

博士学位論文要約（令和4年3月）

## 微細磁気トンネル接合における非線形輸送特性に関する研究

篠崎 基矢

指導教員：深見 俊輔 研究指導教員：大塚 朋廣

## A Study on Nonlinear Electron Transport in Nanoscale Magnetic Tunnel Junctions

Motoya SHINOZAKI

Supervisor: Shunsuke FUKAMI, Tomohiro OTSUKA

In mesoscopic systems, various quantum mechanical effects can be observed. The tunneling effect of electrons passing through a potential barrier is a typical phenomenon. Tunnel junction devices based on this effect have been well studied and have brought out fascinating physical phenomena such as the Esaki diodes and Josephson effect. Among them, magnetic tunnel junctions (MTJs), consisting of a ferromagnetic/insulator/ferromagnetic structure and exhibit spin-dependent tunneling conduction properties, have attracted much attention. MTJ has many applications, such as magnetic field sensors, non-volatile memories, high-frequency oscillators, detectors, random number generators, and reservoirs/stochastic computing. In this study, we investigate the nonlinear electron transport in nanoscale CoFeB/MgO magnetic tunnel junctions with a perpendicular magnetic easy axis. This work aims to understand the mechanism of nonlinear electron transport. We find an extrinsic contribution such as edge damage by the microfabrication process on nonlinear conductance and noise. Edge damage causes asymmetry in the band structure, resulting in enhanced nonlinear conductance and excitation of non-equilibrium magnons. The results obtained in this work are expected to be helpful in understanding the nonlinear electron transport properties in nanoscale MTJs from both fundamental and applied perspectives, and thus crucial for future development of the MTJs utilized in many applications.

## 1. はじめに

電子のトンネル効果はその代表例であり、電子の波としての性質からある確率でエネルギー障壁を越えることができるという興味深い効果である。このトンネル効果により、放射性元素の $\alpha$ 崩壊やアンモニア分子の反転遷移など原子レベルの様々な物理現象が理解された。またナノテクノロジーの進歩により人工的に量子力学的効果を制御できるようになると、その効果を応用したデバイスが実証されてきた。半導体のpn接合を用いたエサキダイオードや超伝導体/絶縁体/超伝導体構造を有するジョセフソン接合は、トンネル効果を利用した代表的なデバイスであり、前者は高周波発振回路や検波回路、後者は高感度磁場センサーや量子ビットなどに応用されており、今日では量子力学的効果は実験室のみならず我々の日常生活においても欠かせないものとなっている。

本論文における研究対象である磁気トンネル接合(MTJ: Magnetic Tunnel Junction)は電子(電荷+スピン)のトンネル効果を利用した量子スピントロニクスデバイスの代表例の一つである[1]。MTJは数nm程度の薄い絶縁体を2枚の強磁性体で挟んだ積層構造を基本構造としており、上下の強磁

性層磁化の相対角度により素子抵抗値が決定し、特に磁化の平行・反平行状態において抵抗値がそれぞれ最小・最大となる。これはトンネル磁気抵抗(TMR: Tunnel magnetoresistance)効果と呼ばれ、MTJ最大の特徴である。

MTJのもう一つの特徴として電流-電圧( $I$ - $V$ )特性が非線形であることが挙げられる。その原因は電子のトンネル効果やマグノンやフォノンとの相互作用、絶縁層中における不純物や欠陥散乱によるものと理解されており、一般的にMTJのみならず金属/絶縁体/金属トンネル接合においてはバイアス電圧を印加するほど電流が非線形的(級数展開的)に増加する。MTJにおいてはマグノンとの相互作用が非線形性に大きく寄与することが指摘されており、分光学的な観点からよく研究されてきた。一方でMTJにおける非線形な電子輸送特性を微視的な観点から理解しようとする試みも行われてきたが[2]、実験的報告は面内磁化容易軸を有するMTJにおいて極僅かにあるのみである。MTJを応用する上では、少なくとも直径100nm以下かつ垂直磁化容易軸を有する微細素子における電子輸送機構を明らかにする必要があるが、この領域における実験的報告は未だされ

