Co/Al/Al-Oxide/Co 接合界面のマグノン非弾性励起

Magnon Excitation at the Interface of Co/Al/Al-Oxide/Co Tunnel Junctions

村井純一郎・安藤康夫・上條誠・大坊忠臣・久保田均・宮崎照宣・Changkyung Kim*・Ohsung Song**

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)

*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

J. Murai, Y. Ando, M. Kamijo, T. Daibou, H. Kubota, T. Miyazaki, C. Kim*, and O. Song**

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)

Inelastic-electron-tunneling spectroscopy (IETS) was used to investigate the electron states of the Co/Al(d_{Al})/Al-oxide/Co interface in ferromagnetic tunnel junctions. The IET spectra for both parallel and anti-parallel magnetization configurations of ferromagnetic electrodes showed a strong positive peak for $d_{\text{Al}} = 0 \text{ \AA}$. The subtraction spectrum defined by the difference between the spectra of the two configurations was calculated. The subtraction spectrum indicates only a magnon-assisted inelastic tunneling process. The tendency of the tunneling magnetoresistance (TMR) ratio to decrease with bias voltage agreed with the shape of the subtraction spectrum. By assuming surface magnon inelastic excitation, we obtained the distributions of correlation length and Curie temperature for both ferromagnetic electrode surfaces on the insulator. If an Al layer was inserted between a ferromagnet and an insulator, the subtraction spectrum showed an asymmetry to the bias voltage and magnon inelastic excitation at the interface decreased.

Key words: TMR, IETS, bias dependence, magnon, magnetization configurations, correlation length

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)は室温で大きな磁気抵抗比(TMR 比)を示すことから、再生磁気ヘッド、磁気メモリ(MRAM)等への応用が期待されている^{2,3)}。そのためには微細化、低抵抗化、高耐熱性かつ高MR比の素子が求められている。最近では成膜技術の向上と強磁性電極に高い分極率を持つ材料を用い、アニールを行うことにより50%近く⁴⁾の比較的大きなTMR比が得られるようになってきている。しかしながら、なおトンネル抵抗及びTMR比の大きなバイアス電圧依存性という問題が残されており、応用という観点からはこれを抑制する事が必要である。バイアス電圧依存性の起源は接合界面に存在する磁性不純物やマグノンの効果によるものと考えられる⁵⁾。最近、TMR比が半減するバイアス(V_h)が900 mVに達する、バイアス電圧依存性の小さな接合も作られているが、その機構は十分に明らかになったとは言えない。我々は接合界面に存在する磁性体が伝導へ及ぼす影響を明らかにするためにAl/Al-oxide/FM/Al(FM = Fe, Co, Ni)接合を作製し、非弾性電子トンネル分光法(IETS)を用いて解析を行ってきた^{6,7,8)}。その結果、構造の変化に起因するフォノン、マグノン等の素励

起を観測している。しかし、これらとTMRの関連を明確にするには接合の両界面を強磁性体にして比較する必要がある。本研究ではCo/Al/Al-oxide/Coの積層構造を持つ強磁性トンネル接合を、Alの膜厚を系統的に変化させて作製した。これらにおいて、磁化の平行、反平行状態におけるIETスペクトルを測定して得たマグノン非弾性励起スペクトルとTMR比のバイアス依存性との関連について報告する。

2. 実験方法

ICP マグネトロンスパッタ法を用い、i) Si+SiO₂/Ta(50 Å)/Ni₈₀Fe₂₀(60 Å)/IrMn(300 Å)/Co(60 Å)/Al(13 Å)-oxide/Co(40 Å)/Ni₈₀Fe₂₀(200 Å)、ii) Si+SiO₂/Ni₈₀Fe₂₀(170 Å)/Co(48 Å)/Al(d_{Al})/Al(13 Å)-oxide/Co(750 Å); $d_{\text{Al}} = 10, 50, 100 \text{ \AA}$ 接合をAr圧0.07 Paで作製した。Al-oxideはAlを成膜後、その表面に100 W, O₂圧: 0.73 Paの条件でプラズマ酸化を行うことで作製した。I-V特性は直流、4端子法を用いて、また dI/dV -V特性、IETスペクトルはバイアス変調法を用いて測定した⁹⁾。測定時の変調周波数は5.05 kHz、変調交流電圧は4または10 mVである。なお測定温度は全て4.2 Kで、最大印加磁界は110 Oeである。

