$\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Co}/\text{N}(\text{N}=\text{Ta}, \text{Cu}, \text{Al})/\text{Al-oxide}/\text{Co}$ 接合における磁気抵抗効果

Tunnel Magnetoresistance Effect for $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Co}/\text{N}(\text{N}=\text{Ta}, \text{Cu}, \text{Al})/\text{Al-Oxide}/\text{Co}$ Junctions

大坊忠臣・手束展規・久保田均・安藤康夫・林将光・宮崎照宣・Changkyung Kim*・Ohsung Song**

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

*Division of Materials Science and Engineering, Hanyang University
17 Hangdang, Sungdong, Seoul 133-791, Korea

**Department of Materials Science and Engineering, The University of Seoul
90 Cheonnong, Tongdaemun, Seoul 130-743, Korea

T. Daibou, N. Tezuka, H. Kubota, Y. Ando, M. Hayashi, T. Miyazaki
C. Kim* and O. Song**

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

(1999年10月28日受理, 2000年1月25日採録)

The effect on the tunneling magnetoresistance (TMR) of inserting the nonmagnetic metals (NMs) Al, Cu, and Ta between the insulator and ferromagnetic layer of a tunnel junctions was investigated. The TMR ratio for a junction with Ta decreased rapidly with increasing Ta thickness, while that for a junction with Al remained more than 50 Å of the thickness. From cross-sectional TEM and AFM measurement, it was found that a junction with thick Al has an insulating layer on both sides of the metallic Al; that is, it would be a double-barrier tunnel junction. We compared the experimental result for the metallic Al thickness dependence of the TMR ratio with the theory of double tunnel junctions. Consequently, the spin diffusion length of Al was estimated to be sub-micrometer.

Key words: Tunneling magnetoresistance effect, thickness of nonmagnetic metals, double-barrier tunnel junction, spin diffusion length

1. はじめに

1970年代初頭, Meservey¹⁾らにより強磁性体のスピン分極率が測定された. スピン分極率はフェルミ面付近のエネルギー帯における $\uparrow$, $\downarrow$ 電子数の比率と定義し, 強磁性体固有の量であるとされ, 測定にはトンネル効果を利用している. この時, フェルミエネルギー付近の電子が伝導を担うことから, 強磁性体中を流れる電流は分極 (spin polarization) していると考えることが出来る. このような背景のもとに, 現在までトンネル磁気抵抗効果²⁾に代表される様々なスピン依存伝導現象が実験, 理論の両面から報告されている. spin polarization という考え方は, 例え

ばスピントランジスタ³⁾などの次世代スピンドバイスの構築と言う観点からも大変に重要である. 但し, 非磁性体を介した伝導に際し, スピンの緩和が伴うと考えられており設計を困難にしている. 例えば非磁性体を強磁性体でサンドイッチしたCPP-MR⁴⁾では非磁性体の厚さに対して磁気抵抗 (MR) 比が減少することが報告され, spin diffusion length (λ_s) が数十Åと見積もられている. 又, M. Johnsonはスピントランジスタを利用し, Auの場合 $\lambda_s=1.5 \mu\text{m}$ ⁵⁾と報告している. この, スピン緩和の起源は非磁性体中のスピン軌道相互作用⁶⁾であると考えられている. 又, 強磁性トンネル接合において強磁性体/絶縁体界面に非磁性体Cuを挿入した実験が報告されている⁶⁾. それによればCu厚(d_{Cu})が増えるにつれてTMR比は急峻に減少し, $d_{\text{Cu}}=5 \text{Å}$ 程度で $d_{\text{Cu}}=0 \text{Å}$ でのTMR比の半分以上にまで減少している. Meservey⁷⁾等は sub. /Fe/Au/Al-oxide/Al 接合でFe/Auのスピン分極率がAu膜厚の増加に対して減少することを観測した. このように非磁性物質はスピンを緩和させると考えられる. よって, 非磁性物質ごとにその緩和の強さを系統的に調べることは, 基礎物性の観点から, 又は, デバイス設計の面でも非常に興味深い.

本研究では, 非磁性物質としてAl, Cu, Taを選び, それらを強磁性トンネル接合の絶縁体, 強磁性体の界面に挿入した. これらの接合についてTMR比の非磁性膜厚依存性を明らかにし, TMR接合における λ_s について議論した.

