強磁性トンネル接合のスピンの依存局所伝導特性

Spin-Dependent Local Transport Properties in Ferromagnetic Tunnel Junction

林 将光・安藤康夫・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)

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

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

(2000年10月6日受理, 2001年1月24日採録)

The local electrical properties in ferromagnetic tunnel junctions was measured using contact-mode Atomic Force Microscopy (AFM). The electrical current images reflected the barrier height distribution determined by local I - V curve measurement. The TMR ratio was estimated from the current histogram. The estimation closely fitted the experimental temperature dependence of TMR ratio. The TMR ratio was shown to increase with a decrease in the deviation of barrier height distribution and with an increase in average barrier height. The effect of the local current channel with low barrier height on the TMR ratio is also discussed.

Key Words: TMR, tunneling junction, AFM, local transport, barrier height, current channel

1. はじめに

近年, 強磁性トンネル接合^{1), 2)}を磁気抵抗(MR)ヘッドやメモリー(MRAM)などへ実用化するための研究が盛んに行われている。特に再生用磁気ヘッドへの応用を考えた場合, その大きな課題として, 転送レートの確保及びノイズ発生抑制などの観点から, 素子の低抵抗化を図ることがあげられる。強磁性トンネル接合における絶縁層の生成状態はトンネル磁気抵抗(TMR)比及び抵抗値に大きな影響を及ぼすため, その最適な条件の確立は重要である。

これまでに我々はコンタクト方式の原子間力顕微鏡(AFM)が, 微小な領域の伝導特性の観察に優れていることを示してきた³⁾。探針と試料が接触するコンタクト方式のAFMにおいて, 探針-試料間に一定電圧を印加しながら走査することで, 通常のAFMから得られる表面形状像と同時に, 局所的な伝導特性を表す電流像を得ることができる。真空層を電流がトンネルするSTMと比較して, このコンタクト方式のAFMでは, 試料の絶縁層のみをトンネルする電流を検出できることが最大の利点である。

そこで我々はこのコンタクト方式のAFMを用いて, 熱処理による強磁性トンネル接合の絶縁層の生成状態の変化の観察を行った。この結果をもとに, 局所的な伝導特性がTMR比に及ぼす影響を考察した。

2. 実験方法

2種の試料, A) Ta(30 Å)/Ni₈₀Fe₂₀(30 Å)/Cu(200 Å)/Ni₈₀Fe₂₀(30 Å)/IrMn(100 Å)/CoFe(40 Å)/Al(8 Å), 及び B) Ta(20 Å)/Ni₈₀Fe₂₀(30 Å)/Al(300 Å)/Ta(30 Å)/Ni₈₀Fe₂₀(30 Å)/IrMn(100 Å)/CoFe(50 Å)/Al(13 Å) 積層膜⁴⁾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雰囲気中でプラズマ酸化を行った。酸化時間はA) 40 sec, B) 210 secとした。A)は8 Å Alのトンネル接合で最も大きなTMR比が得られた条件であり, Al酸化膜の平坦性も良好であった。一方, B)の条件はAl酸化膜の平坦性が悪く, その接合のTMR比も低い値を示した。これらの試料を酸化の後, 成膜チャンバからAFMチャンバに導入して1×10⁻⁴ Pa以下の真空度を保った。導電性カンチレバーとして, 窒化Si製チップをAuで200 Å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。測定する試料の状況に応じて, 電圧を2~5 Vの範囲で最適な値に設定した。試料の熱処理はAFMチャンバ内で1時間程度行い, 数時間の冷却後測定を行った。

絶縁層の障壁の情報を得るために局所電流-印加電圧 (I - V) 測定を探針を試料の1点に固定して測定した。1つの電流像に対して5~10点の測定を行って, それらの平均値を求めた。

3. 実験結果並びに考察

3-1. 絶縁障壁高さの分布のTMR比への影響

Fig. 1に接合Aを各温度で熱処理した後の電流像を示す。色が白いところ程, 電流値が大きいことを示している。AFMコンタクトモードで同時に測定された表面形状像は, 熱処理により顕著な変化は示さなかった。作製直後は電流のコントラストが大きいものに対して, 熱処理温度の上昇に伴い, そのコントラストが小さくなっていくことがわかる。300℃でコントラストが最小になった後, 再び大きくなる。このコントラストとTMR比との関連を調べるため, 以下の計算を行った^{5), 6)}。

局所 I - V 測定の結果より, 電流の分布は主に絶縁層の障壁高さ ϕ に依存することがわかった。そこで障壁高さはガウス分布,

$$P(\phi) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_\phi} \exp\left[-\frac{(\phi - \phi_{av})^2}{2\sigma_\phi^2}\right] \quad (1)$$

で分散していると仮定した。ここで、 φ_{av} は φ の平均値であり、局所 I - V 測定から求めたものを用いた。 σ_φ はガウス分布の標準偏差である。測定時の印加電圧が2 V以上と比較的大きいため、電流の計算には以下に示すFowler-Nordheimのフィールドエミッションの式⁷⁾を用いた。

$$I(\varphi) = a \frac{V^2}{\varphi d^2} \exp\left[b \frac{d\varphi^{3/2}}{V}\right]. \quad (2)$$

