のある実験ステーションと位置づけられる。

今回は、作成条件や基板配向性の違いによって、Co₂MnGe 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。特に、これまでは MgO 基板上に作成した報告例が多い中で、我々は応用的価値が高いと考えられる熱酸化 Si 基板上にも薄膜を作成した。

実験

今回は異なる基板およびシード層を持つ Co₂MnGe 薄膜試料 4 種類について測定を行った。

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

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 Co₂MnGe 薄膜。製膜温度はすべて 300°C。

ファー層はCrを用いている。試料2, 3, 4については熱酸化膜 Si 基板を使用した。光電子分光実験は SPring-8 BL22XU で行った。光電子分光スペクトルは Gammadata-Scienta 社の R4000 型半球アナライザーを用いた。

2) K. Miyamoto et al., unpublished.

結果および考察

入射光エネルギー 3.5keV で励起した価電子帯スペクトルは全て、フェルミレベルから順番に $E_B=1\text{eV}$, 2.5eV, 3.6eV, 6.3eV, 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 [2]。また入射光 8keV で行った実験では、 $E_B=3.6\text{eV}$, 6.3eV および $E_B=10.5\text{eV}$ の構造が顕著に現れたが、3.5keV の場合は $E_B=1\text{eV}$ の構造がより明確になっている。この結果は、入射光のエネルギーが低下した場合、Co や Mn 3d 軌道の光イオン化断面積が Ge 4s, 4p 電子のものに比べ大きくなっていく。このことから、入射光 3.5keV では $E_B=3.6\text{eV}$, 6.3eV の構造は主に Ge 4p 軌道から構成され、 $E_B=10.5\text{eV}$ の構造は Ge 4s 軌道から構成されることがわかる。一方、 $E_B=1\text{eV}$ 構造は主に Co 3d 状態を反映していると考えられる。また、試料 2, 3, 4 を見ても、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。このことは、基板として、応用上有利と考えられる熱酸化 Si 基板上に成長した Co_2MnGe 薄膜は、MgO 基板上に成長した薄膜と同様の電子構造が実現されていることを示唆する。

参考文献

1) S. Picozzi et al., Phys. Rev. B **66** (2002) 094421.