

研究種目：若手研究（B）
研究期間：2008～2009
課題番号：20760441
研究課題名（和文） 元素選択電子分光による室温「高スピン偏極」合金のスピン電子状態 解明
研究課題名（英文） Electronic and magnetic states of half-metallic alloys studied by photoemission
研究代表者 恒川 雅典（TSUNEKAWA MASANORI） 滋賀大学・教育学部・講師 研究者番号：20403131

研究成果の概要（和文）：

室温スピンエレクトロニクス材料としての応用が期待されるコバルト基ホイスラー合金について、元素選択的軟X線光電子分光によって実験的に電子状態を詳細に調べたところ、第一原理計算の結果によって実験結果を十分定性的に説明できることが明らかとなった。また、硬X線光電子分光の結果と軟X線光電子分光の結果と併せることで、様々な電子状態に関する知見が得られている。

研究成果の概要（英文）：

Electronic states in Cobalt-based Heusler alloys (X_2YZ) were studied by soft and hard X-ray photoelectron spectroscopy. These spectra show a clear change in electronic states near the Fermi level with increasing 3d electron concentration by substitution of Y site in the Heusler alloys. These experimental results are consistent with the theoretically obtained electronic structures.

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	1,100,000	330,000	1,430,000
2009年度	1,000,000	300,000	1,300,000
年度			
年度			
年度			
総計	2,100,000	630,000	2,730,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：材料工学・金属物性

キーワード：電子・磁気物性

1. 研究開始当初の背景

長く磁氣的性質の基礎研究が行われてきた

が、近年、熱電材料、ハーフメタル材料、形状記憶合金といった多彩な機能物質が合成されるようになったため、ホイスラー合金は基

礎研究、応用研究の両方の分野から注目されている。特に、コバルトを含んだコバルト基ホイスラー合金 (X_2YZ) はほとんどが遍歴電子型強磁性体であり、様々な種類のコバルト基ホイスラー合金においてハーフメタル特性が現れるという報告がある。(ハーフメタルとは、フェルミ準位近傍のスピ電子状態密度がほぼ100%偏っている状態の強磁性金属を意味し、スピン偏極度の値がその指標として用いられる。)スピントロニクス材料としては安定したハーフメタル特性を保持し、かつ強磁性転移温度が高い材料がのぞまれている。室温より十分高い温度でもハーフメタル特性が現れるコバルト基ホイスラー合金を実用材料の候補として、その混晶の研究が現在広く国際的に精力的に行われている。しかしながら、早期の電子状態の実験的検証が待たれているにもかかわらず、詳細な電子状態の実験的検証は少ない。従って、本研究によってコバルト基ホイスラー合金においてハーフメタル特性が発現するメカニズムを解明することは、基礎研究としてのみならず、応用研究的にも大変重要と考えられる。

2. 研究の目的

室温でハーフメタル特性を示すコバルト基ホイスラー合金の中でも、高い強磁性転移温度が報告されているコバルト基ホイスラー合金の電子状態を詳細に調べることで、その高いスピン偏極度の起源と安定性を電子構造という微視的立場から、実験的に解明することが本研究の目的である。これによって、コバルト基ホイスラー合金をはじめとする遍歴電子型強磁性体の磁性という巨視的な性質を制御することに取り組む物質設計・合成の分野に、新しい機能材料を設計するための確かな指針のひとつとして、電子状態という微視的な性質の情報を提供することにつながるかと考えている。

3. 研究の方法

(1) 軟・硬エックス線光電子分光によるバルク電子状態研究

15-120 電子ボルトの範囲にある励起光エネルギーを利用した光電子分光は、その光電子の固体内平均自由行程が短いために、表面電子状態に敏感な測定手法である。表面電子状態は、強い電子相関のために、しばしばバルク電子状態とは大きく異なることが知られている。しかしながら、励起光に軟エックス線を利用することで、固体内平均自由行程が長くなり、バルク電子状態を50%以上光電子スペクトルに反映した光電子分光が可能になる。つまり、放射光を利用した軟エックス線光電子分光によって、物質表面と内部の電子状態を詳細に調べることができる。励起光エネルギーや偏光を調整することで、元素別の電子状態、電子軌道別の電子状態、結晶内の位置による電子状態の違いといった選択的な電子状態の情報が得られる。高輝度高分解能な軟エックス線光電子分光を様々な組成のコバルト基ホイスラー合金に対して実施することで、フェルミ準位近傍の占有電子状態を元素・軌道選択的に調べることができる。

更に、励起光エネルギーに硬エックス線を利用することで、固体内平均自由行程は軟エックス線に比べ長くなり、光電子スペクトルに含まれる表面電子状態はほぼ無視できるようになる。近年高分解能化に成功した硬エックス線光電子分光を様々な組成のコバルト基ホイスラー合金に対して実施することで、物質内部の電子状態を詳しく調べることができ、電子軌道の種類別に電子状態の情報が得られる。