2. 実験方法

ICPマグネトロンスパッタ法を用いて sub. (Si, SiO_2)/ $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ (170 Å)/Co (48 Å)/Al or Ta (d_{N})/Al-oxide (13 Å)/Co (750 Å) 接合と sub. (Si, SiO_2)/ $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ (170 Å)/Co (48 Å)/Al-oxide (13 Å)/Cu (d_{Cu})/Co (750 Å) 接合をメタルマスクにより作製した. 接合面積 $100 \times 100 \mu\text{m}^2$ である. $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$, Co, Ta, Cu, Alの成膜条件はアルゴンガス圧が0.08Pa, 投入電

力がtarget 150W, coil 20Wである。絶縁障壁Al-oxideはAlを13 Å成膜後、1 Pa(Ar:O₂=3:1)で、targetに10 W, coilに100 W投入して酸素プラズマを生成し、Al表面を酸化させて形成した。酸化時間は210秒とした。得られた接合のトンネル磁気抵抗曲線は室温で約1mVの電圧を印加し、直流四端子法で測定した。この時の最大印加磁場は500 Oeである。絶縁層の局所伝導特性⁹⁾はAFMに導電性の探針を用い、絶縁層の表面を走査すると同時に探針にバイアスを印加し、流れる電流をマッピングする手法で行った。膜の断面構造は断面TEM写真により調べた。

3. 実験結果

Fig. 1に強磁性体と絶縁体界面に非磁性体Al, Cu, Taを挿入した強磁性トンネル接合について、室温におけるTMR比の非磁性膜厚(d_N)依存性を示す。TMR比のばらつきは、それぞれの接合、非磁性膜厚において数%以下と小さい。非磁性体が挿入されていない場合は、16%のTMR比を示し、非磁性膜厚が増えるにつれて、いずれの接合についてもTMR比は減少する。しかし、その減少傾向は非磁性物質によって大きく異なっている。非磁性体がTaの場合、TMR比はTa膜厚の増加に対し急激な減少を示し、 $d_{Ta}=10$ Å程度でTMR比は消失する。Cuの系では、 $d_{Cu}=15$ Å程度でTMR比は $d_{Cu}=0$ Åの場合の値の半分に減少し、 $d_{Cu}=25$ Åで1%以下になる。一方、非磁性体がAlの場合には $d_{Al}=20$ Å程度までTMR比は16%を保ち、それから緩やかに減少している。さらに $d_{Al}>50$ Åで再び上昇し、60 Å付近で小さなピークを示している。このようにTMR比は非磁性膜厚に対してTa, Cu, Alと原子量の重い順に急激に減少している。Moodera⁸⁾等は非磁性体Auを強磁性体と絶縁体界面に挿入し、 $d_{Au}=4$ ÅでTMR比が数%以下になり、 $d_{Au}=6$ Åで負のMRを観測している。またTakanashi⁹⁾等は非磁性体Cuを挿入し、 d_{Cu} の増加に対するTMR比の減少傾向は、Fig. 1の実験結果とほぼ一致している。このように、他のグ

Fig. 1 TMR ratio as a function of the thickness of the non-magnetic metals. ●: Al, ▲: Cu, ×: Ta.

Fig. 2 Cross-sectional TEM images of the tunnel junctions, for (a) a single tunnel junction without nonmagnetic metals, (b) a tunnel junction with Ta inserted between the ferromagnetic layer and insulator, and (c) a tunnel junction with Al inserted between the ferromagnetic layer and insulator.

ループの実験結果を比較しても原子量の重さによりTMR比の減少傾向が異なっており、これは伝導電子のスピンを緩和させる強さに対応していると考えられ、これらの実験結果は非磁性体中のスピンの緩和がスピン-軌道相互作用に起因するという考え方と矛盾ない。

Fig. 2に(a) $d_N=0$, (b) $d_N=50$ Å, (c) $d_N=50$ Å接合の断面TEM写真を示す。非磁性体が挿入されていない接合には、平坦な絶縁層Al-oxideが形成され、ラフネスは $R_a=1$ Å程度である。Taを50 Å挿入した場合、TaはCo上に平坦に成長している。しかも、Al-oxideとTaの界面は比較的平坦な界面を持つためTa層への酸素の拡散も少ないと予想される。拠ってTaの系では理想的なトンネル接合が出来ていると考えられる。一方、強磁性体/絶縁体界面に非磁性体Alを挿入した場合、下部Co磁性層上のAlは非常に膜厚分布が大きく、peak-to-valleyの大きさは60 Å程度である。断面TEM写真からこの層内のAl, Al-oxide界面を観察することは出来ない。これは断面TEM観察に際し接合断面を大気にさらすため、Alの断面が酸化されたためと考えられる。したがって接合中でのAl-oxide層の構造を判断することは難しい。

