Co_xFe_{1-x} / Al-oxide / Co_xFe_{1-x} 接合の磁気抵抗効果

Magnetoresistive Effects of Co_xFe_{1-x} / Al-oxide / Co_xFe_{1-x} Tunnel Junctions

中塩栄治・菅原淳一・尾上精二・熊谷静似

ソニー (株), 多賀城市桜木 3-4-1 (〒985-0842)

E. Nakashio, J. Sugawara, S. Onoe and S. Kumagai

Sony Corporation, 3-4-1 Sakuragi, Tagajyo 985-0842

(1999 年 10 月 29 日受理, 1999 年 12 月 14 日採録)

The relationship between Co_xFe_{1-x} ($X = 100, 90, 75, 60, 50$) and the tunneling magnetoresistive effect was investigated. Co_xFe_{1-x}, which have high saturated magnetization, were selected as the ferromagnetic materials. The fabrication process was successful in a TMR junction with large MR ratio. The maximum MR ratio for Co₇₅Fe₂₅ junctions yielded 40.7%. The MR ratios for Co₇₅Fe₂₅ junctions were almost constant as a function of the junction area, which meant an MR ratio over 40% didn't contain a geometrically enhanced MR effect. $V_{1/2}$, defined as the point where the TMR decreased to half its 1mV bias value, lay between 360 and 455 mV. The bias dependence of TMR was related to barrier height in all Co_xFe_{1-x} junctions. As barrier height increased, weaker bias dependence was obtained.

Key words: TMR junction, ICP oxidation, Co_xFe_{1-x}, bias dependence

1. はじめに

強磁性トンネル素子に関する研究は、室温で18%の磁気抵抗変化率(以下MR比)が報告されて以来¹⁾, 実験と理論の両面から活発に行われている。最近では42%のMR比が報告され²⁾, 強磁性トンネル素子がスピントリカ及びスピンバルブ素子を凌駕するポテンシャルを有していることが示された。トンネル素子は超高密度ハードディスクドライブの再生ヘッドとして、ポストスピントリカヘッドの有力な候補である。一方でトンネル素子を用いたMRAMの研究が米国を中心に進められ³⁾, 素子の抵抗値はメモリーデバイスとして動作させる場合の実用レベルまで低減された⁴⁾。強磁性トンネル接合は強磁性体(F1)/絶縁体/強磁性体(F2)の三層が基本であり、二つの強磁性体の磁化方向の相対角度に応じて抵抗値が変化する。理論的考察から、トンネル接合のMR比はF1, F2のスピントリカ率を P_1, P_2 とすると(1)式で与えられ、スピントリカ率の高い強磁性体を用いることによって高いMR比が実現できる。ここで $R_{\text{ap}}, R_{\text{p}}$ はそれぞれ二層の磁化方向が反平行、平行の場合の抵抗値である。

$$\text{TMR} = \frac{\Delta R}{R} = \frac{R_{\text{ap}} - R_{\text{p}}}{R_{\text{p}}} = \frac{2P_1P_2}{1 - P_1P_2} \quad (1)$$