3. 実験結果

Fig. 1に両磁化状態における dI/dV -V特性より計算したTa/Ni₈₀Fe₂₀/IrMn/Co/Al-oxide/Co/Ni₈₀Fe₂₀ ($d_{\text{Al}} = 0 \text{ \AA}$)接合のTMR比($\equiv (G_{\text{AP}} - G_{\text{P}})/G_{\text{P}} \times 100$)のバイアス依存性を示す。下部電極から上部電極の方向へ電流を流す方向を正のバイアス(PB)と定義している。この接合の dI/dV -V特性より求めた V_h は200 mVである。一般に dI/dV -V特性から V_h を求めると小さく見積られる傾向にあり、I/V-V特性から計算した V_h は300 mVであった。PBの場合、TMR比はバイアスに対して単調に減少するが、負のバイアス(NB)の場合には15 mV付近にTMR比のピークを示す。また両曲線は70 mV付近で交差し、NBのほうがバイアスに対するTMR比の減少率は大きい。図中に弾性トンネル過程のみを考慮したときに得られるTMR比のバイアス依存性の計算値を点線で示す⁹⁾。その変化は放物線状の変化を示し、また実験値と大きく異なっている。この両曲線の違いは主に磁気的非弾性励起によって生じると考えられる。挿入図は4.2 KにおけるMR曲

Fig. 1 Bias dependence of the TMR ratio for the junction of $d_{\text{Al}} = 0 \text{ \AA}$. The solid and dashed lines indicate positive bias (PB) and negative bias (NB), and the dotted line indicates the calculated results taking into consideration the elastic tunneling process. Inset shows the MR curve measured at 4.2 K.

Fig. 2 IET spectra of (a) antiparallel (AP) and (b) parallel (P) magnetization configurations for the junction of $d_{\text{Al}} = 0 \text{ \AA}$. The results for both PB (solid line) and NB (dashed line) voltages are shown.

線を示す。IrMn交換磁界の大きさが100 Oeより大きい為に、MR 曲線は minor loop になる。この結果から IETS を測定するときの磁場をそれぞれ -40 及び 30 Oe とすることにより、両磁性電極の磁化状態の平行(P)及び反平行(AP)が実現できる。

Fig. 2 に $d_{\text{Al}} = 0 \text{ \AA}$ の接合において両磁性層が (a) AP 及び (b) P 状態における IET スペクトルを示す。両磁化状態で強い正のピークが観測されている。このピーク位置は測定で用いる交流電圧 (10 mV) より大きく、Zero-bias 付近で見られる変調交流電圧の大きさに起因したピークではないと考えられる。一方、Al 及び Al-O に起因するフォノン^(6,7)は観測されない。反平行状態 (AP) の IET スペクトルの強度は平行状態 (P) のそれよりも大きい。この差が磁気的非弾性励起に関係していると考えられる。

Fig. 3 IET spectra of (a) antiparallel (AP) and (b) parallel (P) magnetization configurations for the junction of $d_{\text{Al}} = 50 \text{ \AA}$. The results for both PB (solid line) and NB (dashed line) voltages are shown.

Fig. 4 IET spectra for the junction of $d_{\text{Al}} = 100 \text{ \AA}$. The results for the both PB (solid line) and NB (dashed line) voltages are shown.

