

強磁性トンネル接合におけるスピン偏極率の測定

科学技術振興機構
 東北大学電気通信研究所
 日立製作所基礎研究所
 科学技術振興機構
 東北大学電気通信研究所
 東北大学電気通信研究所

谷川雄洋(ta-tani@riec.tohoku.ac.jp)
 池田正二(siked@riec.tohoku.ac.jp)
 早川純(j-hayaka@rd.hitachi.co.jp)
 北智洋(tkita@riec.tohoku.ac.jp)
 松倉文礼(f-matsu@riec.tohoku.ac.jp)
 大野英男(ohno@riec.tohoku.ac.jp)

1. 強磁性トンネル接合におけるトンネル磁気抵抗比とスピン偏極率

強磁性体/障壁層/強磁性体からなる磁気トンネル接合(MTJ)素子においては、両側の強磁性電極の磁化の相対方向に依存して素子抵抗が大きく変化する。この現象はトンネル磁気抵抗(TMR)効果と呼ばれ、次世代の磁気センサや高密度磁気メモリへの応用が期待されている。TMRの研究は、1995年に室温で20%近くにも及ぶ大きな抵抗変化(TMR比)が観測されて以来、主にアモルファスの酸化アルミニウムを障壁層とした素子を中心に行われてきており[1, 2, 3, 4]、その場合のTMR比は現在約70%程度にまで至っている。2004年以降は、障壁層として酸化マグネシウム(MgO)を用いた素子において、その3, 4倍も大きなTMR比を示すことが報告されている[5, 6, 7, 8]。MgO障壁層は単結晶もしくは高い結晶配向性を持つ膜で形成されるため、高いTMR比はそれに隣接する強磁性体の高い対称性を持つ高スピン偏極率を持つ Δ_1 バンドのコヒーレント・トンネリング等に関連するものと考えられているが[9, 10]、詳細は未だ不明な点が多い。

TMR比は、両側の強磁性体電極の平行磁化配列時の抵抗 R_P と反平行磁化配列時の抵抗 R_{AP} を用いて、(1)式で定義される。

$$\text{TMR比} = (R_{AP} - R_P) / R_P \quad (1)$$

R_{AP} と R_P の値に差が生じるのは、磁化方向に依存して上向きスピンと下向きスピンを持つキャリ

アの担う伝導度が異なるためであり、TMR比は強磁性体/絶縁体界面のスピン偏極率 P (上側界面 P_1 、下側 P_2)を用いて、

$$\text{TMR比} = 2P_1P_2 / (1 - P_1P_2) \quad (2)$$

と表すこともできる[11]。 P は強磁性体自身の自発スピン分裂によるフェルミ面における上向きと下向きスピンの電子の状態密度の差のみならず、強磁性体材料と障壁材料の組み合わせ、界面の状態、膜質にも依存する[12]。

強磁性体/絶縁体界面の P は、強磁性体/障壁層/超伝導体トンネル接合を用いたスピン偏極トンネル(SPT)法により測定可能である。本研究では、 $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}/\text{MgO}$ 界面のスピン偏極率をSPT法により測定した例を紹介する。

2. SPT法によるスピン偏極率の測定

強磁性体/絶縁体障壁/超伝導体接合のトンネル伝導は、強磁性体電極および超伝導体電極のフェルミ準位付近の電子により支配される。超伝導体電極のフェルミ準位近傍の電子状態密度には 2Δ の幅のエネルギー・ギャップが存在する(BCS基底状態) [図1(a)]。そのため、ゼロ・バイアス付近においてトンネル伝導は生じず、 Δ/e (e : 素電荷)以上のバイアス電圧を印加した際にのみトンネル伝導が生じ、図1(b)に示されるような超伝導体の電子状態密度を反映した微分コンダクタンス・バイアス($dI/dV - I$)特性を示す。