Fe, Co, Niのスピントリカ率は文献によって異なるものの、飽和磁化の高いFe, Co, Niの順で高い値が得られており⁵⁻⁷⁾, 飽

和磁化量とスピントリカ率には相関があると考えられる。本実験では飽和磁化量が高いCoFe合金を採用したトンネル接合を作製し、磁気抵抗効果に与える影響を調べた。

2. 実験方法

作製したトンネル接合の膜構成は比較的弱い磁界でも磁化の平行、及び反平行配列を実現しやすく、容易に抵抗変化が生じるスピントリカ構造を採用した。素子の膜構成は以下の通りである。Si / Ni_{81.5}Fe_{18.5}(18.8) / Co_xFe_{1-x}(3.9) / Al-oxide(1.3) / Co_xFe_{1-x}(15) / Ir₂₀Mn₈₀(15) (単位: nm)。基板には表面を300 nm熱酸化したSiウェハを用い、成膜は誘導結合プラズマ(以下ICP)支援DCマグネトロンスパッタ法で行った。Co_xFe_{1-x}の組成は $X = 100, 90, 75, 60, 50$ の合金ターゲットを用いて変化させた。絶縁層の形成にはICPプラズマ酸化法⁸⁾を採用した。Alを成膜後、Ar: 20 sccm, O₂: 60 sccmの混合ガスを0.76 Paになるように導入し、カソード上に取り付けられているワンターンコイルに150 WのRF電力(13.56 MHz)を印加することで酸素プラズマを生成した。素子はフォトリソグラフィを用いてパターニングし、接合面積は $3 \times 3 \mu\text{m}^2$ から $102 \times 102 \mu\text{m}^2$ の範囲とした。抵抗-磁界曲線の測定は、上部及び下部電極の容易軸方向に磁界を印加させて直流四端子法で行った。MR比は磁界500 Oe印加時の抵抗値を R_i として $(R_{\text{max}} - R_i) / R_i \times 100\%$ と定義した。障壁高さと障壁幅はバイアス電圧を±1 V程度まで変化させて測定した $I-V$ 特性をSimmonsの式⁹⁾にフィッティングして求めた。

3. 実験結果と考察

3.1 磁気抵抗変化率のCoFe組成依存性

接合界面にCo及び4種類の組成比を持つCoFe合金のトンネル接合のMRカーブをFig. 1に示す。素子の接合面積は $12 \times 12 \mu\text{m}^2$ である。Coを用いた素子で18%であったMR比は、CoFe合金を採用した全ての素子で増加しており、Co₇₅Fe₂₅のトンネル接合で最大40.7%のMR比が得られた。またCo₇₅Fe₂₅の接合を熱処理することでMR比は49%まで上昇することが確認された⁹⁾。Co₇₅Fe₂₅接合の磁化自由層(以下フリー層)の保磁力は約4 Oe, Co₆₀Fe₄₀, Co₅₀Fe₅₀の接合ではフリー層の保磁力が7 Oeから10 Oe, ピン層の保磁力は約140 Oeと比較的大きな値であった。トンネル素子を磁気ヘッド

Fig. 1 MR curves for $\text{CoFe}_x/\text{Al-oxide}/\text{CoFe}_{1-x}$ junctions ($x=100, 90, 75, 60, 50$). Junction area is $12 \times 12 \mu\text{m}^2$.

Fig. 2 MR ratio and resistance as functions of junction area. Junctions were fabricated by a lithography process. Junction area is from $3 \times 3 \mu\text{m}^2$ to $102 \times 102 \mu\text{m}^2$.

として動作させる場合、フリー層の低保磁力化が必要となる。今回作製した素子ではフリー層と磁化固定層(以下ピン層)の容易軸方向が同一方向であるため、測定時の磁界はフリー層の容易軸方向に印加している。フリー層とピン層の直交化を行い、フリー層の動作方向を困難軸方向にすればフリー層の保磁力はさらに減少する。したがって、CoFe合金を採用した際の軟磁気特性の劣化は無視できると考えられる。

Fig. 2に接合のMR比と抵抗値の接合面積依存性を示す。MR比は線形プロット、抵抗値は対数プロットで示した。Co, $\text{Co}_{75}\text{Fe}_{25}$ の素子のMR比は、 $52 \times 52 \mu\text{m}^2$ 以上の接合面積では形状効果¹⁰の影響で僅かにMR比が増加するものの、それ以外の領域ではほぼ一定である。したがって、Fig. 1に示した $\text{Co}_{75}\text{Fe}_{25}$ の素子で得られた40%以上のMR比は形状効果を含んでいないと考えられる。一方、 $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$, $\text{Co}_{60}\text{Fe}_{40}$, $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ の接合では形状効果によるMR比の増加とともに、接合面積が $6 \times 6 \mu\text{m}^2$ 以下の素子では面積の減少とともにMR比は徐々に劣化していく。これら3つのCoFe組成の接合では、ピン層の保磁力が交換結合磁界とほぼ等しいため磁化の反平行配列が不完全になり、MR比が減少したと考えられる。

