強磁性トンネル接合の局所伝導特性と磁気抵抗効果

Local Transport Properties and Magnetoresistive Effects of Ferromagnetic Tunneling Junctions

安藤康夫・亀田博史・林将光・久保田均・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)

Y. Ando, H. Kameda, M. Hayashi, H. Kubota and T. Miyazaki

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

(1999 年 10 月 28 日受理, 2000 年 1 月 25 日採録)

The local electrical properties were measured simultaneously with the topography for a Ta(50 Å)/Fe₂₀Ni₈₀(50 Å)/IrMn(150 Å)/Co(50 Å)/Al(*d*_{Al} Å)-oxide junction. The electrical image showed the contrast with a lateral size of around a few nm, and no strong correlation with the topography was observed. By analyzing the local current-voltage characteristics, we found that the contrast of the current image showed the distribution of the barrier height. This may be due to the lack of the oxygen from the stoichiometry of the Al₂O₃ composition. We measured the current images for junctions with shorter oxidation times and with lower Al thicknesses. The histogram of current densities was calculated by taking into consideration the Gaussian distribution of the barrier height. It fitted the experimental results well except for the junction with thin Al; this may be due to a local leakage current. The tunneling magnetoresistance (TMR) ratio was considered to be reduced by this current.

Key Words: TMR, tunneling junction, AFM, topography, current image, local transport

1. はじめに

強磁性トンネル接合^{1,2)}において、絶縁層の生成状態はトンネル磁気抵抗 (TMR) 比に大きな影響を及ぼす。デバイス化を目指して低抵抗化、耐電圧性を図るためにはその定量的評価を行うことが必要不可欠であるが、このような微小な領域の電気的特性を調べるのは非常に困難である。走査型プローブ顕微鏡 (SPM) は原子オーダーの面内分解能を有しているため局所的な物性測定手段として優れている。ここで金属表面に絶縁障壁の厚さ或いは高さの分布した絶縁層が存在する試料表面を代表的な SPM システムを用いて測定することを考える。Fig. 1 にはその概念図を示す。走査型トンネル顕微鏡 (STM) は金属表面の電子状態研究に数多く用いられている³⁾。しかし金属/絶縁体接合の表面を STM で測定する場合、真空+絶縁層を介したトンネル電流を一定に保つようにフィードバックをかけて表面像を得るため、その像は表面凹凸像と絶縁層の不均一性に起因する電流分布とが混在している。一方、原子間力顕微鏡 (AFM) は原子間力をフィードバック信号にしているため、その表面凹凸像は基本的には他の物性の影響を受けない。しかし絶縁層表面の凹凸は必ずしも絶縁体の膜厚分布とは一致し

ないため、これをもって絶縁体の評価を行うことはできない。そこで、コンタクト方式の AFM を用いて表面走査は原子間力を用いて制御し、かつ、探針と基板間に一定電圧を印加することを試みた。この場合、探針は常に絶縁層表面と接触しているため、探針-基板間に流れる電流は純粋に絶縁層のみを介したトンネル電流となる。よって、これを直接マッピングすることにより、絶縁体の障壁特性のみを反映した電流分布を得ることができる。しかも表面形状と同時測定であるため、両画像は全く同じ領域であり、直接比較することができる。このような手法はこれまで半導体のゲート酸化膜に一部応用されているが、強磁性トンネル接合の絶縁層評価としてはほとんど行われていない⁴⁻⁶⁾。

本研究はこのようなコンタクト AFM 同時電流測定法を用いて、強磁性トンネル接合の Al 酸化膜の局所伝導特性を評価する事を目的とした。酸化膜の作製条件を変化させて、その電流分布を比較した。