ここで I は電流値、 V は測定電圧である。 a は探針と試料の接触面積で、電流像から得られる電流分布 (Fig. 2 黒丸) の中心値を用いて求めた。 b は探針の形状を表すパラメータで、ここでは0.5とした⁸⁾。 d は絶縁層の障壁幅で、局所 I - V 測定から求めた平均値を用いた。(1), (2)式から電流分布を計算し、 σ_φ をパラメータとして電流像から得られた電流分布にフィッティングさせた。その結果をFig. 2に示す。また局所 I - V 測定から得られた φ の平均値(φ_{av})も併せて図中に示す。この結果、300 °Cで φ_{av} が3.2 eV程度に増加し、 σ_φ が0.1 eV程度に減少していることがわかる。

ここでTMR比を見積もるために、TMR比の障壁高さ依存性を仮定した。本解析では伊藤ら⁹⁾によって計算された結果

(TMR_G)を用いた。これを用いて、TMR比は以下の式⁹⁾より求められる。

$$TMR_R = \frac{R_{AP} - R_P}{R_P} = \frac{V/I_{AP}^{total} - V/I_P^{total}}{V/I_P^{total}}, \quad (3)$$

$$I_P^{total} = \sum_\varphi I_P(\varphi)P(\varphi),$$

$$I_{AP}^{total} = \sum_\varphi I_{AP}(\varphi)P(\varphi),$$

$$I_{AP}(\varphi) = I_P(\varphi)(1 - TMR_G(\varphi)).$$

ここで $I_P(\varphi)$ 、 $I_{AP}(\varphi)$ は強磁性体の磁化が平行、反平行の時の電流値を表しており、(2)式より求めた。電流値は障壁高さに対してexp的に変化するため、障壁の低いところを流れる大きな電流が支配的となってくる。このため、接合全体のTMR比は、局所的なTMR比の単なる平均値ではなく、接合全体を流れる電流 I_P^{total} 、 I_{AP}^{total} の差から求める必要がある。なお、 $P(\varphi)$ はガウス分布における φ に対する度数、TMR_{R(G)}は抵抗値[コンダクタンス]から求めたTMR比を表している。

このようにして各熱処理温度で得られた電流分布に対して計算したTMR比をFig. 3の破線(白抜き点)で示した。また対応する実験結果を図中の実線(黒塗り点)で示した。A、Bどちらの接合においても計算結果と実験結果が比較的良好

Fig. 1 Electrical current image (200×200 nm²) of the surface of a Ta/NiFe/Cu/NiFe/IrMn/CoFe/Al-oxide junction (a) as prepared and after annealing at (b) 200°C, (c) 250°C, (d) 300°C, (e) 350°C, and (f) 400°C.

Fig. 2 Current histogram statistically calculated from the electrical current image indicated by dots. Solid lines are the fitting results considering the Gaussian distribution of barrier height for the junction (a) as-prepared, (b) after annealing at 300°C, and (c) 400°C.

Fig. 3 Annealing temperature dependence of TMR ratio for Junction A (with smooth interface) and Junction B (with rough interface). The solid and broken lines show the TMR ratio experimentally obtained and evaluated values, respectively.

一致していることがわかる。Aの試料ではTMR比が300℃で、またBの試料では250℃付近で最大値を示すが、計算曲線はそれらの違いを反映している。このことから、局所的な障壁高さの分布がTMR比に大きく寄与していると言える。特にAの接合の300℃付近に現れる、急激なTMR比の上昇には、障壁高さの平均値の増加と、その分布の広がり(標準偏差)の減少が必要である。ただし、300℃より高温の熱処理温度では、実験値の減少は計算曲線のそれを大きく上回っている。この領域でのTMR比の減少は下部電極のMnの拡散などの別の要因が関係していることを示唆している。

3-2. 低障壁高さを持つ電流チャネル

Fig. 2に示した電流分布(黒丸)は横軸を対数表示しているため、分布形状は左右対称に見受けられるが、実際の電流分布は高電流側に大きなすそ野を引いた形状をしている。このすそ野は障壁高さの低いところを通る局所的な電流の分布を表している。Fig. 1の図中の実線で示した断面プロファイルをFig. 4に示す。分布の標準偏差 σ_p が小さい(b)では、電流が平均的に流れていることが見受けられるのに対し、 σ_p が大きい(a)や(c)では、局所的に大きな電流が流れているチャネルがあることがわかる。前節でTMR比の大小は局所的な障壁高さの分布に依存していることを示したが、その分布の中でも障壁高さがより低い場所が大きな意味を持つと考えられる。そこでここでは、障壁高さが低いチャネルを流れる電流の影響を定量的に考察する。

話を単純化するために、障壁高さが高いチャネルと低いチャネルの2つのみが存在すると仮定し、低いチャネルの障壁高さの値(ϕ')とそれが全面積に占める割合(f_c)をパラ

Fig. 4 Line profiles from the current images of Fig. 1, (a) as prepared, (b) after annealing at 300°C, and (c) 400°C.

