強磁性体/Al-Oxide/Co 接合のトンネル磁気抵抗効果の 印加電圧及び温度依存性

Voltage and Temperature Dependence of the TMR Effect for Ferromagnet/Al-Oxide/Co Junctions

大兼幹彦・手束展規・宮崎照宣

東北大学大学院工学研究科応用物理学専攻, 仙台市青葉区荒巻字青葉08 (〒980-8579)

M. Oogane, N. Tezuka, and T. Miyazaki

Department of Applied Physics, Graduate School of Engineering, Tohoku University, Aoba-yama 08, Sendai 980-8579

(1998年10月14日受理、1999年1月21日採録)

Ferromagnetic tunneling junctions with various thicknesses of the first ferromagnetic layer were fabricated. Co and $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ were used as the first ferromagnetic layer, and their thicknesses were varied between 10 and 200 Å. The voltage and temperature dependence of the tunneling magnetoresistance (TMR) ratio and conductance characteristic were investigated for these junctions. A drastic decrease in the conductance near the zero bias in the conductance-voltage characteristics (zero-bias anomaly) was observed in some junctions. A rapid decrease in the TMR ratio below 5 mV and 50 K was also observed in the same junctions. A slight decrease in the TMR ratio above 10 mV and 100 K was observed in all junctions. We investigated the origin of the voltage and temperature dependence of the TMR ratio by taking account of the magnetic impurity and magnon effect.

Key words: tunneling magnetoresistance (TMR), zero-bias anomaly, magnetic impurity, magnon

1. はじめに

強磁性トンネル接合(強磁性体/絶縁体/強磁性体)が、室温で大きな磁気抵抗(TMR)比を示すことが報告されて以来^{1,2)}, 再生用磁気ヘッド, 磁気メモリなどへ応用すべく, 近年, 様々な研究が行われている。しかし, 実用化に際する問題点の一つに, 印加電圧及び温度の増加に伴ないTMR比が減少する問題がある³⁾。従って, この原因を明らかにし, TMR比の印加電圧・温度依存性の小さなトンネル接合を作製することが重要である。

また, 物理的な観点においても, Julliere⁴⁾, Slonewski⁵⁾, Maekawaら⁶⁾が示した単純なバンドモデルによるTMRの計算では, 報告されているような大きな印加電圧・温度依存性を説明できず, 非常に興味深い。

最近, TMR比の大きな印加電圧・温度依存性を, ①強磁性体/絶縁体界面もしくは絶縁体内部に存在する磁性不純物または②マグノンの効果を取り入れた計算で説明する試みが

なされている^{7,8)}。また, 磁性不純物を介したトンネル過程では, 低温, ゼロバイアス付近でトンネルコンダクタンスの異常な振る舞い(zero-bias anomaly)を示し⁹⁾, この種のanomalyは界面構造に起因する事が知られている^{10,11)}。従って, 強磁性トンネル接合においても, 強磁性体/絶縁体界面の構造がTMR比及び伝導特性に大きな影響を及ぼすと考えられる。しかし, 界面状態とTMR比との関係を調べた実験報告は少なく, 系統的な実験が必要であると思われる。また, マグノンとTMR比との関係を調べた報告も同様に少ない。^{12,13)}

そこで, 1層目の強磁性体(Co, $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$)の膜厚を変化させた, 強磁性体(Co, $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$)/Al-oxide/Co接合を作製し, 強磁性体の種類とその膜厚の違いによるTMR比の印加電圧・温度依存性及びコンダクタンスのzero-bias anomalyの変化を調べた。また, 磁性不純物及びマグノンの効果を取り入れた理論計算の結果を実験結果にフィッティングすることにより, それらがTMR比の印加電圧・温度依存性に及ぼす影響について検討した。