2. 実験方法

Ta(50 Å)/Ni₈₀Fe₂₀(50 Å)/IrMn(150 Å)/Co(50 Å)/Al(*d*_{Al} Å) 接合を RF 誘導コイル支援スパッタ法を用いて作製し、Al 表面を Ar+O₂ ガス雰囲気中でプラズマ酸化を行った。Al 膜厚と酸化時間 *t*_{ox} を ① *d*_{Al}=13 Å, *t*_{ox}=210 sec., ② *d*_{Al}=13 Å, *t*_{ox}=120 sec., ③ *d*_{Al}=6 Å, *t*_{ox}=135 sec. の 3 種類変化させたものを作製した。①の条件は大きな TMR 比が得られるほぼ最適な条件で、②は酸化時間が短い、③は膜厚が薄いため、いずれも TMR 比は減少する条件に相当する⁷⁾。酸化の後、成膜チャンバから

Fig. 1 Schematic illustration of methods for measuring the surface of a ferromagnet/insulator junction by using a scanning probe microscope system.

SPM チャンバに導入し、 1×10^{-4} Pa 以下の真空中に保った。この移動に要する時間は約1分以内であり、この間の酸化の影響はほとんど無いことを確認している。導電性カンチレバーとして、窒化Si製チップをAuで200~400Åコートしたものと、市販のPtIr₅をコートしたSiチップを目的に応じて使い分けた。原子間力一定のコンタクトモードで試料表面を走査して表面形状を得ると同時に、試料に電圧を印加して試料-探針間に流れる電流をマッピングして電流像を得た。測定時の印加電圧を大きくすると電流が増加し電流像は明瞭となるが、試料-カンチレバー間の静電気力が増加するため、表面像の悪化および試料表面の機械的ダメージを招く。よって測定する試料の状況に応じて2~6Vの範囲で最適な値に設定した。なお、後に述べる電流分布の定量的解析において印加電圧の違いによる差が生じないことは確認してある⁸⁾。

Fig. 2 Topography and electrical image measured simultaneously for the surface of a Ta/Py/IrMn/Co/Al-oxide junction. The scanning area is 200 x 200 nm², and the bias voltage is 5.0 V.

3. 実験結果並びに考察

3-1. 表面凹凸像と同時電流像

Fig. 2に①の試料の表面で測定した凹凸像と同時に測定した電流像を示す。導電性チップはPtIr₅ コートのものを使用し、走査範囲は200 x 200 nm²、測定電圧は5 Vである。電流像はLog-Amp. からの出力をマッピングしたものを示してある。すなわち電流の小さい領域が強調されて示される。試料表面は非常に平坦で、この範囲で算出した平均粗さ R_a は約0.3 nmであった。同時測定電流像は表面凹凸像とは必ずしも一致していないように見受けられる。

表面凹凸像と同時測定電流像の対応関係をより明確にするためにFig. 2の図中の実線で示した3カ所の断面プロファイルを図3に示す。Fig. 2の(a), (b), (c)がFig. 3のそれらと対応し、波線が断面形状プロファイル、実線が電流を示している。(a)の断面は表面凹凸と電流値にほとんど相関がなく分布している。凹凸像における面内のうねりの周期は約20 nm前後であるのに対して、電流像のそれは数nmであり明らかに細かい。(b)の断面は形状の高いところで電流が大きい傾向があり、(c)の断面は逆に形状の低いところで電流が流れる傾向にある。このように絶縁層表面の凹凸は電流の流れやす

Fig. 3 Cross-sectional profiles of the height (broken lines) and current (solid lines) corresponding to the solid lines (a), (b) and (c) in Fig. 1.