ておらず、TMR 比の減少の原因となる非線形輸送特性の微視的理解は重要な課題である。加えて近年、量子ドットや Aharonov-Bohm リングといった典型的なメソスコピック系素子において、線形応答を超えた非平衡状態における物理現象をゆらぎの定理に基づいて理解する試みが注目されている。こうした基礎研究も盛んな現在、スピン依存輸送特性が顕著な MTJ における非平衡物理の理解は挑戦的な課題であり、その橋渡しをする上で MTJ の非線形輸送特性を微視的観点から明らかにすることは基礎的にも重要である。そこで本研究では垂直容易軸を有する微細 MTJ における非線形輸送特性の理解を深めることを目的とした。

**2. 垂直容易 CoFeB/MgO MTJ における非線形輸送特性**

本研究で用いた MTJ の膜構成は以下の通りである。Si/SiO<sub>2</sub> sub./Ta (5)/Pt (5)/積層フェリ参照層/MgO/CoFeB (1.8)/Ta (5)/Ru (5)、ここで()内の単位は nm である。成膜は dc/rf マグネトロンスパッタリングにより行った。成膜した MTJ 構造は、電子線描画、反応性イオンエッチング、Ar イオンミリングにより微細加工を行い、微細加工後に 300°C で 1 時間の熱処理を行った。作製した MTJ の素子サイズは、抵抗面積積 RA (=12 Ωμm<sup>2</sup>) 及び平行状態の MTJ 抵抗から電氣的に算出した。

図 1(a)は直径 80nm の MTJ について、面内磁場強度を変えて I-V 特性を測定した結果である。各磁場における I-V 特性を級数展開式  $I = G_1V + G_2V^2 + G_3V^3$  を用いて解析を行った。

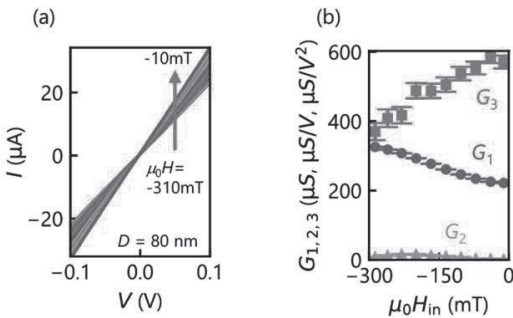


図 1(a) 直径 80nm の MTJ について、面内磁場強度を変えて測定した I-V 特性 (b) 各コンダクタンスの面内磁場依存性

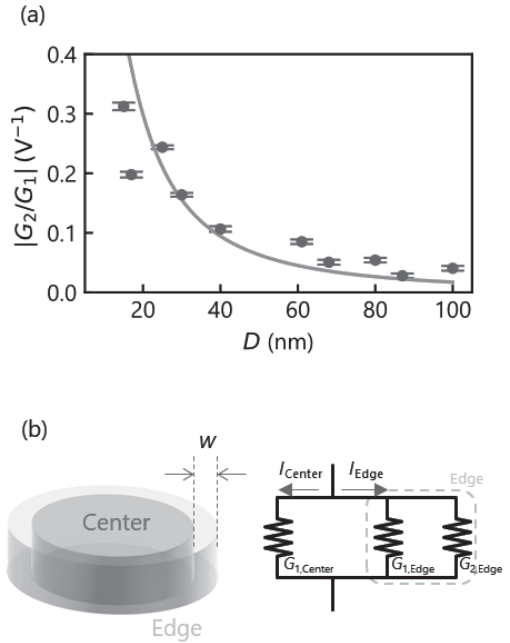


図 2(a)  $G_2/G_1$  の素子サイズ  $D$  依存性。プロットは実験値、オレンジ実線は計算値。(b)  $G_2/G_1$  の計算に用いたエッジ変調モデルとその等価回路