メータとした。なお高いチャネルの障壁高さの値(ϕ_0)は固定し、障壁幅はどのチャネルにおいても同じ値(d)を取るものとした。障壁幅 d と個々のチャネルの障壁高さ(ϕ_0, ϕ')からSimmonsの式¹⁰⁾を用いて、各チャネルの電流値を計算し、割合 f_c で積算することによって、接合全体の抵抗×面積積(RA)を求めた。このときの電圧は1 mVとした。また、個々のチャネルの障壁高さ(ϕ_0, ϕ')と障壁幅 d から各チャネルの $I-V$ 曲線をSimmonsの式を使って再現し、 f_c で積算して接合全体の $I-V$ 曲線を再現した。この曲線に対して、Simmonsの式を使って再フィッティングし、接合全体の見かけの障壁高さ(ϕ^{total})を求めた。さらに前節と同様の方法で、TMR比を計算した。なおこの際、 ϕ_0 は3.0 eV、パラメータ ϕ' を0.6, 1.4, 2.2 eVと変えて計算し、その結果をFig. 5に示す。Fig. 5(c)より見かけの障壁高さ(ϕ^{total})は f_c が0.1%付近から減少を始め、 ϕ' が小さいほど ϕ^{total} の低下が大きい。すなわち、接合の全面積の大部分が高い障壁高さを保っているにもかかわらず、わずかな低障壁高さを持つ電流チャネルが存在するだけで、見かけの障壁高さ(ϕ^{total})は低下することを示している。同様に、TMR比及び抵抗 RA も低障壁チャネルの増加と共に減少し、 ϕ^{total} が0.6 eVの場合、それがわずか0.1%存在するだけで、TMR比が減少し始めていることがわかる。

これらの結果をもとにTMR比と RA の関係を、絶縁層の障壁幅を変えて計算したものをFig. 6の実線で示す。このとき、低障壁チャネル(ϕ')の全面積に占める比率(f_c)は10%

Fig. 5 (a) Normalized TMR ratio, (b) resistance-area product (RA), and (c) barrier height as functions of the fraction of current channel f_c with low barrier height.

に固定し、 ϕ' を変えて計算した。星印及び黒丸はそれぞれ、我々と他のグループの最近の実験結果を示している¹¹⁾。素子の低抵抗化を図ると、TMR比が減少する傾向をこのモデルは大まかに説明できている。しかも障壁幅を減少させると、TMR比の減少する割合がより顕著となり、低障壁高さの電流チャネルの制御の重要性がますます増すことが予想される。

4. まとめ

コンタクト方式のAFMを用いて、強磁性トンネル接合の絶縁層の表面を走査し、その局所的な伝導特性を測定した。試料の熱処理によるTMR比の増加には、絶縁層の障壁高さの平均値の増大と、その分布の標準偏差の減少が必要であることがわかった。低障壁高さを有する電流チャネルがTMR比及び抵抗に与える影響を定量的に考察した結果、低障壁チャネルが全体の0.1%存在するだけで、TMR比の減少を招くことがわかった。

謝 辞 本研究は住友財団、村田学術振興財団の研究助成、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) 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。

Fig. 6 TMR ratio as a function of resistance-area product. The solid lines show calculated results assuming 10% fraction of current channel with low barrier height. The stars and solid circles indicate data obtained by our group and recent data reported by other group, respectively.

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) Y. Ando, H. Kameda, H. Kubota and T. Miyazaki: *Jpn. J. Appl. Phys., Part 2* **38**, L237 (1999).
- 4) 上條誠, 村井純一郎, 久保田均, 安藤康夫, 宮崎照宣, Changyung Kim, Ohsung Song: 日本応用磁気学会誌 **24**, 591 (1999).
- 5) 安藤康夫, 亀田博史, 林 将光, 久保田均, 宮崎照宣: 日本応用磁気学会誌 **24**, 611 (1999).
- 6) Y. Ando, H. Kameda, H. Kubota and T. Miyazaki: *J. Appl. Phys.*, **87**, 5206 (2000).
- 7) R. H. Fowler and L. Nordheim: *Proc. R. Soc. London, Ser. A* **119**, 173 (1928).
- 8) Y. Ando, H. Kubota, M. Hayashi, M. Kamijo, K. Yaoita, A. C. C. Yu, X. F. Han and T. Miyazaki: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **39** (2000) in press.
- 9) H. Itoh, A. Shibata, T. Kumazaki, J. Inoue and S. Maekawa: *J. Phys. Soc. Jpn.*, **68**, 1632 (1999).
- 10) J. G. Simmons: *J. Appl. Phys.*, **34**, 2581 (1963).
- 11) 矢尾板和也, 上條誠, 新聞智彦, 山本直志, 久保田均, 安藤康夫, 宮崎照宣: 日本応用磁気学会誌 **25** (2000) 投稿中。