さは全く無関係である。また、電流のプロファイルを見て明らかのように、電流の流れている領域は決して全面で均一ではなく、むしろ限られた領域に集中している点が注目される。

このような電流分布が何に起因しているかを明確にするために、電流像の濃淡の異なるいくつかのポイントに探針を移動させて、局所的な電流-電圧特性を測定した。いずれの測定箇所においてもトンネル伝導的な非線形の曲線が得られた。そこで電圧が ± 1.5 Vの範囲のデータを用いて Simmonsの式を用いてフィッティングを行った。この結果、絶縁障壁の厚さはいずれの箇所においてもほとんど変わらず、障壁の高さのみが変化した⁹⁾。すなわち、電流像における濃淡は絶縁障壁の高さの分布を反映させたものであることがわかった。電流像における電流の流れている単位領域の大きさは数 nm で、ほぼ結晶粒の大きさに相当する⁹⁾。すなわち、下部磁性層の上に Al を積層した際に Al が数 nm 程度の結晶粒を形成し、その後プラズマ酸化すると結晶粒界から酸化が進行すると考えられる。その結果、結晶粒界は酸化が十分進行して安定な Al 酸化膜が形成するのに対して、結晶粒内は酸素の浸透が不十分となり障壁高さが低くなる。局所的な電流分布は、このようにして形成された酸化膜の局所的な構造および電子状態の変化を反映して得られたと考えられる。

3-2. 電流像の酸化条件依存性

Fig. 4は3種類の酸化条件で作製した絶縁層表面の電流像を示す。導電性カンチレバーは Au コートしたものを使用

し、走査範囲は $200 \times 200 \text{ nm}^2$ 、測定電圧は①, ②, ③がそれぞれ 5 V, 6 V, 4 V である。また、図中に実線で示した箇所における断面プロファイルを併せて示す。①の標準的な酸化条件の像に対して、②の酸化時間を減少させた試料は電流の流れる単位領域の面積が大きくなっている。断面プロファイルから見たその周期は約 20 nm で、①に見られる数 nm の微細な領域が数個まとまっているように見受けられる。すなわち②においては、酸化が不十分であるために一部の結晶粒界には酸素が十分浸透せずに、いくつかの粒がまとまって見えているものと考えられる。一方、③の Al 膜厚を減少させた試料においては①, ②のように全体的に均一ではなく、局所的に大きな電流が集中している。測定時には大電流による接合破壊がしばしば見られた。なお、同時に測定した表面凹凸像は何れの試料も大きな差はなく、また、それぞれの電流像との相関もなかった。

3-3. 電流分布解析

前節で得られた電流像から電流分布を定量的に求める。電流像は 256×256 個のピクセルよりなっているので、そのピクセル毎の電流値を統計的に処理する。Fig. 5中の黒丸は Fig. 4のそれぞれの像から得た電流分布をその最大値で規格化して示す。いずれの分布形状もほぼ左右対称型に見受けられるが、横軸の電流は対数表示としているため、実際の電流分布は高電流側に大きな裾野を引いた形状をしている。ピークの中心位置が試料により異なるが、これは測定時の印加電圧、探針の先端形状、探針と試料のコンタクト状況に依存するために、これを比較することは意味を持たない⁹⁾。

Fig. 4 Electrical image of the surface of a Ta/Py/IrMn/Co/Al-oxide junction. The oxidation condition was varied. The cross-sectional profiles of the currents corresponding to the solid lines are also shown.

Fig. 5 Calculated probabilities of currents fitted for the respective experimental results. The barrier heights were assumed to be distributed around the average value Φ_{ave} . The standard deviation σ_{Φ} was varied between 0.1 and 0.7 eV.