ここで  $G_1$  は線形コンダクタンス、 $G_2, G_3$  は非線形性を定量付ける非線形コンダクタンスである。そして、 $G_1 \sim G_3$  の面内磁場依存性を図 1(b)に纏める。各印加磁界角度についてスイッチング磁界を直交座標形式で纏めたものが図 1(b)である。各コンダクタンスにおいて磁場に依存する振る舞いが観測された。

まずは  $G_2$  の振る舞いに着目する。図 2(a)に  $G_2/G_1$  の素子サイズ  $D$  依存性を示す。素子サイズ  $D$  の減少に伴い  $G_2/G_1$  は増大傾向を示した。この微細化による増大を説明するために、図 2(b)のように MTJ 素子のエッジ部の特性変調を考え、この変調によりエッジ部ではバンド構造の対称性が崩れているようなモデルを仮定する。エッジ幅  $w = 4$  nm, 障壁高さ  $\phi = 0.6$  eV, 変調による障壁の非対称性  $\Delta\phi/\phi = 0.3$  として、Brinkman モデル[3]を用いて計算した結果を図中のオレンジ実線で示す。ここで素子中央部は線形コンダクタンスのみに起因する電流  $I_{Center} = G_{1,Center}V$ 、エッジ部では加えて 2 次の成分  $I_{Edge} = G_{1,Edge}V + G_{2,Edge}V^2$  が重畳するような回路モデルを用いた。計算結果は実験結果をよく再現しており、本モデルが概ね妥当であることがわかる。したがってエッジ部における外因的なバンド構造の変調により  $G_2$  が生じると

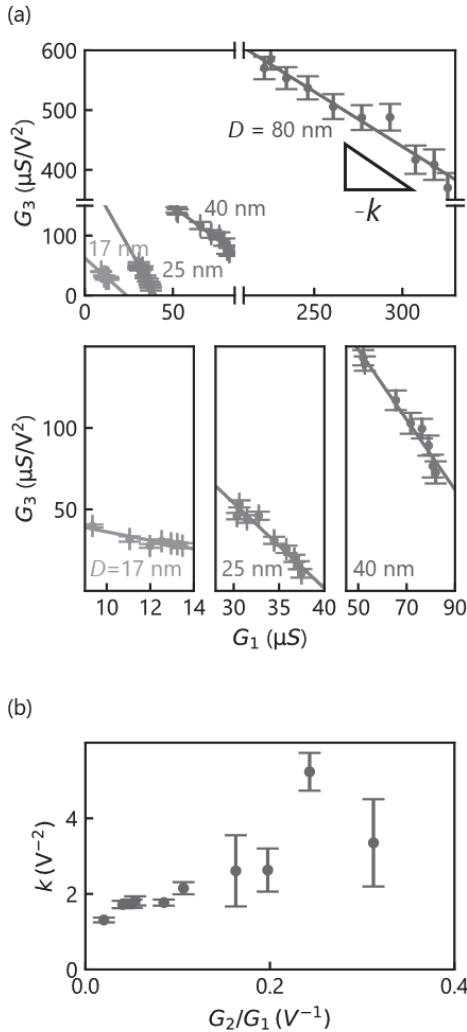


図3 (a)  $D = 17, 25, 40, 80$  nm の MTJ における  $G_1$  と  $G_3$  の相関 (b)  $k$  と  $G_2/G_1$  の関係

考えられ、その外因的効果は素子サイズ  $D$  が小さくなるほど、エッジ部の占める領域が大きくなるため顕在化する。この外因的寄与の起源については後に議論する。

続いて、3 次の非線形コンダクタンス  $G_3$  に着目する。図 1(b)において、面内磁場強度の増大に伴い  $G_1$  が増大していくのに対し、 $G_3$  は減少していく振る舞いが見られた。そこで、 $D = 17, 25, 40, 80$  nm の MTJ における  $G_1$  と  $G_3$  の関係をプロットしたものを図 3(a)に示す。先行研究と同様に明確な負の相関が観測された。Brinkman モデルによると  $G_1$  と  $G_3$  には正の相関があるため、これは MTJ 特有の現象である。そこでこの相関関係を 1 次関数