CPP(Current Perpendicular to Plain)型素子のトンネル素子の抵抗値は接合面積に反比例して増加する。今回作製した5種類の接合の抵抗値は組成によってバラツキがあるものの、接合面積が $3 \times 3 \mu\text{m}^2$ から $102 \times 102 \mu\text{m}^2$ の範囲において、ほぼ面積に反比例して増加している。面積で規格化した接合の抵抗値はCoFe組成に依存せず、約 $1 \times 10^5 \Omega \mu\text{m}^2$ となった。磁気ヘッドへの応用を考えた場合には、現在の抵抗値を1000分の1から5000分の1まで低減する必要がある。

Fig. 3に接合面積によるMRカーブの変化を示す。接合面積が $52 \times 52 \mu\text{m}^2$ と比較的大きい接合では、磁化の反平行配列が実現されており、 $12 \times 12 \mu\text{m}^2$ の接合面積の素子においても全く崩れていない。しかし $3 \times 3 \mu\text{m}^2$ の接合面積の素子では、フリー層は急峻な磁化反転をするもののピン層側の

Fig. 3 MR curves for $\text{Co}_{75}\text{Fe}_{25}$ junctions. Junction area is $3 \times 3 \mu\text{m}^2$, $12 \times 12 \mu\text{m}^2$, and $52 \times 52 \mu\text{m}^2$.

CoFe 層が不連続な磁化挙動を示す。これは接合面積の減少により、磁壁移動型の磁化過程が支配的になるためと考えられる。今回作製した素子は下部磁性層のフリー層が、下部の電極も兼ねる構造である。そのため、素子形成時のイオンミリングによるフリー層の体積減少は少ない。一方、絶縁層上部に配置したピン層は、接合面積を規定するためのイオンミリングによって体積が大幅に減少するため、不連続な磁化反転が生じると考えられる。

3.2 絶縁層の変化とバイアス電圧依存性

Fig. 4 に今回作製した $3 \times 3 \mu\text{m}^2$ から $102 \times 102 \mu\text{m}^2$ までの接合面積の素子の MR 比と障壁高さと障壁幅の CoFe 組成依

Fig. 4 MR ratio, barrier height, and barrier width as functions of Co content. Junction area is from $3 \times 3 \mu\text{m}^2$ to $102 \times 102 \mu\text{m}^2$.

存性を示す。障壁高さと MR 比の関係を Slonczewski の理論から計算した結果では $0.5 \sim 1 \text{ eV}$ 近傍で極小値をとり、それ以上の領域では障壁高さが増加するに従い、MR 比も増加すると考えられている¹¹⁾。しかし Co の接合では障壁高さは 3.0 eV と比較的高い値であるのにも関わらず、MR 比は 18% 程度となっている。これは Co の分極率が CoFe と比べて非常に小さいためと考えられる。障壁幅はほぼ 1 nm であるが、障壁高さは Co の接合で 3.0 eV 、 $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$ 、 $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ の接合で 1.8 eV から 2.2 eV となり、CoFe の組成変化に伴って変化している。これは CoFe の一部が酸化し、その酸化の程度が組成によって変化しているためと推測される。

Fig. 5 (a) に CoFe 組成の異なる接合のバイアス依存性を示す。MR 比は全ての CoFe 組成の接合でバイアス電圧の増加とともに徐々に減少していく。40.7% と最大の MR 比を示した $\text{Co}_{75}\text{Fe}_{25}$ のトンネル接合は 400 mV のバイアス電圧でも、20% を超える MR 比を有している。バイアス電圧が 1 mV の場合の MR 比で規格化したバイアス依存性を Fig. 5 (b) に示す。最大 MR 比の半分の MR 比となるバイアス電圧を V_b と定義すると、 V_b は 360 mV から 455 mV の間の値となった。