そこで、以下の仮定のもとに電流分布を計算し、実験結果と比較する。局所電流-電圧特性の結果から電流の分布は絶縁障壁の高さの分布に起因していると考えられる。そこで障壁高さがガウス分布で分散しているとして、その標準偏差 σ_{Φ} をパラメータとする。測定時の印加電圧が4V以上であるため、電流の計算にはFowler-Nordheimのフィールドエミシジョンの式⁴⁾を用い、探針先端形状、探針-試料間の接触面積および探針の電界による絶縁障壁の形状変化による項をフィッティングパラメータとした⁵⁾。得られた電流分布の計算結果を図中に併せて示す。①の酸化条件に対する計算結果は実験で得られた分布形状を良く再現している。最もフィッティングが良いのは平均障壁高さ1.9eVに対して σ_{Φ} が0.35eV程度の場合である。すなわち障壁高さはおよそ1.5~2.3eVの範囲で分布していることになる。同酸化条件で作製したトンネル接合から求めた障壁高さは2.0eV前後であり、本手法から求めた平均障壁高さとほぼ一致する。一方、②の酸化時間が短い条件に対する計算結果は、分布形状は良く再現しているもののピークの両側で最適フィットする σ_{Φ} が異なっている。これを考慮すると平均障壁高さ1.5eVに対しておよそ1.1~2.0eVの範囲で分布していることになる。すなわち酸化が十分で障壁が高く形成されている領域があるにもかかわらず、電流は酸化が不十分な障壁の低い領域に集中して流れると考えられる。この結果、1.1eVが

この接合における障壁の実効値となり、接合全体としてのTMRの低下を招いていると考えられる。

これに対して③のAl膜厚が薄い接合は実験結果と計算がうまくフィットしていない。特に高電流側の計算曲線からの逸脱および長いすそ野は、明らかにこの電流分布が単に障壁高さの分散のみに依存していないことを示している。可能性として、障壁厚さが分布して部分的に絶縁層が非常に薄くなり電流がそこに集中したことが考えられる。一方フィッティングしているところから見積もった平均障壁高さは1.0eVで、0.6~1.5eVの範囲の分散になる。障壁の高い領域も部分的には形成されていることから考えると、局所的な大電流をいかに押さえるかが、絶縁層厚の減少すなわちTMR素子の低抵抗化を実現するための指針であるといえる。これに対しては下部磁性層の配向制御、アニール等条件の検討に際し、局所電流分布を系統的に調べる必要がある。

5. まとめ

Ta/Ni₈₀Fe₂₀/IrMn/Co/Al-oxide 接合のコンタクトAFMおよび同時電流測定を行った。表面凹凸像と同時測定電流像の間に相関はない。局所電流-電圧測定の結果より、電流像は絶縁層の障壁高さの分布を与えることが分かった。また酸化条件を変えた試料について同時電流測定を行い、酸化時間の短い接合は未酸化の領域の、Al膜厚を減少させた接合は障壁厚さが薄い領域の、局所的な電流パスが支配的になり、接合の実効的なTMR比が減少することがわかった。

謝 辞 本研究は住友財団、矢崎財団の研究助成、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金、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）および情報ストレージ研究推進機構（SRC）研究助成により行っている。

文 献

- 1) T. Miyazaki and N. Tezuka: *J. Magn. Magn. Mat.*, **139**, L231 (1995).
- 2) J. S. Moodera, Lisa R. Kinder, Terrilyn M. Wong and R. Meservy: *Phys. Rev. Lett.*, **74**, 3278 (1995).
- 3) R. Wiesendanger, M. Bode, R. Dombrowski, M. Getzlaff, M. Morgenstern and C. Wittneven: *Jpn. J. Appl. Lett.*, **37**, 3769 (1998).
- 4) A. Olbrich, B. Ebersberger and C. Boit: *Appl. Phys. Lett.*, **73**, 3114 (1998).
- 5) Y. Ando, H. Kameda, H. Kubota and T. Miyazaki: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **38**, L737 (1999).
- 6) V. Da Costa, F. Bardou, C. Béal, Y. Henry, J. P. Bucher and K. Ounadjela: *J. Appl. Phys.*, **83**, 6703 (1998).
- 7) H. Kubota, S. Otsuka, M. Kamijo, N. Tezuka, Y. Ando, C. C. Yu and T. Miyazaki: *J. Magn. Soc. Jpn.*, (to be published).
- 8) Y. Ando, H. Kameda, H. Kubota and T. Miyazaki: *J. Magn. Mag. Mater.*, (to be published).