素子に外部磁場 H が印加された時は、超伝導

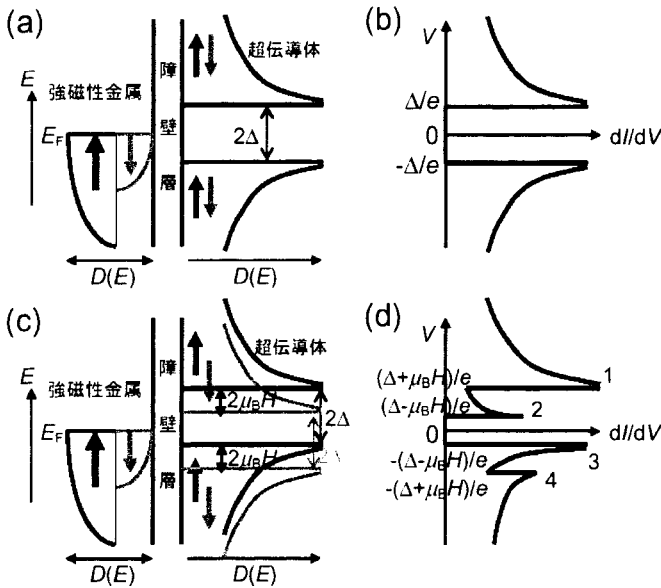


図 1. (a) ゼロ磁場での素子の状態密度と、(b) $dI/dV - V$ 曲線の模式図。(c)と(d)は磁場を印加した場合。

体電極の電子状態密度はゼーマン効果により、 $2\mu_B H$ の大きさでスピン分裂する[図 1 (c)]。強磁性体電極と超伝導体電極の間を電子がスピンを保存してトンネルする際は、上向きスピンの電子は上向きスピンの電子状態に、下向きスピンの電子は下向きスピンの電子状態に透過する。したがって、 $dI/dV - V$ は、図 1 (d) に示すように $V=0$ に対して非対称になり、番号を振った 4 つのピークの内、ピーク 1 と 3 の強度が上向きスピンを持つ電子の状態密度、2 と 4 が下向きスピン持つ電子の状態密度を反映する。したがって、強磁性体/絶縁体障壁界面のスピン偏極率は各ピーク成分が担う伝導率 σ_i (i はピーク番号) を用いて、

$$P = \frac{(\sigma_1 - \sigma_3) - (\sigma_4 - \sigma_2)}{(\sigma_1 - \sigma_3) + (\sigma_4 - \sigma_2)} \quad (3)$$

で表される[12, 13]。

3. 実験と測定結果

エイコー・エンジニアリング製超高真空スパッタ装置を用い、 SiO_2 基板上に RF スパッタで Ta (5nm)/ $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$ (30nm)/MgO (2.0 nm または 2.2 nm) / $\text{Al}_{95}\text{Si}_5$ (5 nm) を製膜した。超高真空中でメタルマスクを交換することで、界面を大気にさらすことなく、図 2 に示すような十字型の SPT

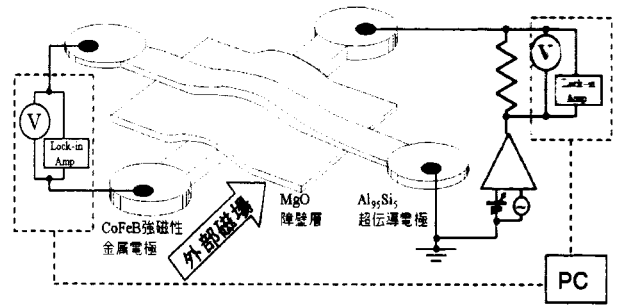


図 2. スピン偏極トンネル法の測定配置の模式図。実際の測定では素子は極低温に冷却される。素子が形成できる。接合の大きさは $200 \times 200 \mu\text{m}^2$ である。MTJ の TMR 比は素子の熱処理条件に依存することが知られているので[7, 8, 14]、超伝導体電極 $\text{Al}_{95}\text{Si}_5$ を製膜する前に、超高真空中で 350°C において熱処理した素子も用意した。ここで採用した超伝導体電極 $\text{Al}_{95}\text{Si}_5$ はスピン・軌道相互作用が小さいのでスピン偏極伝導の検出に適しており、また 5 nm と薄膜化することで面内に数テスラの磁場を印加しても超伝導状態を保持することができる[2, 4, 7, 12]。

