

むらい じゅんいちろう

氏 名村 井 純 一 郎
授 与 学 位 博士 (工学)
学位授与年月日 平成13年3月26日
学位授与の根拠法規 学位規則第4条第1項
研究科, 専攻の名称 東北大学大学院工学研究科 (博士課程) 応用物理学専攻
学 位 論 文 題 目 非弾性電子トンネル分光法 (IETS) を用いた強磁性体/絶縁体界面の
研究
指 導 教 官 東北大学教授 宮崎 照宣
論 文 審 査 委 員 主査 東北大学教授 宮崎 照宣 東北大学教授 小池 洋二
東北大学教授 高中 健二 東北大学助教授 近藤 泰洋
東北大学助教授 北上 修

論 文 内 容 要 旨

第1章 序論

強磁性トンネル接合は電子がトンネルできる程度の充分薄い絶縁層を強磁性層で挟んだ三層構造で構成されており, 両磁性層の磁化の相対角度に依存して抵抗が変化するトンネル磁気抵抗 (TMR) 効果を示す. この接合はハードディスクに用いられる磁気ヘッドや磁気メモリ (MRAM) への応用が期待されている. そのため, 素子に用いられる接合には高 TMR 比を維持した状態で微細化, 抵抗の制御, かつ高耐熱性が求められている. 現在も実用化に向けて研究が盛んに行われているが, トンネル抵抗及び TMR 比の大きなバイアス電圧依存性などの伝導特性に関する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必要がある. 強磁性トンネル接合の伝導特性は強磁性体/絶縁体界面に存在する磁性不純物やマグノン非弾性励起による伝導電子のスピンス散乱に大きく依存すると考えられている. しかしながら, 接合の界面状態を表面分光や観察などの実験により直接調べ, さらに伝導特性と関連づけて議論する事が困難である事から強磁性トンネル接合の界面状態と伝導特性の関連は十分に明らかではない. 非弾性電子トンネル分光法 (IETS) はトンネル接合の伝導特性より接合界面の素励起 (フォノン, マグノン) による変化を検出する非常にユニーク, かつ接合の界面状態を直接調べることができる非常に有力な手法である. そこで, 本研究は強磁性トンネル接合の界面状態と伝導特性の関連を IETS を用いて明らかにする事を目的として, 常伝導体/絶縁体/強磁性体/常伝導体接合と強磁性トンネル接合の伝導特性を調べることにより, 接合の界面状態と伝導特性の関連について議論した.

第2章 実験方法

試料作製には I) RF マグネトロンスパッタ法を用いて $\text{Al}/\text{Al-oxide}/\text{M}(d_M \text{ \AA})/\text{Al}$ ($\text{M} = \text{Co}, \text{Fe}, \text{Ni}$) 接合を, II) ICP マグネトロンスパッタ法を用いて $\text{Co}/\text{Al}(d_{\text{Al}} \text{ \AA})/\text{Al}(13 \text{ \AA})\text{-oxide}/\text{Co}, \text{Co}_{75}\text{Fe}_{25}/\text{Al}(8 \text{ \AA})\text{-oxide}/\text{Co}_{75}\text{Fe}_{25}$ 接合を作製した. Al-oxide は I) Al を製膜後, 恒温槽中で 60°C , 24 時間放置する, II) Al を成膜後, そ

の表面に 100 W, O_2 圧: 0.73 Pa の条件でプラズマ酸化を行う事により形成した. 熱処理は 2×10^{-5} Torr 以下の真空中で 275°C, 1 時間行った. 作製した試料の $I - V$ 特性は直流 4 端子法で, $dI/dV - V$ 特性と IET スペクトルはバイアス変調法を取り入れた回路を用いて測定を行った. なお, 測定温度は全て 4.2 K, 最大印加磁界は 110 Oe である.

第3章 Al/Al-oxide/M/Al 接合の伝導特性

本章では, Al/Al-oxide/M/Al ($M = Co, Fe, Ni$) 接合の $dI/dV - V$ 特性と IET スペクトルの測定結果を示し, 考えられる接合の界面構造について記述している.

Fig. 1 に Al/Al-oxide/Co(d_{Co})/Al ($d_{Co} = 0 \sim 50 \text{ \AA}$) 接合の $dI/dV - V$ 特性を示す. この場合, 下部電極から上部電極へ電流を流す方向を正のバイアスとしている. $d_{Co} = 2 \text{ \AA}$ の接合はゼロバイアス近傍でコンダクタンスの正のピークを示す. この正のピークは Co 膜厚の増加に従い徐々に小さくなり, $d_{Co} = 50 \text{ \AA}$ の接合では消失する. このゼロバイアス付近の正のピークは正の zero-bias anomaly と呼ばれ, 接合界面の磁性不純物によるトンネル電子の散乱により生ずると考えられる.