(2) コヒーレントポテンシャル法によるスピン電子状態密度計算の妥当性検証

これらの軟・硬エックス線光電子分光の結果と、電子状態密度の第一原理計算の結果を比較することによって、ハーフメタル特性の安定性と組成依存性の関係を解明すること

が可能になる。電子状態密度の計算には、混晶系にも対応できるコヒーレントポテンシャル法によるバンド計算を利用した。

4. 研究成果

一般に、ホイスラー合金 (X_2YZ) の電子構造は X、Y サイトの原子でほぼ決まり、Z サイトの原子の違いが小さな変化をもたらす。本研究対象のコバルト基ホイスラー合金は、構造上コバルト原子だけを見れば単純立方格子を形成しコバルト原子間は Y-Y、Z-Z に比べ距離が短い。このコバルト基ホイスラー合金において、磁性元素 Y を Y' で置換していく過程についてコヒーレントポテンシャル法を利用した第一原理計算を行って電子状態密度を調べた。フェルミ準位近傍の電子状態密度から見積もったスピン偏極度と磁気モーメントの値が、Y サイトの Y' 置換が進むにつれて大きく変化する。このようなハーフメタル特性の顕著な組成依存性が確認された。これをさらに詳細に見たところ、高いスピン偏極度、即ちハーフメタル特性では、磁性元素 Y と Y' の組成比によってフェルミ準位近傍の電子状態が大きく変化する。磁性元素 Y のスピン偏極度は組成比を変えてもほぼ一定であるにもかかわらず、全体の、そして磁性元素 X と Y' のスピン偏極度は組成比とともに変化する。これは組成比を変えると Y と混成した X のフェルミ準位近傍の電子状態が大きく変化するためと考えられる。コバルト基ホイスラー合金について、元素選択的軟エックス線光電子分光によって実験的にフェルミ準位近傍の電子状態の組成依存性を詳細に調べたところ、第一原理計算の結果によって実験結果を十分定性的に説明できることが明らかとなった。また、硬エックス線光電子分光の結果においても、フェルミ準位近傍の電子状態の組成依存性が詳細に観測されており、軟エックス線光電子分光の結果と併せることで様々な電子状態に関する知見が得られている。現在、これらの成果を

投稿論文としてまとめているところである。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 2 件)

- ① M. Tsunekawa, A. Sekiyama, S. Kasai, H. Fujiwara, S. Imada, T. Muro, Y. Onose, Y. Tokura, S. Suga, *New Journal of Physics* Vol. **10** (2008) pp. 073005-1-11. (査読有)
- ② E. E. Kokorina, E. Z. Kuchinskii, I. A. Nekrasov, Z. V. Pchelkina, M. V. Sadovskii, A. Sekiyama, S. Suga, and M. Tsunekawa, *Journal of Experimental and Theoretical Physics*, Vol. **107** (2008) pp. 828-838. (査読有)

[学会発表] (計 4 件)

- ① M. Tsunekawa, A. Sekiyama, S. Kasai, H. Fujiwara, S. Imada, T. Muro, Y. Onose, Y. Tokura, S. Suga
“Bulk electronic structures and strong electron-phonon interactions in an electron-doped high-temperature superconductor”,
11-th International Conference on Electronic Spectroscopy and Structure (ICESS-11), 2009.10.6, Nara, Japan.
- ② M. Tsunekawa, Hiroyuki Yamane, K. Akaike, K. Kato, K. Kanai, Y. Ouchi, K. Seki, T. Seki and K. Awaga
“Electronic Structures of Octathio[8]circulene Thin Films Probed by Photoelectron Spectroscopy and Inverse Photoemission Spectroscopy”,
Winter School in Nagoya 2009: JSPS Core to Core Program, 2009.1.26-29, Nagoya, Japan.
- ③ 恒川雅典、山根宏之、赤池幸紀、加藤啓太、金井要、関一彦、藤本卓也、阿波賀邦夫
「サルフラワー薄膜の光電子分光」
日本物理学会、2008 年度秋季大会(岩手大学) 2008.9.22

- ④ 恒川雅典、関山明、笠井修一、今田真、藤原秀紀、室隆桂之、小野瀬佳文、十倉好紀、菅滋正
「電子ドーブ型銅酸化物超伝導体 $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ ($x = 0.075, 0.15$) のバルク電子状態と強い電子格子相互作用」
日本物理学会 2008 年度秋季大会 (岩手大学) 2009.9.20

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

○取得状況 (計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

[その他]

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

恒川 雅典 (TSUNEKAWA MASANORI)
滋賀大学・教育学部・講師
研究者番号：20403131

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし