スピン二重トンネル接合の磁気抵抗効果^{*1}

介川 裕章^{1,*2} 手束 展規^{1,2} 猪俣浩一郎^{1,2} 杉本 諭¹

¹東北大学大学院工学研究科材料物性学専攻

²戦略的基礎研究推進事業(CREST)-科学技術事業団(JST)

J. Japan Inst. Metals, Vol. 68, No. 2 (2004), pp. 74-77

© 2004 The Japan Institute of Metals

Magnetoresistance of Magnetic Double Tunnel Junctions

Hiroaki Sukegawa^{1,*2}, Nobuki Tezuka^{1,2}, Koichiro Inomata^{1,2} and Satoshi Sugimoto¹

¹Department of Materials Science, Graduate School of Engineering, Tohoku University, Sendai 980-8579

²CREST-JST, Kawaguchi 332-0012

Magnetic double tunnel junctions (DTJs) have been investigated to achieve weak bias voltage dependence and to obtain large magnetoresistance (MR) ratio at several hundred mV. IrMn/Co₉₀Fe₁₀/AlO_x/Co₉₀Fe₁₀/AlO_x/Co₉₀Fe₁₀/IrMn structures were prepared as dual-spin-valve-type DTJs, which possess the middle ferromagnetic layers consisting of both continuous and discontinuous Co₉₀Fe₁₀ films. For the DTJs with continuous middle Co₉₀Fe₁₀ layers, the bias voltage value which MR ratio reduces by half ($V_{1/2}$) was about 880 mV, while that of single tunnel junctions (STJs) was about 450 mV. For the DTJs with discontinuous middle Co₉₀Fe₁₀ layers, it was found that the resistance increased remarkably and the magnetic field response decreased in MR curves. The discontinuous Co₉₀Fe₁₀ layers showed superparamagnetic behavior in magnetization curves.

(Received November 6, 2003; Accepted December 24, 2003)

Keywords: tunnel magnetoresistance, double tunnel junction, nanoparticles, co-tunneling

1. はじめに

1995年に室温で大きなトンネル磁気抵抗効果(TMR)が得られてから^{1,2)}, センサー, 磁気ヘッド, 固体不揮発性メモリ(MRAM)などへの応用に向け, TMRに関する研究が盛んに行われている. 現在 MRAM は実用化段階に入ってきていると言えるが, 今後 DRAM などに代表される半導体メモリとの競合を考えると, さらなる大容量化, 高速化を目指す必要がある. しかしそのための問題点として, 強磁性トンネル接合(MTJ)の磁気抵抗(MR)比がバイアス電圧により減少することが挙げられる. 通常 MTJ に数百 mV 程度のバイアス電圧を印加することでメモリ読み出しを行うが, MR 比や出力が低下するため高速性を損なう. このようなバイアス電圧依存性の起源として, バリア中の磁性不純物³⁾, バリア中の欠陥による Two-step Tunneling⁴⁾, バリア表面でのマグノン励起によるスピントリップ⁵⁾などが考えられている. この MR 比の急激な減少を改善する方法として, バリア層を2層有する二重トンネル構造, DTJ(Double Tunnel Junction)が提案されている^{6,7)}. 2層のバリアの存在により, 電圧が分散され, 1層のバリアしか持たない STJ(Single Tunnel Junction)と比較して大幅に MR 比のバイアス電圧依存性が改善される.

また近年, 強磁性微小トンネルにおける伝導現象に注目が

集まっている. 例えば, Coulomb staircase の発生や co-tunneling による MR 比のエンハンスなど⁸⁻¹⁰⁾, マクロな系とは大きく異なった伝導過程をとる. 前述の DTJ においても, 2つのバリア層に上下を囲まれた中間部強磁性層を極薄に作製することで, 強磁性層を非連続的とさせ, 微粒子として二次元的に配列する構造をもつナノ粒子二重トンネル接合が作製できる. 近年, この構造において室温においても大きな Coulomb gap が報告され¹¹⁾, これを応用したスピン単電子デバイスなど, 新しいデバイスの創生につながると期待されている.

本論文では, まず連続的な中間磁性層を有する DTJ について MR 比のバイアス依存性を調べ, 次に非連続な中間部磁性層を有する DTJ を作製し, 伝導特性の変化を観察することを目的とする.

2. 実験方法

試料の作製には超高真空スパッタ装置を用い, 到達真空度は 5×10^{-7} Pa 以下, Ar ガス圧は 0.05~0.09 Pa で行った. 今回作製した試料は上下強磁性体を固着し, 中間磁性層をフリー層としたデュアルピン構造である. 実際の膜構成は, (Si/SiO₂) Sub./ (Ta/Cu) Buffer/IrMn (12)/Co₉₀Fe₁₀ (3)/AlO_x (1.1)/Co₉₀Fe₁₀ (t)/AlO_x (1.1)/Co₉₀Fe₁₀ (3)/IrMn (12)/Ta (4 nm), とした.

中間磁性層の膜厚 t は, 0.7~6.0 nm まで変化させた. Al 層の酸化には純 O₂ を導入し, プラズマ酸化法により行っ

^{*1} 2003 年 10 月 13 日日本金属学会秋期大会にて発表

^{*2} 東北大学大学院生(Graduate Student, Tohoku University)

た．成膜中は外部磁界として約 15 kAm^{-1} を印加している．微細加工には電子線リソグラフィーおよび Ar イオンミリング装置を用い，接合面積は $10 \times 10 \sim 50 \mu\text{m} \times 50 \mu\text{m}$ である．また一部の試料については磁場中熱処理を， $1 \times 10^{-4} \text{ Pa}$, 120 kAm^{-1} , 250°C の条件で行った．抵抗測定は直流 4 端子法，磁化測定は VSM により行った．測定はすべて室温である．

3. 実験結果および考察

3.1 連続な中間磁性層をもつ DTJ

中間磁性層の膜厚 $t = 6.0 \text{ nm}$ の試料について，磁場中熱処理後の MR 曲線を Fig. 1 に示す．MR 比は 35.7% と，大きな値が得られた．MR 曲線には， $20 \sim 30 \text{ kAm}^{-1}$ の磁界において，上下ピン層のピニング力 (H_{ex}) が異なることにより，曲線が 2 段になっている様子が見られる．これは，ラフネスや成膜順序などによる影響により，界面状態や結晶性が異なるためであると考えられる．この段差は数十 kAm^{-1} 付近の磁界で発生するため実用上は問題なく，膜厚の調整などで小さくすることができる．また段差の縦軸方向の大きさが，

それぞれ上下のバリアを介した抵抗変化に対応する．この DTJ では段差がほぼ等しく，良好な接合が作製できたと考えられる．

次に MR のバイアス電圧依存性を Fig. 2 に示す．図はゼロバイアス時の MR 比を 1 として規格化してある．比較として下ピン構造の STJ ((Si/SiO₂) Sub./ (Ta/Cu) Buffer/ IrMn/Co₉₀Fe₁₀ (3)/AlO_x (1.1)/Co₉₀Fe₁₀ (4 nm)/Ta) を示してある．この STJ の MR 比は磁場中熱処理後，最高 44% を示した．STJ と比較し，DTJ では大幅にバイアス依存性が改善されている様子が見られる．STJ において，MR 比が半減するバイアス電圧 (V_h) は 450 mV であったが，DTJ の V_h は 880 mV となり約 2 倍もの増大が見られた．

3.2 非連続な中間磁性層をもつ DTJ

まず，2 層のバリアの間に磁性層を非常に薄く成膜し，磁化測定を行った．膜構成は (Si/SiO₂) Sub./ (Ta/Cu) Buffer/ AlO_x (1.1)/Co₉₀Fe₁₀ (t)/AlO_x (1.1 nm)/Ta，である．例として $t = 1.0 \sim 2.0 \text{ nm}$ の結果を Fig. 3 に示す．試料すべてにおいて， 400 kAm^{-1} の磁界印加でほぼ飽和し，その磁化はほぼ等しくなるが，曲線の形状が異なる． $t = 1.5, 2.0 \text{ nm}$ のときは，一部超常磁性を示しているが，低磁界付近で磁化が急激に反転を起こす様子が見られ，大部分が層状であると予想される．一方， $t = 1.0 \text{ nm}$ 以下では超常磁性的なヒステリシスに変化し，微細な磁性粒子がバリア中に分散された状態で

Fig. 1 MR curve of the DTJ ($t = 6.0 \text{ nm}$, junction size : $10 \mu\text{m} \times 10 \mu\text{m}$).

Fig. 2 Bias voltage dependence of normalized MR ratios for both the DTJ ($t = 6 \text{ nm}$, solid line) and the STJ (dashed line).

Fig. 3 Magnetic field dependence of magnetization for the DTJs (sample size : $8 \text{ mm} \times 8 \text{ mm}$) with the middle ferromagnetic layer thickness of $t =$ (a) 2.0, (b) 1.5 and (c) 1.0 nm.

Fig. 4 MR curves of the DTJs with $t =$ (a) 2.0 (junction size : $10 \mu\text{m} \times 10 \mu\text{m}$), (b) 1.5 ($10 \mu\text{m} \times 10 \mu\text{m}$) and (c) 0.7 nm ($50 \mu\text{m} \times 50 \mu\text{m}$).

あると考えられる。

以上をもとに、中間磁性層の状態が異なる 3 種類の DTJ を作製した。つまり、中間磁性層の大部分が層状な $t = 2.0, 1.5$ nm の DTJ、微細粒子である $t = 0.7$ nm の DTJ を作製した。これらの構造について、MR 比ならびに MR 曲線より検証していく。MR 曲線の測定結果を Fig. 4 に示す(全て as-deposited)。 (a) $t = 2.0$ nm では MR 比は 22%，抵抗率 (RA) は $44 \text{ k}\Omega \cdot \mu\text{m}^2$ であり、 $t = 6$ nm の時と大きく異なる点は見られなかった。 (b) $t = 1.5$ nm では、MR 比は 14% に減少し、一方 RA は $t = 2.0$ nm のときと比較すると、約 20 倍の増大が見られた。また、中間磁性層の磁化反転に対応するヒステリシスは非常に細くなり、超常磁性的振舞いが見られ始めたと考えられる。 (c) $t = 0.7$ nm ではさらに RA が 100 倍も増大し、MR 比は 400 kA/m^{-1} の外部磁界範囲で 2% 弱と小さい値を示した。さらに、MR 曲線の形状はそれ以上の膜厚で見られていたものとは大きく異なり、磁場応答性の著しい低下が見られた。これは中間磁性層が層を保てなくなり、島状、粒子状に変化したため、超常磁性的な挙動を示したためであると考えられる。一方上下ピン層は、MR 曲線に 20 kA/m^{-1} 程度のシフトが見られるため、正常に機能していると考えられる。以上により、バリア-中間磁性層間における伝導特性のみが大幅に変化していると考えられる。