Fig. 2 に Al/Al-oxide/Co(d_{Co})/Al ($d_{Co} = 0 \sim 50 \text{ \AA}$) 接合の IET スペクトルを示す. Al/Al-oxide/Al 接合 ($d_{Co} = 0 \text{ \AA}$) では, 27, 33 mV 及び 120 mV に Al-phonon 及び Al-O 縦光学 (LO) フォノンに対応するピークが観測される. これに対して, $d_{Co} = 2, 10 \text{ \AA}$ の接合の IET スペクトルは正の zero-bias anomaly に対応した強い負のピークを 4 mV 付近に示す. 一方, $d_{Co} = 2 \text{ \AA}$ の接合では $d_{Co} = 0 \text{ \AA}$ で見られた IET スペクトルのフォノンによるピークは不明瞭である. $d_{Co} \geq 10 \text{ \AA}$ では再びフォノンによるピークを示しているものの, $d_{Co} = 0 \text{ \AA}$ の接合で得られたエネルギー位置と明らかに異なっている. 特に, 高バイアス側に見られるピークのエネルギー位置は 150 mV \sim 200 mV となっており, Al-O LO フォノンのエネルギー位置より高バイアス側にシフトし, 系統的な d_{Co} 依存性は示さない. このエネルギー位置の変化は接合界面に

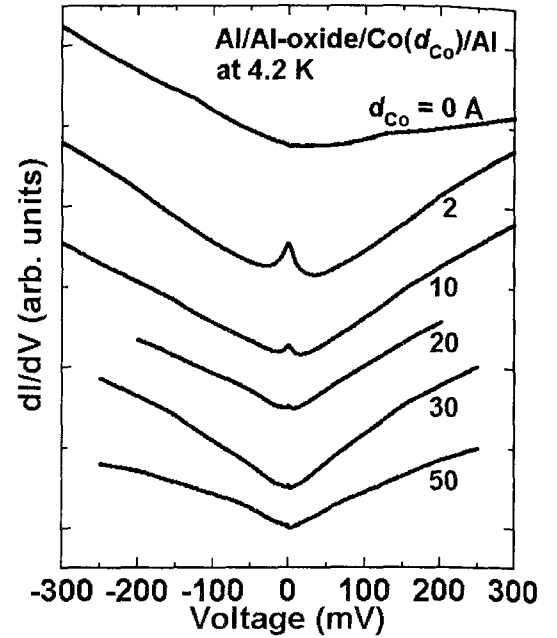


Fig. 1 Al/Al-oxide/Co(d_{Co})/Al 接合の $dI/dV - V$ 特性.

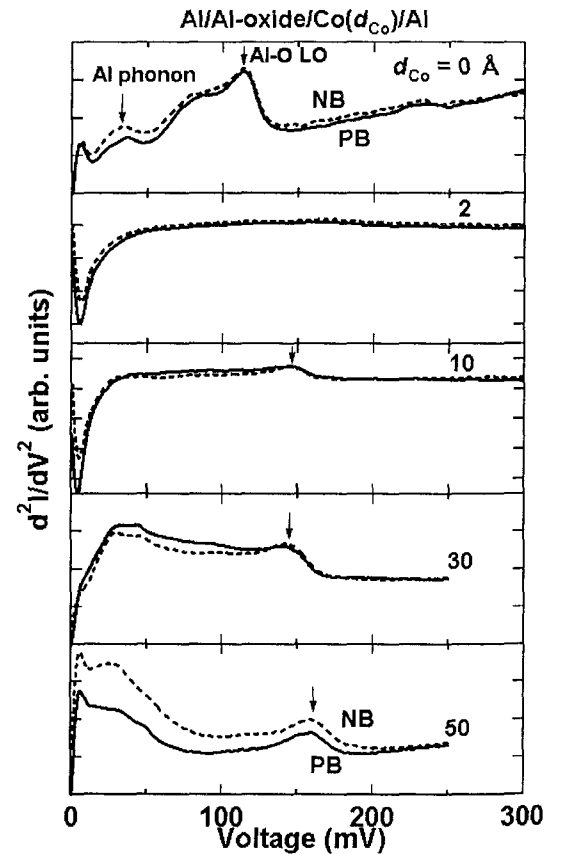


Fig. 2 Al/Al-oxide/Co(d_{Co})/Al 接合の IET スペクトル. 実線は正のバイアス (PB) を, 点線は負のバイアス (NB) を表す.