$G_3 = -kG_1 + m$  を用いて解析を行った結果が、図中の実線である。この負の相関関係は MTJ における  $G_1$  の式としてよく知られ Julliere モデルに対して、スピンフリップを導入したモデルで  $G_3$  を記述することで現象論的に導くことができる。また、面内容易 MTJ を用いた先行研究と本研究で得られた  $k$  はおおよそ同じ値 ( $\sim 2$ ) を示しており、 $G_3$  の起源には磁化の容易軸方向に依存しない普遍的な物理機構があることが示唆される。そしてその普遍的な機構の一つの可能性として、スピンフリップの要因にもなる界面におけるマグノンの励起がその候補として考えられ、マグノン支援トンネリングが  $G_3$  に寄与している可能性が考えられる。また、図 3(b)に示すように、 $k$  と  $G_2$  の間には正の相関が観測され、 $G_2$  の起源である MTJ エッジ部のバンド構造の変調が  $k(G_3)$  にも寄与することが示唆された。

### 3. 強磁性共鳴によるスピントルク評価と微細加工の影響

前章ではバンド構造の対称性が破れる要因として、素子エッジ部の特性変調を仮定した。このような素子エッジ部の影響は応用上の観点から広く調べられており、磁化反転モードや磁気特性などの相関が報告されている。中でも、Ar イオンミリング角度の異なる 2 つの素子を用いて比較することで、その影響を定量的に議論することが可能である[4,5]。そこで本章では、MTJ におけるスピン流を微細加工プロセスの異なる 2 種類の素子を用いて評価・比較を行うことで、第 3 章における結論の妥当性を議論し、未だ明らかにされていない微細加工プロセスの影響を明らかにするとともに、その評価手法を確立する。

バンド構造をよく反映するパラメータとしてフィールドライクトルク (FLT) と呼ばれるスピンと磁化の相互作用の 1 つが知られている。この FLT を定量評価する手法として強磁性共鳴の測定を行った。MTJ 素子はミリング角度を斜めにしたもの (通常構造) と真上からのもの (ステップ構造) を作製した。先行研究の結果から、通常構造では、ステップ構造と比較してエッジ部の特性が大きく変化することが知られている。

図 4 に両構造において強磁性共鳴スペクトルを様々なサイズの素子で測定した結果を示す。どちらも大きな素子ではスペクトルに差は見られないが、直径 40nm 以下の小さい素子では、スペクトルの形状に差が見られた。このスペクトル形状は磁化に働くトルクを反映しており、反対称スペクトルの形成は FLT の線形成分が生じていることを表している。この FLT の線形成分はバンド構

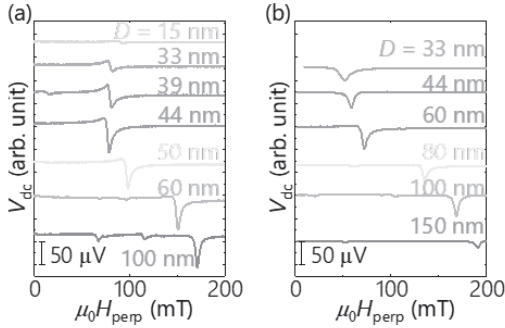


図 4(a) 通常構造 (b) ステップ構造における FMR スペクトルの素子サイズ依存性

造が非対称のときに生ずるため、通常構造では微細化に伴いバンド構造の対称性が崩れていることがわかる。そしてステップ構造ではこの傾向が見られないことから、前章や本実験で見られたバンド構造の対称性の変化は、微細加工プロセスによる MTJ エッジ部の特性変調によるものと考えられる。