2. 実験方法

マグネトロンスパッタ法を用い, $\text{Al}(d_{\text{Al}} \text{ Å})/\text{Co}(d_{\text{Co}})/\text{Al}(14 \text{ Å})\text{-oxide}/\text{Co}(750 \text{ Å})$ 及び $\text{Al}(d_{\text{Al}} \text{ Å})/\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}(d_{\text{NiFe}} \text{ Å})/\text{Al}(14 \text{ Å})\text{-oxide}/\text{Co}(750 \text{ Å})$ の十字型接合を作製した。接合面積は, $100 \times 100 \sim 500 \times 500 \text{ } \mu\text{m}^2$ まで同一基板上で変化させた。到達真空度は $3 \times 10^{-5} \text{ Pa}$ 以下である。 $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$, Alはrfスパッタ法によりAr圧, 投入電力をそれぞれ1.0 Pa, 2.2 W/cm², および0.2 Pa, 4.4 W/cm²として成膜した。Coはdcスパッタ法によりAr圧, 投入電力を1.0 Pa, 0.9 W/cm²として成膜した。 d_{Co} , d_{NiFe} を10~200 Åに変化させたが, 下部電極の膜厚を変えることでTMR比に影響が及ぶことを考慮して, 下地層としてAlを $d_{\text{Al}} = [200 - (d_{\text{Co}}, d_{\text{NiFe}})] \text{ Å}$ 成膜し, 下部電極の全膜厚は200 Å一定とした。また, 絶縁層はAlの表面を60℃の恒温槽中で48時間自然酸化させることで作製した。TMR測定は直流四端子法で, 磁化測定はVSM, SQUIDを用いて行った。また, 測定は最大印加磁界1 kOeで行った。

3. 実験結果

3.1 TMR比の印加電圧 (V) 及び温度 (T) 依存性

Figs. 1, 2にそれぞれ, $\text{Co}(d_{\text{Co}})/\text{Al-oxide}/\text{Co}$ 及び $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}(d_{\text{NiFe}})/\text{Al-oxide}/\text{Co}$ 接合における TMR 比の印加電圧・温度依存性の一例を示す. 実線及び破線については考察で触れる. Fig. 2 の $d_{\text{NiFe}} = 200 \text{ \AA}$ の接合を除いては, 全接合において, TMR 比は印加電圧及び温度の増加に伴い減少する. しかし, TMR 比の減少の度合いは印加電圧及び温度領域によって異なっている. $d_{\text{Co}} = 200, 100, 50 \text{ \AA}$ 及び $d_{\text{NiFe}} = 100, 20 \text{ \AA}$ の接合では, $V < 5 \text{ mV}$, $T < 50 \text{ K}$ の領域で TMR 比は急激に減少する. また, すべての接合において $V > 10 \text{ mV}$, $T > 100 \text{ K}$ の領域で, TMR 比は緩やかに減少する.

なお, $d_{\text{NiFe}} = 200 \text{ \AA}$ の接合では, $4.2 \sim 50 \text{ K}$ の領域で温度の増加と共に TMR 比はわずかに増加する. これは, TMR 曲線の形状から, $T < 50 \text{ K}$ の領域で磁気異方性が増大し, 両強磁性層の磁化の反平行状態が徐々に実現できなくなっているためと考えられる.

3.2 コンダクタンス (G) - 電圧 (V) 特性

Figs. 3, 4に $G-V$ 特性を示す. ここで示した接合は, Figs. 1, 2と対応している. TMR 比が, $V < 5 \text{ mV}$, $T < 50 \text{ K}$ の領域で急激な減少を示した $d_{\text{Co}} = 200, 100, 50 \text{ \AA}$ 及び $d_{\text{NiFe}} = 100, 20 \text{ \AA}$ の接合では, ゼロバイアス近傍で電圧の増加に伴い, コンダクタンスは減少する ($d_{\text{NiFe}} = 100 \text{ \AA}$ の接合については変化が小さかったため, ゼロバイアス近傍の拡大