Alを挿入した場合の絶縁層の形成状態を調べるためにAFM

同時電流測定を行った。Fig. 3 (a)はAl-oxideの表面凹凸像で(b)は同時に測定したトンネル電流の分布像である。またそれぞれの像の実線で示した個所の断面プロファイルを(c), (d)に示す。像の暗部はそれぞれ表面の凹部、電流値の小さい部分を表している。表面には高さが60~70 Å程度の山が形成されており、これはFig. 2の断面TEM像の結果と一致している。又、表面の凹凸像とトンネル電流分布像が良く対応している。すなわち電流分布像からAl-oxide表面の凸部分で電流が流れやすく、凹部で流れにくくなっていることがわかる。

4. 考察

断面TEM写真の結果から、Alを50 Å挿入するとその層構造が大きく乱れることが確認された。そのため、Alの系では非磁性膜厚に対するTMR比の変化がAlの効果だけによるとは言えない。そこでAFM同時電流測定から断面構造を推測し、TMR比のAl膜厚依存性の結果を改めて考察する。

一般にAFM同時電流測定から得られる表面凹凸像と同時測定電流像は対応しない。これは、絶縁層表面の凹凸が必ずしも絶縁層自体の膜厚あるいはバリア高さの分布と一致しないからである。一方、本実験で得られた結果では両者はよく一致しており、構造が伝導に影響を与えていると考えられる。もし、断面TEM像で見られる白い領域がすべてAl-oxideであると仮定すると表面凹凸像における凸の領域で電流は流れにくくなると予想される。しかしながら実験結果はまったく逆の傾向を示している。これらの実験結果を矛盾無く説明できる断面の模式図をFig. 4に示す。接合作製に際し、メタルマスクを用いているため下部磁性層Coを成膜し

た後、試料を大気中に取り出している。この時、Co表面は吸着酸素によって酸化されると考えられる。Alを成膜すると、Co表面酸化層に加えて吸着酸素によるAlの酸化によって、Al層の下部に絶縁層が形成されると考えられる。粗いAl層の表面はプラズマ酸化によって作られたほぼ均一な絶縁層が存在している。そのため結果的にはAlの系では非磁性層Alを中間層とする二重トンネル接合が形成されていると考えることが出来る。このため、凹部分は上部と下部絶縁層が、つながって厚い絶縁層が形成され、結果的に凸部分に比べて電流が流れにくくなっていると考ええると矛盾がない。又、膜厚 $d_{Al} = 60$ Åまでは凸部の電流が支配的で膜厚の増加に伴い電子は緩和され、TMR比は5%以下に下がるが、更に膜厚が増加すると、凹部の厚い絶縁体間にAlのスペーサーが形成され、大きなトンネル電流のパスが生じ、凹部はAlが十分薄くTMR比は大きな値を持つため、 $d_{Al} = 60$ ÅでTMR比は小さなピークを示すと考えられる。

Alの系が強磁性体/絶縁体/非磁性体/絶縁体/強磁性体

Fig. 4 Schematic cross-section of an $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Co}/\text{Al}/\text{Al-oxide}/\text{Co}$ junction.

Fig. 3 (a) Topography and (b) current image measured simultaneously for the surface of the $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Co}/\text{Al}/\text{Al-oxide}$ junction. (c), (d) Cross-sectional profiles for the topography and the current image, respectively.

Fig. 5 TMR ratio as a function of the thickness of Al. The closed circles represent experimental results and the curves represent the calculated values for λ_s .

二重トンネル接合¹¹⁾であると仮定した場合にTMR比の非磁性膜厚依存性がどのようになるか考察する。このような非磁性体を中間層とする強磁性二重トンネル接合では、両強磁性体の磁化の向きが反平行時に非磁性層中にスピンの蓄積が起こることで抵抗の変化が生じる。但し、スピンの蓄積には非磁性体中でスピンの向きが保存されることが必要であり、これは物質のspin diffusion length(λ_s)によって大きく左右される。又、蓄積のし易さには絶縁抵抗値の両接合界面における対称性¹²⁾が効いてくる。これらのことを考慮して高橋ら¹³⁾は磁気抵抗効果の非磁性膜厚依存性を計算した。彼らの理論式に適当なパラメータを代入し計算した結果を、Al系の実験結果とあわせてFig. 5に示す。図中の●は実験値、点線は λ_s を0.1~0.8 μm の間で変化した計算結果を示す。計算では、局所電流測定の結果から上部絶縁抵抗を444 Ω と仮定し、下部絶縁抵抗はこれより小さいと考えられるので1桁小さく44.4 Ω と仮定した。接合面積は断面TEMの結果から $4.3 \times 10^{-9} \text{m}^2$ 、Alの比抵抗は薄膜効果を考慮して $5.0 \times 10^{-7} \Omega\text{m}$ とした。Al中間層の設計膜厚は、実際に残存している金属Alの厚さとは一対一に対応しない。理論的には二重接合のTMR比は $d_A \rightarrow 0$ で一重接合のその半分以下である。本実験では一重接合のTMR比は最大16%であり、 $d_A \approx 35 \text{\AA}$ でその半分の8%になる。そこで、計算結果の横軸を、35 $\text{\AA}$ 右にシフトさせてプロットした。計算の最大値は約7%であり $d_A \approx 35 \text{\AA}$ の実験結果とほぼ一致する。 $d_A > 35 \text{\AA}$ では0.1~0.8 μm と仮定すると、実験のばらつきの範囲に計算結果はおさまる。以上のように計算は実験の大まかな傾向を再現していると考えられる。従って、Al中での λ_s はサブミクロンオーダーと考えられる。この値は最近大谷¹⁴⁾らによって報告されたAl中での λ_s とほぼ同じである。このように大まかな見積もりにおいて λ_s を求めた。仮定として用いたパラメータの妥当性を含め今後さらに検討する必要がある。今後、二つの絶縁抵抗値や中間層の膜厚を制御して実験を行い、二重接合の理論との比較により、 λ_s のより正確な値を求めることにする。