Al-Co-O複合酸化物が形成される為に生じたと考えられる。

第4章 強磁性トンネル接合の IETS

本章では、Co/Al/Al-oxide/Co 構造を持つ接合と $\text{Co}_{75}\text{Fe}_{25}/\text{Al-oxide}/\text{Co}_{75}\text{Fe}_{25}$ 構造を持つ接合の伝導特性と考えられる界面構造について記述している。

Fig. 3 に $\text{Co}_{75}\text{Fe}_{25}/\text{Al-oxide}/\text{Co}_{75}\text{Fe}_{25}$ 構造を有する接合 (酸化時間 40 s, 275°C で 1 時間熱処理) の IET スペクトルを示す。IET スペクトルはゼロバイアス近傍に明瞭な 2 つのピークを示し、バイアス電圧の増加に従い、急激に減少する。また、 ± 110 mV 付近に Al-O LO フォノンに対応した緩やかなピークが観測される。一方、反平行状態の IET スペクトルのピーク強度は平行状態のそれよりも大きい。これは反平行状態の IET スペクトルがマグノンの状態密度を反映している為と考えられる。

次に、マグノンの状態密度によるスペクトルの変化を明瞭に検出するために、両者の IET スペクトルの差、即ち差分 IET スペクトルを求めた。Fig. 4 に差分 IET スペクトルを示す。酸化時間が 40 s の $\text{Co}_{75}\text{Fe}_{25}/\text{Al-oxide}/\text{Co}_{75}\text{Fe}_{25}$ 接合の差分 IET スペクトル (a) は、ゼロバイアス近傍に明瞭な 2 つのピークを示す。一方、酸化時間が 120 s の接合の差分 IET スペクトル (c) では、内挿図に見られるようにその 2 つのピークは不明瞭になる。これは長時間酸化によって $\text{Co}_{75}\text{Fe}_{25}$ 電極が酸化され、マグノン非弾性励起が変化したと考えられる。また、酸化時間が 40 s の接合において、熱処理を行う前 (a) と 275°C で 1 時間熱処理を行った後の差分 IET スペクトル (b) を比較すると、差分 IET スペクトルに明瞭な変化は見られず、熱処理過程がマグノン非弾性励起に対して影響を殆ど与えていないことがわかる。これは熱処理により Al-oxide は均一化するものの、 $\text{Co}_{75}\text{Fe}_{25}$ 電極の構造は殆ど変化をしない為と考えられる。

さらに、得られた差分 IET スペクトルをマグノン非弾性励起モデルを用いて解析した。マグノン状態密度を界面マグノンとし、強磁性電極界面の結晶粒径 (l_m) とキュリー温度

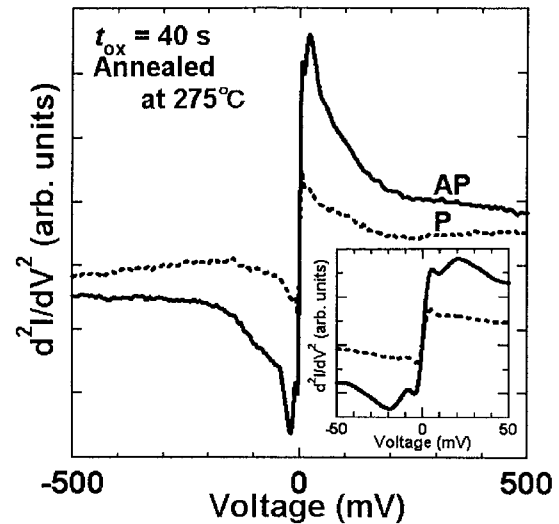


Fig. 3 $\text{Co}_{75}\text{Fe}_{25}/\text{Al-oxide}/\text{Co}_{75}\text{Fe}_{25}$ 構造を有する接合の (酸化時間 40 s, 275°C で 1 時間熱処理) IET スペクトル。実線は磁化の反平行状態 (AP) を、点線は磁化の平行状態 (P) を表す。