図も示した). 一方, $d_{\text{Co}} = 30 \text{ \AA}$ 及び $d_{\text{NiFe}} = 50 \text{ \AA}$ の接合では, ゼロバイアス近傍でコンダクタンスの急激な増加を示している. このようなゼロバイアス近傍でのコンダクタンスの変化は, zero-bias anomaly と呼ばれ, これまでにいくつかのトンネル接合について報告されており⁹⁾, 界面状態と密接な関係があるといわれている. しかし, 1層目の強磁性体の膜厚と zero-bias anomaly の大きさに関連は見られていない. これは, 膜厚よりも, トンネル接合を作製する際のわずかな条件の違いの方がより界面状態に影響を及ぼしているためと考えられる.

ゼロバイアス近傍を除いては, コンダクタンスは電圧の増加と共に単調増加する.

4. 考察

4.1 磁性不純物の効果

$G-V$ 特性において $d_{\text{Co}} = 200, 100, 50 \text{ \AA}$ 及び $d_{\text{NiFe}} = 100, 20 \text{ \AA}$ の場合に観測されたゼロバイアス近傍でコンダクタンスが減少を示すタイプの zero-bias anomaly は, 強磁性体/絶縁体界面に磁性不純物を仮定したモデルで説明されている⁷⁾. 従って, このタイプの anomaly を示した接合では, 界面もしくは絶縁体中に Co 及び $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ による磁性不純物が存在していると考えられる. そこで, 磁性不純物が TMR 比に及ぼす影響

Fig. 1 (a) Voltage and (b) temperature dependence of the TMR ratio for $\text{Co}(d_{\text{Co}})/\text{Al-oxide}/\text{Co}$ junctions. Solid and dashed lines show the results of fitting taking account of impurity and the magnon effect, respectively.

Fig. 2 (a) Voltage and (b) temperature dependence of the TMR ratio for $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}(d_{\text{NiFe}})/\text{Al-oxide}/\text{Co}$ junctions. Solid and dashed lines show the results of fitting taking account of impurity and the magnon effect, respectively.

Fig. 3 Conductance-voltage characteristic for Co(d_{Co})/Al-oxide/Co junctions.

Fig. 4 Conductance-voltage characteristic for Ni₈₀Fe₂₀(d_{NiFe})/Al-oxide/Co junctions.

について考察を行った。

井上らは, Appelbaum¹⁰⁾やAnderson¹¹⁾のモデルを拡張し, Fig. 5(a)に示すように, 絶縁体界面もしくは内部に磁性不純物の存在を仮定し, 電子がトンネルする際に, この磁性不純物によって, スピンをフリップするモデルを用いて, TMR比の温度依存性を計算した⁷⁾. その結果, スピンフリップを伴うコンダクタンス(G_{sd})とノーマルコンダクタンス(G_t)の割合(G_{sd}/G_t)が増加するに従い, TMR比の温度変化が大きくなる事を示している. この計算結果を用いて, 実験結果にフィッティングすることで, 磁性不純物のTMR比への影響を検討した. その結果をFigs. 1, 2の実線で示す. フィッティン

グは, $G-V$ 特性においてゼロバイアス近傍でコンダクタンスの減少を示した $d_{Co} = 200, 100, 50$ Å及び $d_{NiFe} = 100, 20$ Åの接合について行った. ただし, それぞれの接合の有効分極率を4.2 KでのTMR比から見積もり, スピンは $S = 3/2$, 内部磁界は $\mu_{eff} = 110$ kOeと仮定し, G_{sd}/G_t をフィッティングパラメータとした. 見積もったスピン分極率の値は, $d_{Co} = 200, 100, 50$ Åの接合ではそれぞれ, 0.26, 0.27, 0.32とし, $d_{NiFe} = 100, 20$ Åの接合ではそれぞれ, 0.23, 0.10とした. このフィッティング結果は, $T < 100$ Kの領域で実験結果と良い一致を示している. なお, この結果は筆者らにより先に報告した³⁾Fe/Al-oxide/Fe接合の結果とも矛盾しない.