ここで $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$ 粒子が超常磁性を室温で示す大きさを見積もることとする¹²⁾。磁性体の体積を $v(\text{m}^3)$ 、異方性定数を $K_u(\text{J} \cdot \text{m}^{-3})$ 、温度を $T(\text{K})$ とし、磁化の緩和時間を $\tau(\text{s})$

Fig. 5 I - V curve of the DTJ with Simmons' fitting for $t = 0.7$ nm. Solid line shows experimental data and dashed line shows Simmons' fitting result. Low bias region is shown in the inset.

とすると、

$$\tau = 10^{-9} \cdot \exp\left(\frac{vK_u}{kT}\right) \quad (1)$$

の関係がある。ここで中間磁性層はほぼ $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$ で占められていると考え、かつ完全な球状であると仮定し、 $K_u = 4 \times 10^5 \text{ J} \cdot \text{m}^{-3}$ 、 $T = 300 \text{ K}$ 、 $\tau = 100 \text{ s}$ とすると、体積 v は約 $2.6 \times 10^{-25} \text{ m}^3$ となる。これは直径にすると約 4 nm に相当し、この粒径以下で超常磁性となる。本研究では $t = 1.0 \sim 1.5$ nm の間で超常磁性を示し始めたため、バリア中に存在している粒子はかなり平たい形状であると予想される。しかし、どのように強磁性体が分散しているかを確実に知るためには、断面 TEM 写真などで調べる必要がある。

最後に I - V 曲線と Simmons の式によるフィッティング結果を、 $t = 0.7$ nm の試料について Fig. 5 に示す。実線が実験値、点線がフィッティングの計算結果である。ここでは 400 kA/m^{-1} の磁界を印加して測定を行っている。フィッティングの結果、実効バリア膜厚 t_{eff} は 2.3 nm となった。実際、上下のバリアが接触していると考えられるため、この値は設計バリア膜厚に近いと考えられる。また、バリア高さ ϕ は、 $1.3 \times 10^{-19} \text{ J}$ (0.79 eV) であった。低バイアス電圧下ではフィッティング曲線からずれが生じており、これはナノ粒子二重トンネル接合の構造に起因しているためだと考えられる。つまり絶縁層中に伝導体が存在し、実効的なバリア高さを小さくしていると予想される。今後、低温での測定などによる詳細な調査が必要である。

4. ま と め

デュアルピン構造の DTJ を作製し、中間磁性層が連続なものと非連続なものについて考察した。中間磁性層が連続な DTJ では STJ と比較し V_h が 2 倍近く大きくなり、MRAM の高速化に有効な構造であることが示された。また中間磁性層が非連続な DTJ は膜厚を 1 nm 以下にすることで得られ、急激な抵抗変化、MR 曲線の形状の変化として現れた。

文 献

- 1) T. Miyazaki and N. Tezuka: J. Magn. Magn. Mater. **139**(1995) L231-L234.
- 2) J. S. Moodera, L. R. Kinder, T. M. Wang and R. Merservey: Phys. Rev. Lett. **74**(1995) 3273-3276.
- 3) J. Inoue: J. Phys. D, Appl. Phys. **31**(1998) 643-648.
- 4) J. Zhang and R. M. White: J. Appl. Phys. **83**(1998) 6512-6544.
- 5) S. Zhang, P. M. Levy, A. C. Marley and S. S. P. Parkin: Phys. Rev. Lett. **79**(1997) 3744-3747.
- 6) F. Montaigne, J. Nassar, A. Vaurès, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, A. Schuhl and A. Fert: Appl. Phys. Lett. **73**(1999) 2829-2831.
- 7) K. Inomata, Y. Saito, K. Nakajima and M. Sagoi: J. Appl. Phys. **87**(2000) 6064-6066.
- 8) K. Inomata and Y. Saito: Appl. Phys. Lett. **73**(1998) 1143-1145.
- 9) K. Yakushiji, S. Mitani, K. Takanashi and H. Fujimori: J. Appl. Phys. **91**(2002) 7038-7040.
- 10) S. Takahashi and S. Maekawa: Phys. Rev. Lett. **80**(1998) 1758-1761.
- 11) K. Nakajima and K. Inomata: J. Magn. Magn. Mater., to be published.
- 12) K. Inomata and Y. Saito: Appl. Phys. Lett. **61**(1992) 726-728.