これらの素子をオックスフォード・インストゥルメンツ社製希釈冷凍機 (Kelvinox TLM) で 20mK 以下に冷却し、四端子法により $dI/dV - V$ 曲線を測定した。微分コンダクタンスは、直流バイアスに微少な交流バイアス (10 μV 程度) を重畳し、ロック・イン・アンプにより検出した。測定配置の模式図は図 2 に示され、ここで正のバイアスは超伝導電極から強磁性電極に電流が流れる方向と定義した。

熱処理無しの素子 (MgO 厚 2.2 nm) に対する 20 mK における測定結果を図 3 に示す。ゼロ磁場における結果は、バイアスの正負で対称であり、ゼロ・バイアス付近で超伝導ギャップによりトンネル伝導が抑制されている。伝導が立ち上がるバイアスの大きさは Al の超伝導ギャップの大きさ ($\Delta \sim 0.3 \text{ meV}$) と良く一致する。素子面内に磁場を 3 T 印加した場合の結果においては、 $dI/dV - V$ 曲線は 4 つのピークを持ち、これらのピーク位置は超伝導体電極の電子状態密度のゼーマン分裂の大きさから計算されるものと良く一致する。この結果から、(3)式を用いてスピン偏極率 P の値を

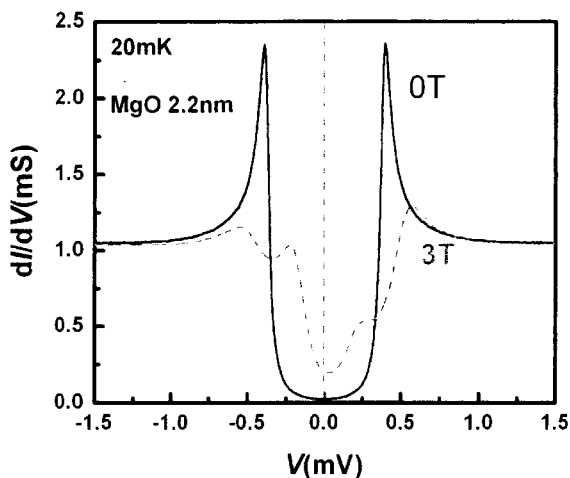


図3. MgO障壁層厚さ2.2 nmを持つ熱処理無しの素子の20 mKにおける測定結果(実線はゼロ磁場、点線は面内磁場3 Tを印加)。

計算でき、MgO障壁層厚2.0 nmと2.2 nmの両方の試料に対して共に $P=28\pm 1\%$ が得られた。

図4に350°Cで熱処理した素子に対する20 mKにおける結果を示す。素子抵抗は熱処理の有無に関わらず、殆ど変化しない。ゼロ磁場における $dI/dV-V$ 曲線において、熱処理無しの素子に比して、超伝導体電極のBCS基底状態を反映した振る舞いが幾分不明瞭になる。これは、熱処理によりトンネル過程における電子の障壁内もしくは障壁界面での散乱が増大したことを示唆しており[15]、これがどういった起源を持つものかを今後明らかにする必要がある。

面内磁場を4 T印加した際には超伝導体の電子状態密度のゼーマン分裂に起因するピークの分離を観察することができ、これらのピーク強度比からスピン偏極率は $70\pm 10\%$ と見積もられる。

ここで求めた $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}/\text{MgO}$ 界面のスピン偏極率から、(2)式を用いて20 mKにおける $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}/\text{MgO}/\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$ MTJのTMR比は熱処理無しで $\sim 17\%$ 、350°Cで熱処理すると240 (± 120)%になることが期待される。実際に、室温で測定されたMTJのTMR比はそれぞれ、 $\sim 9\%$ 、 $\sim 290\%$ であり、室温におけるTMR比は低温における値より低下することを考慮すると一致しているといえる[8]。