Table 1には, フィッティングにより求めた G_{sd}/G_t の値を示す. なお, 実験結果から得られたpeak magnitude及びTMR(50 K)/TMR(4.2 K)の値も示す. peak magnitudeは, $G-V$ 特性において0.5 mVでのコンダクタンスを $G_{0.5mV}$, コンダクタンスの最小値を G_{min} とした時に, $(G_{0.5mV} - G_{min})/G_{min}$ (%)と定義したもので, zero-bias anomalyの大きさを示している. TMR(50 K)/TMR(4.2 K)は, 温度が50 KでのTMR比が4.2 Kでのそれよりどの程度減少したかを示す量で, 値が小さい程 $T < 50$ KでのTMR比の減少率が大きい事を示している. 表より, peak magnitudeが大きいほど, TMR(50 K)/TMR(4.2 K)の値が小さくなり, G_{sd}/G_t の値が大きくなっている事が分かる. このことから, これらの接合における, $T < 50$ Kの領域でのTMR比の急激な減少は, 磁性不純物の存在に起因しており, スピンフリップを伴うコンダクタンスの割合が大きいほど, TMR比の減少の度合いが大きいと考えられる.

4.2 マグノンの効果

Figs. 1, 2の図(b)に見られるように, 磁性不純物を考慮した計算結果では, $T > 100$ KでTMR比はほぼ一定になり, この温度領域でのTMR比の緩やかな減少を説明できない. そこで, マグノンがTMR比に及ぼす影響について検討する. Zhangらは, Fig. 5(b)に示すように, 電子がトンネルする際, 界面でマグノンを吸収もしくは生成し, スピンをフリップしてトンネルするモデルを用いて, トンネルコンダクタンスの計算を行い⁸⁾,

$$G_a(V) = G_a(0 \text{ mV}, 0 \text{ K}) + cB_a V, \quad (1),$$

$$G_a(T) = G_a(0 \text{ mV}, 0 \text{ K}) + c'B_a T \ln(k_B T / E_c), \quad (2),$$

という関係を導いた. (1)式は, コンダクタンスの $T \rightarrow 0$ Kでの印加電圧依存性, (2)式は, $V \rightarrow 0$ mVでの温度依存性を示している. ここで, a は磁化の平行状態(p), 磁化の反平行状態(ap)をそれぞれ示しており, c は両強磁性体のスピン量子数, キュリー温度, スピンに依存したトンネルマトリックスに依存する定数, c' は両強磁性体のスピン量子数, キュリー温度に依存した定数, E_c はマグノンのカットオフエネルギーである. また, $B_p = 2D_\uparrow D_\downarrow$, $B_{ap} = (D_\uparrow)^2 + (D_\downarrow)^2$ であり, $D_\uparrow, D_\downarrow$ はそれぞれmajority及びminorityスピンの状態密度を示している.

(1), (2)式を磁化の平行状態, 反平行状態, それぞれのコンダクタンスの印加電圧・温度依存性の実験結果にフィッティングし, その結果からTMR比を求めたものを, Figs. 1, 2の破線で示す. ただし, $G_a(0 \text{ mV}, 0 \text{ K})$ には, 1 mV, 4.2 Kでの

Fig. 5 Schematic expressions for (a) the impurity and (b) the magnon effect model.

Table 1 Summary of the temperature dependence of TMR and the zero-bias anomaly for $(\text{Co}, \text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20})/\text{Al-oxide}/\text{Co}$ junctions.