Fig. 6 に障壁高さと V_b の関係を示した。 V_b は CoFe の組成に依存せず、障壁高さが高いほど大きい。即ち障壁高さが高いほどバイアス依存性が緩慢である。一般的に高バイアス側でバイアス依存性が生じる原因は、マグノンの励起によって

Fig. 5 Bias voltage dependence of $\text{CoFe}_{1-x}/\text{Al-oxide}/\text{CoFe}_x$ junctions ($X = 100, 90, 75, 60, 50$). Junction area is $12 \times 12 \mu\text{m}^2$.

Fig. 6 Relationship between barrier height and V_h . V_h was defined as a point where the MR decreases to half its 1 mV bias value. Junction area is $12 \times 12 \mu\text{m}^2$.

生じるスピントリッップを伴うトンネル過程と考えられている。しかし、絶縁障壁の高さが高い接合ほどバイアス依存性が緩やかになるという結果は、J.J.Sunらの接合においても得られており¹²⁾、強磁性トンネル素子の本質的な現象であると考えられる。

4. まとめ

強磁性トンネル接合の強磁性体として $\text{Co}_x\text{Fe}_{1-x}$ を用いた結果、 $\text{Co}_{75}\text{Fe}_{25}$ のトンネル接合において最大40.7%のMR比が得られた。MR比の接合面積依存性の結果から、40%を超えるMR比は形状効果を含んでいないことが確認できた。また、 $\text{Co}_{75}\text{Fe}_{25}$ の組成の接合はバイアス電圧400 mVの場合でも

20%を超えるMR比を有していた。 CoFe の組成変化によって絶縁層の障壁高さは1.8 ~ 3.0 eVの範囲で変化していた。この原因としてAl酸化膜近傍のCoFeの酸化が考えられる。作製した接合の障壁高さとバイアス依存性の関係を調べた結果、障壁高さが高い接合ほどバイアス依存性は緩慢であることが確認された。本研究のトンネル接合の抵抗値は約 $1 \times 10^5 \Omega\mu\text{m}^2$ であり、素子の低抵抗化が今後の課題であることが確認された。

文献

- 1) T. Miyazaki and N. Tezuka : *J. Magn. Magn. Mat.*, **139**, L231 (1995).
- 2) S. S. P. Parkin : Digest of INTERMAG 99, GA-01 (1999).
- 3) J. M. Daughton : *J. Appl. Phys.*, **81**, 3758 (1997).
- 4) S. S. P. Parkin, K. P. Roche, M. G. Samant, P. M. Rice, and R. B. Beyers, R. E. Scheuerlein, E. J. O'Sullivan, S. L. Brown, J. Buccigiano, D. W. Abraham, Yu Lu, M. Rooks, P. L. Trouilloud, R.A. Wanner, and W. J. Gallagher : *J. Appl. Phys.*, **85**, 5828 (1999).
- 5) R. Meservey and P. M. Tedrow : *Phys. Rev. B* **7**, 318(1973).
- 6) R. Meservey and P. M. Tedrow : *Phys. Rev.* **238**, 173(1994).
- 7) 菅原, 中塩, 熊谷, 本多, 池田, 宮崎 : 応用磁気学会誌, **23**, 1281(1999).
- 8) J. Simmons : *J. Appl. Phys.*, **34**, 2581(1963).
- 9) 菅原, 中塩, 尾上, 熊谷 : 応用磁気学会誌投稿中
- 10) J.S. Moodera, L.R. Kinder, J Nowak, P. LeClai, and R. Meservey : *Appl. Phys. Lett.*, **69**, 708(1996).
- 11) N. Tezuka, T. Miyazaki : *Physica B*, **237**, (1997), 256.
- 12) J.J. Sun, R. C. Sousa, T. T. P. Galvao, V. Soares, and P. P. Freitas : *J. Magn. Soc. Japan*, **23**, 55(1999).