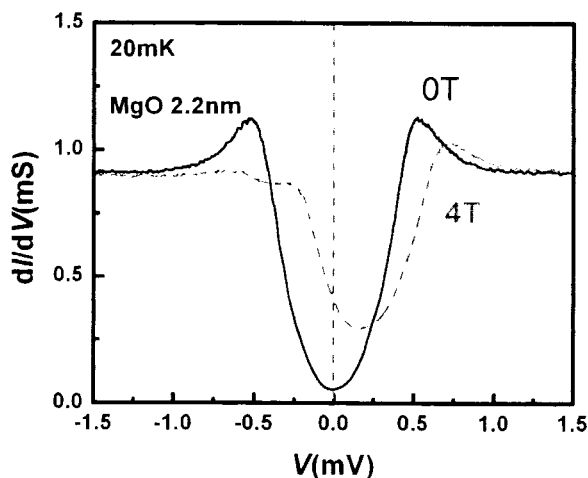


図4. MgO障壁層厚さ2.2nmを持つ350°Cで熱処理した素子の20 mKにおける測定結果(実線はゼロ磁場、点線は面内磁場4 Tを印加)。

4. まとめ

スピン偏極トンネル法を用いて $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}/\text{MgO}$ 界面におけるスピン偏極率を20 mKで測定した。熱処理無しの素子において $28\pm 1\%$ 、350°Cで熱処理した素子において $70\pm 10\%$ というスピン偏極率を得た。後者の値は $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$ 自身のスピン偏極率(40~50%程度)に比して極めて高く、磁性体材料と障壁材料を上手に組み合わせることで、高い界面スピン偏極率を得ることが可能であることを示している。また、ここで得られたスピン偏極率が、トンネル磁気素子で観測されるトンネル磁気抵抗比の大きさを良く説明することから、スピン偏極トンネル法を用いた様々な材料を組み合わせた界面のデータの蓄積が、今後の高出力磁気抵抗素子の設計に役立つものと期待される。

謝辞

本研究の一部は文部科学省の世界最先端IT国家実現重点研究開発プロジェクト「高機能・超低消費電力メモリの開発」の一環として行われた。

参考文献

- [1] T. Miyazaki and T. Tezuka: J. Magn. & Magn. Mater. 139 (1995) L231
- [2] L. S. Moodera, L. R. Kinder, T. M. Wong and

- R. Mersevey: Phys. Rev. Lett. 74 (1995) 3273
- [3] D. Wang, C. Nordman, J. Daughton, Z. Qian and J. Fink: IEEE Trans. Magn. 40 (1995) 2269
- [4] C. Kaiser, and S. S. Parkin: Apl. Phys. Lett. 84 (2004) 3582
- [5] S. Yuasa, T. Nagahama, A. Fukushima, K. Ando and Y. Suzuki: Jpn. J. Appl. Phys. 43 (2004) L588
- [6] S. Yuasa, T. Nagahama, A. Fukushima, Y. Suzuki and K. Ando: Nat. Mater. 3 (2004) 868
- [7] S. S. Parkin, C. Kaiser, A. Panchula, P. M. Rice, B. Hughes, M. Samant and S.-H. Yang: Nat. Mater. 3 (2004) 862
- [8] J. Hayakawa, S. Ikeda, F. Matsukura and H. Ohno: Jpn. J. Appl. Phys. 44 (2005) L587
- [9] J. Mathon and U. Umerski: Phys. Rev. B63 (2001) 220403(R)
- [10] X.-G. Zhang and W. H. Bultler: Phys. Rev. B70 (2004) 172407 [15] Costas M. Soukoulis and G. S. Grest: Phys. Rev. B21 (1980) 5119, for example
- [11] M. Julliere: Phys. Lett. 54A (1975) 225
- [12] R. Meservey and P. M. Tedrow: Phys. Rep. 238 (1994) 173
- [13] G. E. Bloder, M. Tinkham, and T. M. Klapwijk: Phys. Rev. B25 (1982) 4515; I. I. Mazin, A. A. Golubov, B. Nadgorny: J. Appl. Phys. 89 (2001) 7576
- [14] S. Ikeda *et. al.* to be submitted
- [15] Costas M. Soukpulis, and G. S. Grest: Phys. Rev. B21 (1980) 5119