界面に非磁性体層を挿入するとその界面における磁気的非弾性励起が減少すると考えられる。Fig. 3 に $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Co}/\text{Al}(d_{\text{Al}} = 50 \text{ \AA})/\text{Al-oxide}/\text{Co}$ 接合において両磁性層が (a) AP 及び (b) P 状態における IET スペクトルを示す。この接合で得られる TMR 比は 4 % 程度である。 $d_{\text{Al}} = 0 \text{ \AA}$ の時とは明らかに傾向が異なり、両磁化状態において 120 mV 付近に Al-O LO フォノンが観測されている。また、AP と P 状態における Zero-bias 付近に見られる正の IET スペクトルの強度差が小さくなる。さらに、AP 状態の IET スペクトルにおいてバイアス方向に対する非対称性が見られる。

Fig. 4 に $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Co}/\text{Al}(d_{\text{Al}} = 100 \text{ \AA})/\text{Al-oxide}/\text{Co}$ 接合の IET スペクトルを示す。この接合では TMR 比が観測されなかった為、測定は無磁場で行われた。いずれのバイアス方向についても Al, Al-O LO フォノンが明瞭に観測されている。また、バイアス方向に対する IET スペクトルの非対称がさらに顕著となっている。

IET スペクトルでは全ての非弾性励起と、コンダクタンスに起因するバックグラウンドを検出する。しかし、フォノンによる非弾性励起とバックグラウンドは磁場の変化に依存しないと考えられる^{(10),(11)}。そこで AP 状態の IET スペクトルから P 状態のそれを差し引くことにより磁気的非弾性励起の

Fig. 5 Subtraction spectrum for the junction of (a) $d_{\text{Ai}} = 0$ Å and (b) $d_{\text{Ai}} = 50$ Å. The results for both PB (solid line) and NB (dashed line) voltages are shown.

差のみを検出できると考えられる。Fig. 5 に (a) $d_{\text{Ai}} = 0$ Å, (b) $d_{\text{Ai}} = 50$ Å の接合に対する差分スペクトルを示す。(a) では PB 及び NB のバイアス方向に対して、12 mV と 20 mV に強い正のピークが観測される。また、16 mV から 170 mV までの間で、NB の差分スペクトルが PB のそれよりも大きい。これは、Fig. 1 において NB の TMR 比の減少の割合が PB のそれよりも大きくなる範囲とほぼ一致する。(b) では、いずれの方向の差分スペクトルともに変化が小さいが、NB の差分では小さなピークをとった後に緩やかに減少する傾向がわずかに見られる。

4. 考察

IET スペクトルの差分は磁気的非弾性励起の差であり、電極のマグノン非弾性励起を反映したものであると考えられる。そこで強磁性トンネル接合におけるマグノン非弾性励起が伝導に及ぼす影響をこれまで報告されている理論を基に考察する。

マグノン非弾性励起によるトンネル電流は P 状態と AP 状態でそれぞれ以下のように表される⁹⁾。

$$I_P = 2\pi e / \hbar \sum_{\alpha} X^{\alpha} g_{M\uparrow}^L g_{M\downarrow}^R \int d\omega \rho_{\alpha}^{\text{mag}}(eV - \omega) \theta(eV - \omega), \quad (1)$$

$$I_{\text{AP}} = 2\pi e / \hbar [X^R g_{M\uparrow}^L g_{M\downarrow}^R \int d\omega \rho_R^{\text{mag}}(eV - \omega) \theta(eV - \omega) + X^L g_{M\downarrow}^L g_{M\uparrow}^R \int d\omega \rho_L^{\text{mag}}(eV - \omega) \theta(eV - \omega)] . \quad (2)$$

ここで X^{α} は交換係数、 g^{α} は電極の電子状態密度、 M (m) は Majority (Minority)、 $\theta(x)$ は step function を表し、 $\alpha = L, R$ である。 $\rho_{\alpha}^{\text{mag}}$ はマグノン状態密度を表し、その形は以下のように一般化されている。

$$\rho_{\alpha}^{\text{mag}} = (v+1)(\hbar\omega)^v / E_m^{v+1} . \quad (3)$$

ここで E_m はマグノン最大励起エネルギー、指数 v はマグノンの次元性に依存する。(1) 式と (2) 式を比較すると、マグノン非弾性励起によるトンネル電流は両接合界面におけるマグノン状態密度が異なる場合、PB と NB に関して非対称と

