

ハーフメタル強磁性体 $\text{Sr}_2\text{CrReO}_6$ のスピン・軌道磁気モーメント Spin and Orbital Moments of a Half-Metallic Ferromagnet $\text{Sr}_2\text{CrReO}_6$

浅野 秀文, 竹田陽一, 山地一史, 中村泰貴, 杉本靖典
Hidefumi Asano, Yoichi Takeda, Kazufumi Yamaji,
Yasutaka Nakamura, and Yasunori Sugimoto

名古屋大
Nagoya University

ハーフメタル強磁性体 $\text{Sr}_2\text{CrReO}_6$ の Re L_3, L_2 吸収端の X 線磁気円二色性 (XMCD) 測定を SPring-8 の BL39XU において行った。用いた試料は、規則型二重ペロブスカイト構造 $\text{Sr}_2\text{CrReO}_6$ のバルクおよび薄膜である。Re L_3, L_2 の吸収スペクトル (XAS)、XMCD スペクトルに磁気光学総和則を適用して導出された軌道磁気モーメントとスピン磁気モーメントの比 $\langle L_z \rangle / \langle S_z \rangle$ は、-0.679 であり、大きな軌道磁気モーメントが観測された。40K から室温の範囲において XMCD シグナルが温度依存性をほとんど示さないことから、 $\text{Sr}_2\text{CrReO}_6$ は室温でも十分なハーフメタル性を維持することが推定される。

The x-ray magnetic circular dichroism (XMCD) measurements on the Re L_2, L_3 edges of a half-metallic ferromagnet $\text{Sr}_2\text{CrReO}_6$ were performed at the Spring-8 beamline BL39XU. The samples are bulks and thin films of $\text{Sr}_2\text{CrReO}_6$ with an ordered double-perovskite structure. At the Re site the $\langle L_z \rangle / \langle S_z \rangle$ ratio of the orbital magnetic moment relative to the spin magnetic moment as large as 0.679 have been detected, which means a considerable orbital moment. No apparent temperature dependence of the XMCD signals at 40K-300K has been observed, suggesting that the half-metallicity of $\text{Sr}_2\text{CrReO}_6$ is preserved even at room temperature.

キーワード：トンネル磁気抵抗素子、ハーフメタル強磁性体、X 線磁気円二色性、元素別磁化測定

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一方のスピン電子はフェルミレベルを横切り金属的で、他方のスピン電子は半導体的な電子構造を有している。従ってフェルミレベルにおける電子のスピン分極率が100%であることから、ハーフメタル強磁性体はトンネル磁気抵抗効果 (TMR) 素子における強磁性層材料として有望視されている。さらにハーフメタル強磁性体と半導体とのハイブリッド構造が実現すれば、非常に高くスピン偏極した電子を半導体中に注入することが可能で、スピントランジスターへの応用が期待される。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最初に理論的に予測され、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。しかしながら、これらの酸化物ハーフメタルには、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点があった。

本研究で対象とする $\text{Sr}_2\text{CrReO}_6$ は、規則型二重ペロブスカイト構造を有するフェリ磁性体であり、ハーフメタル強磁性体であることが理論的に予測されている。この物質は、ペロブスカイト構造の中では最も高いキュリー温度を有す

るため^{1,2)}、TMR 素子における新しい強磁性層材料として期待されている。しかしながら、 $\text{Sr}_2\text{CrReO}_6$ におけるハーフメタル性の実験的な検証は十分にはなされておらず、その高キュリー温度の起源や 5d 遷移金属元素である Re の軌道磁気モーメントの挙動については、未解明である。特に、 $\text{Sr}_2\text{CrReO}_6$ のような規則型二重ペロブスカイトでは、Cr/Re の規則配列の乱れが磁気モーメントやハーフメタル性に多大な影響を及ぼすことが予想される。

本研究では、B サイト規則度の変化させた $\text{Sr}_2\text{CrReO}_6$ バルク試料およびエピタキシャル薄膜に対して、内殻吸収端の磁気円二色性 XMCD 測定によりスピンおよび軌道磁気モーメントを決定し、それらが規則型二重ペロブスカイトのキュリー温度及びハーフメタル性及ぼす影響を明らかにすることを目的とする。

実験方法： Re L_3, L_2 吸収端の XAS および XMCD 実験は、Spring-8 BL-39XU において、40K-300K の温度範囲で行った。電磁石の印加磁場は 2 T であり、試料の法線に対して X 線と磁場の方向を $\gamma=86^\circ$ (面内配置) とした。 $\text{Sr}_2\text{CrReO}_6$ バルク試料については透過法により、薄膜試料については蛍光法により測定した。