### 5. MTJ 素子における非平衡ノイズ

これまでの結果から、特に直径 40nm 以下の微細な MTJ における非線形輸送特性には素子エッジ部の効果が無視できないことを明らかにした。本章では輸送特性の瞬時的性質であるノイズの評価を行い、非線形コンダクタンスとの相関について議論し、微細 MTJ におけるノイズ機構を明らかにする。

非線形コンダクタンスの実験と同様の直径 20 nm の MTJ を用いて、ノイズスペクトルの外部磁場及びバイアス電圧依存性を測定した結果を図 5 に示す。 $\mu_0 H_m = -10$  mT では白色ノイズが観測された一方で(高周波域の減衰はフィルタによるもの)、-30 mT ではランダムテレグラフノイズ(RTN)型のスペクトルを示した。また、両ノイズ共にバイアスに依存する振る舞いが観測された。ここで電流パワースペクトル密度に換算し、そのバイアス依存性を 2 次関数で解析を行い、2 次の係数  $S_2$  の外部磁場依存性を纏めた(図 6)。特に RTN は磁化が垂直方向から大きく傾いている際に急峻に大きくなり、本実験結果を矛盾なく説明可能な機構として非平衡マグノンの生成・消滅が考えられる。また白色ノイズについては起源の特定には至らなかったが、直径 40 nm の素子においてはバイアス依存性を示さなかったことから、エッジ部の効果に起因する非平衡ノイズであることが示唆された。

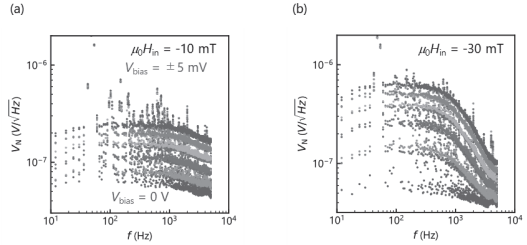


図 5 (a)  $\mu_0 H_m = -10$  mT 及び(b) -30 mT における電圧ノイズスペクトル

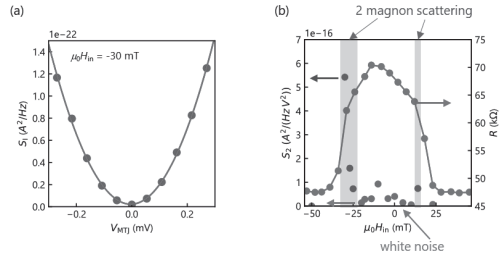


図 6 (a) 電流パワースペクトル密度のバイアス電圧依存性 (2)  $S_2$ (左縦軸)及び線形抵抗(右縦軸)の外部磁場依存性

### 6. まとめ

本研究では、垂直磁化容易軸を有する微細 CoFeB/MgO MTJ における非線形輸送特性を微視的観点から詳細に調べ、その機構を議論した。こうした理解に基づき、MTJ を用いた研究は工学的応用の発展のみならず、スピン依存伝導を舞台とした非平衡物理学研究への展開も期待される。

### 文献

- [1] T. Miyazaki and N. Tezuka, J. Magn. Magn. Mater. **139**, L231 (1995).
- [2] S. Iwakiri, S. Sugimoto, Y. Niimi, Y. Kozuka, Y. K. Takahashi, S. Kasai, and K. Kobayashi, Phys. Rev. B **103**, 245427 (2021).
- [3] W. Brinkman, R. Dynes, and J. Rowell, J. Appl. Phys. **41**, 1915 (1970).
- [4] M. Shinozaki, J. Igarashi, H. Sato, and H. Ohno, Appl. Phys. Express **11**, 043001 (2018).
- [5] M. Shinozaki, T. Dohi, J. Igarashi, J. Llandro, S. Fukami, H. Sato, and H. Ohno, Appl. Phys. Lett. **117**, 202404 (2020).