なることがわかる。(2) 式の中を着目すると、 $g_{M\uparrow}^L g_{M\downarrow}^R$ が $g_{M\downarrow}^L g_{M\uparrow}^R$ よりも大きいために AP 状態では (2) 式の第 1 項が大きく伝導に寄与すると考えられる。従って AP 状態の時の IET スペクトルは ρ_R^{mag} をより強く反映することになる。すなわち、PB の差分スペクトルは下部磁性電極の ρ_R^{mag} を、NB のそれは上部磁性電極の ρ_R^{mag} を反映すると考えられる。 $d_{\text{Ai}} = 0$ 及び 50 Å の接合で得られた差分スペクトルのバイアス方向に対する違いはこの様な両強磁性電極のマグノン状態密度の違いに起因していると考えられる。 $d_{\text{Ai}} = 50$ Å の場合には Al が厚くなったことによりマグノン非弾性励起が立ちにくくなっているが、特に PB 方向の差分スペクトル即ち下部磁性電極において顕著である。 $d_{\text{Ai}} = 100$ Å の接合では十分に Al 層が厚いために、マグノン非弾性励起は抑えられ、フォノンによる非弾性励起のみが観測されることが考えられる。しかし生の IET スペクトル (Fig. 4) にはバイアス方向に対する非対称性が見られ、NB 方向で上部 Co 電極のマグノン状態密度の影響を強く受けている事が考えられる。

マグノン状態密度は印加バイアスに対してバルクマグノン ($v = 0.5$) であれば単調に増加し、界面マグノン ($v = 0$) であれば一定である。しかし、差分スペクトルでは低バイアスの領域でピーク (V_d) をとる事から、(3) 式のみではマグノン状態密度を単純に説明するには不十分である。そこでマグノン非弾性励起に最低励起 (Cut-off) エネルギー E_c と最大励起エネルギー E_m を取り入れて考察する。最大励起エネルギー E_m に関して、Levy ら¹⁰⁾ は分子場近似を用いて以下の関係式で近似した。

$$E_m \cong 3k_B T_c / (S+1) . \quad (4)$$

ここで T_c は磁性体のキュリー温度、 S はスピンである。Co に対して $S = 3/2$ 、 $T_c = 1395$ K として E_m を求めると 144 mV となる。Cut-off エネルギー E_c に関して、議論を単純化させる為に粒径 ℓ_m を持つ f.c.c. Co の球を仮定する。そのときのマグノン長波長限界より E_c を計算すると以下の様に近似する事ができる。

$$E_c \cong 3D(\pi/\ell_m)^2 . \quad (5)$$

ここで D は交換ステフィネス定数であり、 $D = 340$ meVÅ² である。以上より、強磁性トンネル接合におけるマグノン非弾性励起を界面マグノンに起因したものと仮定し、差分スペクトルを V_d より低い領域では ℓ_m に、 V_d より高い領域では T_c の分布に対応した変化と見なして、 ℓ_m と T_c の分布確率を求めた結果を Fig. 6 に示す。 $d_{\text{Ai}} = 0$ Å の接合について上部 Co 電極 (NB) の ℓ_m は下部 Co 電極 (PB) の ℓ_m よりも小さく、40 Å で分布にピークを持ち、最小値は 25 Å である。一方、 $d_{\text{Ai}} = 50$ Å の接合は上部 Co 電極で ℓ_m が 55 Å 以上に分布が広がっている。下部電極に関しては差分スペクトルの PB に変化がないために ℓ_m と T_c の分布確率を計算することができない。 T_c に関しては、やや下部 Co 電極 (PB) が低くなっているように見受けられるが、いずれにしても大きな差はない。

これらの結果と断面 TEM 及び AFM 測定と同時に電流測定を行った結果^{13), 14)} より得られている情報を基に、予想される接合の界面構造のモデルを Fig. 7 に示す。(a) $d_{\text{Ai}} = 0$ Å

Fig. 6 Probability of (a) correlation length of the surface magnon ℓ_m and (b) the Curie temperature T_c of the junctions of $d_{Al} = 0$ and $50 \text{ \AA}$ for both PB and NB directions.