結果と考察： Fig. 1にSr₂CrReO₆バルク試料に対する40KにおけるRe L₃とL₂の吸収スペクトル(XAS)及びXMCDスペクトルを、Fig. 2にRe L₂の吸収スペクトル(XAS)及びXMCDスペクトルを示す。得られたXMCD強度は、ReL₃とL₂とも負の値を示している。また、L₂のXMCD強度の磁場依存性をFig. 2に示すが、0.2T程度の保時力を有するヒステリシスループが得られている。一方、Sr₂CrReO₆薄膜については、バルク試料と同様な吸収スペクトル(XAS)が観測されたものの、XMCDスペクトル強度はほとんどゼロであった。これは、今回用いた薄膜のCr/Re規則度が低く、磁化が小さいためと考えられる。従って、薄膜については、Cr/Re規則度を改善した試料を用いたXMCDスペクトルの再測定が必要である。

得られたRe L₃とL₂の吸収スペクトル(XAS)、XMCDスペクトルに磁気光学総和則を適用して導出された軌道磁気モーメントとスピン磁気モーメントの比 $\langle L_z \rangle / \langle S_z \rangle$ は、40Kにおいて-0.679であり、大きな軌道磁気モーメントが観測された。ここで、終状態の5d軌道のホール数を、5.3と仮定すると、 $\langle S_z \rangle = -0.525$ 、 $\langle L_z \rangle = 0.356$ となり、Sr₂CrReO₆においては、Reが有限の大きなスピン磁気モーメント、及び軌道磁気モーメントを持つことが明らかになった。

Fig. 3にSr₂CrReO₆バルク試料に対して求められた軌道磁気モーメント $\langle L_z \rangle$ とスピン磁気モーメント $\langle S_z \rangle$ の温度依存性を示す。40Kから室温の範囲において温度依存性をほとんど示さないことから、Sr₂CrReO₆は室温でも十分なハーフメタ性を維持していることが推定される。

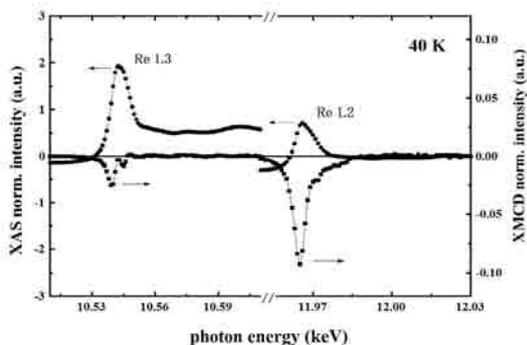


Fig. 1. Re L_{2/3} XAS and XMCD spectra for Sr₂CrReO₆ recorded at T=40 K and H=2 T.

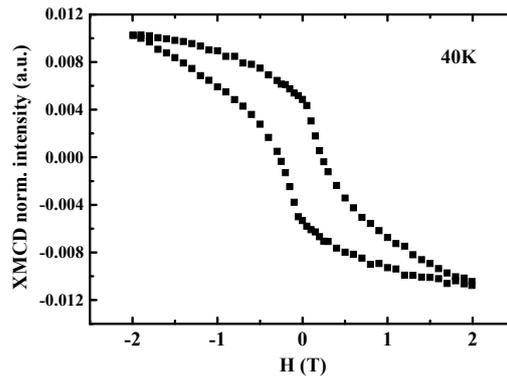


Fig. 2. XMCD signal versus applied magnetic field measured at the Re L₂ edge of Sr₂CrReO₆ at 40 K.

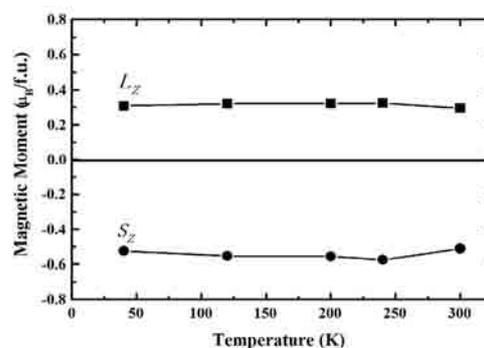


Fig. 3. Temperature dependence of the orbital and spin magnetic moments for the Re site of Sr₂CrReO₆.

今後の課題： 今回の実験では、薄膜試料において、Cr/Re 規則度に対する系統的な吸収スペクトル(XAS)及びXMCDスペクトルのデータが得られなかったため、スピン磁気モーメント、及び軌道磁気モーメントの規則度依存性については今後の課題である。

参考文献

- 1) H. Kato, T. Okuda, Y. Okimoto, Y. Tomioka, Y. Takenoya, A. Ohkubo, M. Kawasaki, and Y. Tokura: *Appl. Phys. Lett.*, **81**, 328 (2002).
- 2) H. Asano, N. Kozuka, A. Tsuzuki, and M. Matsui: *Appl. Phys. Lett.*, **85**, 263 (2004).