$d_{\text{Co}}(\text{\AA})$	Peak magnitude (%)	TMR (50K)		$\frac{G_{\text{sd}}}{G_{\text{t}}}$
		TMR (4.2K)		
200	4.5	0.90		0.08
100	20.8	0.75		0.22
50	9.2	0.85		0.13

$d_{\text{NiFe}}(\text{\AA})$	Peak magnitude (%)	TMR (50K)		$\frac{G_{\text{sd}}}{G_{\text{t}}}$
		TMR (4.2K)		
100	0.1	0.82		0.17
20	3.5	0.50		0.75

コンダクタンスの値を用いた。フィッティング結果は、すべての接合で、 $V > 10$ mV, $T > 100$ Kの領域で実験結果と良い一致を示している。従って、 $V > 10$ mV, $T > 100$ Kの領域でのTMR比の緩やかな減少は、マグノンの効果で説明できると考えられる。

5. まとめ

1層目の強磁性体にCo, $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ を用い、その膜厚を変化させた強磁性体 $(\text{Co}, \text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20})/\text{Al-oxide}/\text{Co}$ 接合を作製し、TMR比の印加電圧・温度依存性を調べた。さらに、磁性不純物、マグノンの効果によりトンネル電子がスピンフリップするモデルを用いて、TMR比の印加電圧・温度依存性の説明を試

み、以下の結果を得た。

①4.2 Kにおいて、 $G-V$ 特性を測定した結果、ゼロバイアス付近で印加電圧の増加に伴い、コンダクタンスが減少するタイプのzero-bias anomalyが観測された。このタイプのzero-bias anomalyが観測されたトンネル接合では、 $V < 5$ mV, $T < 50$ Kの領域で、印加電圧・温度の増加に伴いTMR比は急激に減少した。また、peak-magnitudeが大きい接合ほど、TMR比の印加電圧・温度依存性は大きくなった。このTMR比の急激な減少については、磁性不純物を仮定した井上らの計算結果を用いて実験結果を再現した。

②また、すべての接合において見られた、 $V > 10$ mV, $T > 100$ Kの領域でのTMR比の緩やかな減少については、マグノンを仮定したモデルを用いて、ほぼ説明できることが明らかとなった。

謝辞 本研究は旭硝子財団、三菱財団、矢崎財団の研究助成、情報ストレージ研究推進機構(SRC)研究助成、NEDO国際共同研究助成、科学研究費助成金(基盤研究008405001および特定領域研究「微小領域の磁性と伝導」09236101)、により行われている。

文 献

- 1) T. Miyazaki and N. Tezuka: *J. Magn. Magn. Mat.*, 139, L231 (1995).
- 2) J. S. Moodera, L. R. Kinder, T. M. Wong and R. Meservey: *Phys. Rev. Lett.*, 74, 3273 (1995).
- 3) N. Tezuka and T. Miyazaki: *Jpn. J. Appl. Phys.*, 37, L218 (1998).
- 4) M. Julliere: *Phys. Lett.*, 54A, 225, (1975).
- 5) J. C. Slonczewski: *Phys. Rev. B*, 39, 6995 (1989).
- 6) S. Maekawa and U. Gafvert: *IEEE. Trans. Magn.*, MAG-18, 707 (1982).
- 7) J. Inoue and T. Maekawa: submitted to *Phys. Rev.*
- 8) S. Zhang, P. M. Levy, A. C. Marley and S. S. P. Parkin: *Phys. Rev. Lett.*, 79, 3744 (1997).
- 9) L. Y. L. Shen and J. M. Rowell: *Phys. Rev.*, 165, 566 (1968).
- 10) J. Appelbaum: *Phys. Rev. Lett.*, 17, 91, (1966).
- 11) P. W. Anderson: *Phys. Rev. Lett.*, 17, 95, (1966).
- 12) Jagadeesh S. Moodera, Janusz Nowak, and Rene J. M. van de Veerdonk: *Phys. Rev. Lett.* 80, 2941 (1998)
- 13) Chang He Shang, Janusz Nowak, Ronnie Jansen, and Jagadeesh S. Moodera: *Phys. Rev. B*, 58, R2941 (1998).