の接合については下部 Co 電極の結晶粒が上部 Co 電極よりも大きく分布していると考えられる。(b) $d_{Al} = 50 \text{ \AA}$ の接合では IET スペクトルにおいて Al-O LO フォノンが観測されていることから、下部 Co 電極の上にはある程度の厚さを持つ Al が存在し、島状成長していると考えられる。(c) $d_{Al} = 100 \text{ \AA}$ の接合については、IET スペクトルにおいて Al や Al-O LO フォノンが明瞭に、Al 層は連続的になっていると考えられる。Al が島状成長する原因に関しては Co の結晶配向に原因があると考えられ、下地層の配向を制御することにより Al の島状成長を抑える必要がある。また TMR 比のバイアス依存性は電極の結晶粒と大きく関係していると考えられることから、今後は熱処理を行った試料で IETS を測定し、その関連を議論していく必要がある。

5. まとめ

非弾性電子トンネル分光法を用いて Co/Al/Al-oxide/Co 界面を持つ接合の界面状態を解析した。 $d_{Al} = 0 \text{ \AA}$ の接合に対して AP 状態と P 状態の IET スペクトルの差分を求めることにより、マグノン非弾性励起スペクトルを得た。TMR 比のバイアス依存性の大きさはマグノン非弾性励起の大きさと対応した。また、界面マグノンを仮定し、結晶粒径と T_c の分布を計算した。 $d_{Al} = 0 \text{ \AA}$ の接合では下部電極の結晶粒径は上部電極のそれよりも大きく、スペクトルの非対称性の原因になっていると考えられる。Al 層を厚くすると、下部 Co 電極のマグノン非弾性励起が抑えられた事を反映するスペクトルが得られた。

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 及び特定領域研究「微小領域の磁性と伝導」

Fig. 7 Schematic illustrations of cross-sections for the interface of a Co/Al(d_{Al})/Al-oxide/Co junction.

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) T. Miyazaki and N. Tezuka: *J. Magn. Magn. Mat.*, **139**, L231 (1995).
- 2) T. Miyazaki and N. Tezuka, S. Kumagai, Y. Ando, H. Kubota, J. Murai, T. Watabe and M. Yokota: *J. Phys. D Appl. Phys.*, **31**, 630 (1998).
- 3) S. S. Parkin, K. P. Roche, M. G. Samant, P. M. Rice, R. B. Beyers, R. E. Scheuerlein, E. J. O'Sullivan, S. L. Brown, J. Bucchigano, D. W. Abraham, Yu Lu M. Rooks, P. L. Troulloud, R. A. Wanner and W. J. Gallagher: *J. Appl. Phys.*, **85**, 5828 (1999).
- 4) 菅原淳一, 中塩栄治, 尾上清二, 熊谷静似: 第 23 回日本応用磁気学会学術講演会, 7aA-1.
- 5) 大兼幹彦, 手束展規, 宮崎照宣: 日本応用磁気学会誌, **23**, 1297 (1999).
- 6) 村井純一郎, 安藤康夫, 手束展規, 宮崎照宣: 日本応用磁気学会誌, **22**, 573 (1998).
- 7) J. Murai, Y. Ando and T. Miyazaki: *J. Magn. Soc. Jpn.*, **23**, 64 (1999).
- 8) 村井純一郎, 安藤康夫, 宮崎照宣: 日本応用磁気学会誌, **23**, 1325 (1999).
- 9) A. M. Bratkovsky: *Appl. Phys. Lett.*, **72**, 2334 (1998).
- 10) J. Murai, Y. Ando, M. Kamijo, H. Kubota and T. Miyazaki: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **38**, L1106 (1999).
- 11) Y. Ando, J. Murai, H. Kubota and T. Miyazaki: submitted to *J. Mag. Mag. Mat.*
- 12) S. Zhang and P. M. Levy: *Phys. Rev. Lett.*, **79**, 3744 (1997).
- 13) 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: 日本応用磁気学会誌投稿中
- 14) Y. Ando, H. Kameda, H. Kubota and T. Miyazaki: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **38**, L737 (1999).