5. まとめ

sub. (Si, SiO₂)/Ni₈₀Fe₂₀(170 $\text{\AA}$)/Co(48 $\text{\AA}$)/Al or Ta(d_A)/Al-oxide(13 $\text{\AA}$)/Co(750 $\text{\AA}$)接合とsub. (Si, SiO₂)/Ni₈₀Fe₂₀(170 $\text{\AA}$)/Co(48 $\text{\AA}$)/Al-oxide(13 $\text{\AA}$)/Cu(d_C)/Co(750 $\text{\AA}$)接合を作製し非磁性膜厚に対するTMR比の変化を調べた。その結果、非磁性体の厚みに対してTMR比は減少した。その傾向は原子量が高い非磁性物質ほど急激な減少をしている

ことがわかった。これは、スピンの緩和に対してスピン-軌道相互作用が支配的であることに対応していると考えられる。又、断面TEM写真の結果から、Taの系ではほぼ理想的な強性トンネル接合が出来ていたのに対し、Alの系ではAl(Al-oxide)層が山状に成長していた。AFM同時電流測定から、強磁性二重トンネル接合となっていることが推定された。TMR比のAl膜厚依存性の実験結果を理論と比較した結果Alの λ_s がサブミクロンオーダーであることが分かった。

謝辞 本研究は矢崎財団、住友財団の研究助成、情報ストレージ研究推進機構(SRC)研究助成、新エネルギー産業技術開発機構(NEDO)地域コンソーシアム研究開発事業助成、科学研究費補助金(基盤研究11355001、地域連携推進研究11792002、特定領域研究「微小領域の磁性と伝導」09236101)及び日本学術振興会日韓科学協力事業助成により行われている。

文献

- 1) R. Meservey, P. M. Tedrow: *Phys. Rev. B.*, **7**, 318 (1973).
- 2) T. Miyazaki, N. Tezuka: *J. Magn. Magn. Mater.*, **139**, L231 (1995).
- 3) M. Johnson: *Mater. Sci. Eng. B, Solid-State Mater. Adv. Technol.*, **31**, 199 (1995).
- 4) W. P. Pratt, Jr., S. -F. Lee, J. M. Slaughter, R. Loloee, P. A. Schroeder and J. Bass: *Phys. Rev. Lett.*, **66**, 3060 (1991).
- 5) T. Valet, A. Fert: *Phys. Rev. B.*, **48**, 7099 (1993).
- 6) J. J. Sun, P. P. Freitas: *J. Appl. Phys.*, **85**, 5264 (1999).
- 7) J. S. Moodera, M. E. Taylor, R. Meservey: *Phys. Rev. B.*, **40**, 11980 (1989).
- 8) Y. Ando, H. Kameda, H. Kubota, and T. Miyazaki: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **38**, L737 (1999).
- 9) J. S. Moodera, J. Nowak, L. R. Kinder, M. Tedrow, R. J. M. Veerdonk, B. A. Smits, M. Kampen, H. J. M. Swagten and W. J. M. Jonge: *Phys. Rev. Lett.*, **83**, 3029 (1999).
- 10) H. Yamanaka, K. Saito, K. Takanashi and H. Fujimori: *IEEE Trans. Mag.*, **35**, 2883 (1999).
- 11) H. Imamura, S. Takahashi, S. Maekawa: *Phys. Rev. B.*, **59**, 6017 (1999).
- 12) S. Takahashi, H. Imamura, S. Maekawa : to be published
- 13) S. Takahashi, H. Imamura, S. Maekawa : to be published
- 14) 石山智一, 大谷義近, 深道和明: 日本物理学会講演概要集 P.417.