日本応用磁気学会誌 24,607-610 (2000)

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

Magnetoresistive Effects of Co_yFe_{1,y} / Al-oxide / Co_yFe_{1,y} 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, Tagajya 985-0842 (1999年10月29日受理, 1999年12月14日採録)

The relationship between $\operatorname{Co}_{x}\operatorname{Fe}_{1-x}(X=100, 90, 75, 60, 50)$ and the tunneling magnetoresistive effect was investigated. $\operatorname{Co}_{x}\operatorname{Fe}_{1-x}$, 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 $\operatorname{Co}_{75}\operatorname{Fe}_{25}$ junctions yielded 40.7%. The MR ratios for $\operatorname{Co}_{75}\operatorname{Fe}_{25}$ 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_{h} , 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 $\operatorname{Co}_{x}\operatorname{Fe}_{1-x}$ junctions. As barrier height increased, weaker bias dependence was obtained.

Key words: TMR junction, ICP oxidation, $Co_x Fe_{1-x}$, 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フィルター及びスペ キュラー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,ポストスピンバルブヘッド 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",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 *. 強磁性トンネル接合は強磁性体 (F1) / 絶縁体/強磁体 (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のスピン分極率をP,, P,とすると (1)式で与えられ、スピン分極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_m, R_n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.

$$\mathbf{TMR} = \frac{\Delta R}{R} = \frac{R_{ap} - R_{p}}{R_{p}} = \frac{2P_{1}P_{2}}{1 - P_{1}P_{2}}$$
(1)

Fe, Co, Niのスピン分極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かの,飽

日本応用磁気学会誌 Vol. 24, No. 4-2, 2000

和磁化量とスピン分極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 生じるスピンバルブ構造を採用した.素子の膜構成は以下の 通りである. Si / Ni₈₁₅Fe₁₈₅(18.8) / Co_yFe_{1y}(3.9) / Al -oxide(1.3) / Co, Fe, (15) / Ir, Mn, (15) (単位:nm). 基板には 表面を 300 nm 熱酸化した Si ウェハーを用い, 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,Fe,,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ⁿを採用した. Alを成膜後, Ar: 20 sccm, O₁: 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ーを用いてパターニングし、接合面積は 3×3 μm²から102×102 μm²の範囲とした.抵抗一磁界曲線 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_s として ($R_{max} - R_s$) / $R_s \times 100$ %と定義した. 障壁 高さと障壁幅はバイアス電圧を±1V程度まで変化させて測 定した I-V 特性を Simmons の式[®]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 ×12 μ m²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4Oe,Co₆₀Fe₄₀,Co₅₀Fe₅₀の接合ではフ リー層の保磁力が7Oeから10Oe,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 Co Fe_{l-x} / Al-oxide / Co Fe_{l-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, Co₇₅Fe₂₅の素子のMR比は, 52×52 μ m²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 Co₇₅Fe₂₅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,Co₉₀Fe₁₀,Co₆₀Fe₄₀, Co₅₀Fe₅₀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6×6 μ m²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3×3 μm²から102×102 μm²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1×10⁵ Ωμm² 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 $52 \times 52 \mu m^2$ 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, $12 \times 12 \mu m^2$ の接合面積の素子におい ても全く崩れていない.しかし $3 \times 3 \mu m^2$ 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 $Co_{75}Fe_{25}$ 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 3×3 µm² から 102×102 µm² 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



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、Co₉₀Fe₁₀、Co₅₀Fe₅₀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 Co₇₅Fe₂₅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*L*_hと定義する と, *L*_hは 360 mV から 455 mV の間の値となった.

Fig. 6 に障壁高さと 「の関係を示した. 「」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. 4 MR ratio, barrier height, and barrier width as functions of Co content. Junction area is from $3 \times 3 \ \mu m^2$ to $102 \times 102 \ \mu m^2$.

日本応用磁気学会誌 Vol. 24, No. 4-2, 2000

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

609



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

生じるスピンフリ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 $Co_{x}Fe_{1,x}$ を用いた結 果, $Co_{75}Fe_{25}$ 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 , $Co_{75}Fe_{25}$ 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AI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1×10⁵ $\Omega\mu m^2$ 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).
- S. S. P. Parkin, K. P. Roche, M. G. Sarnant, P. M. Rice, and R. B. Beyers, R. E. Scheuerlein, E. J. O'Sullivan, S. L. Brown, J. Bucchigano, 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 : Phisica 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).