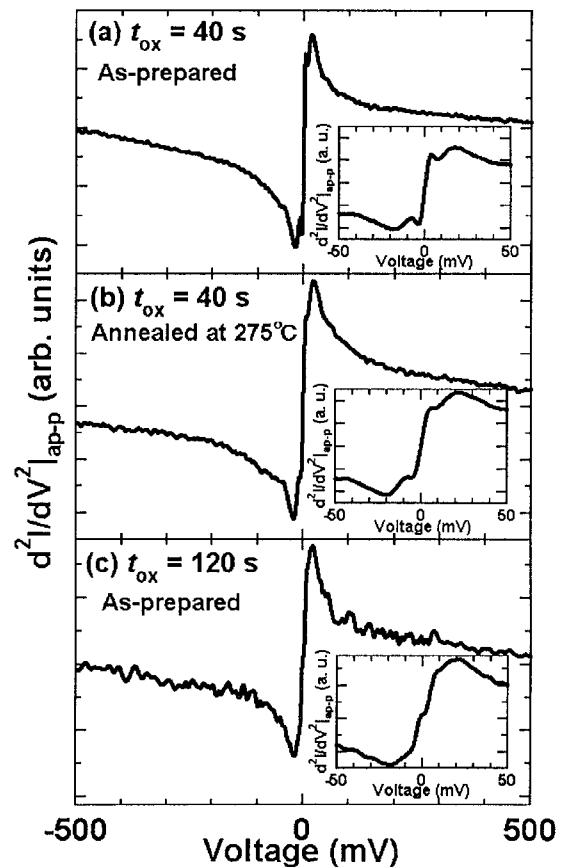


Fig. 4 $\text{Co}_{75}\text{Fe}_{25}/\text{Al-oxide}/\text{Co}_{75}\text{Fe}_{25}$ 構造を有する接合の差分 IET スペクトル: (a) 酸化時間 40 s, (b) 酸化時間 40 s, 275°C で 1 時間熱処理, (c) 酸化時間 120 s.

(T_c)の分布を仮定して、差分IETスペクトルからそれぞれの分布を求めた。その結果、 ℓ_m が0から150 Å、 T_c が0 Kから1500 Kまで分布すると仮定すると、実験で得られた差分IETスペクトルを説明することができる。この結晶粒径の値は断面TEMやAFM同時電流測定で得られる粒径と比較して妥当であった。

第5章 総括

本章では第1章から第4章より得られた結論を総括している。

Al/Al-oxide/M/Al接合(M = Co, Fe, Ni)について、 $dI/dV - V$ 特性は正、または負のzero-bias anomalyを示した。この変化は接合界面の磁性不純物によるトンネル電子の散乱やキャパシタンス効果が大きく現れたと考えられる。一方、IETスペクトルはAl-M-oxide複合酸化物フォノンに対応したピークを示した。また、Co/Al/Al-oxide/Co, $\text{Co}_{75}\text{Fe}_{25}$ /Al-oxide/ $\text{Co}_{75}\text{Fe}_{25}$ 構造を有する強磁性トンネル接合について、磁化の反平行状態のIETスペクトルと平行状態のそれとの差、即ち差分IETスペクトルを求めることにより磁氣的(マグノン)非弾性励起による変化を求めた。さらに、マグノン非弾性励起の起源である接合界面のマグノンの状態密度を界面マグノンとし、強磁性電極界面の結晶粒径(ℓ_m)とキュリー温度(T_c)の分布を仮定して、差分IETスペクトルからそれぞれの分布を求めた。

以上より、本研究の重要な成果は常伝導体/絶縁体/強磁性体/常伝導体接合に対して、高バイアス領域まで含めた伝導特性と界面状態との関連を系統的に調べ、磁性体がトンネル伝導に与える影響を議論した事である。もう一つの重要な成果は、強磁性トンネル接合の差分IETスペクトルよりマグノン非弾性励起の変化が得られる事を示し、さらにマグノン非弾性励起の起源である接合界面のマグノンの状態密度を考慮して、強磁性トンネル接合の伝導特性と界面状態の関連を議論した事である。

論文審査結果の要旨

強磁性トンネル接合は $10 \sim 20 \text{ \AA}$ の薄い絶縁層を強磁性層で挟んだ三層構造を基本とし、両磁性の磁化の相対角度に依存して接合面に垂直に測ったコンダクタンスが変化する現象をトンネル磁気抵抗(Tunnel magnetoresistance:略して TMR)効果という。TMR 効果の物理的興味に加えてこのトンネル接合は磁気ヘッドや磁気メモリへの応用が期待されるため、これに関する様々な研究が展開されている。著者は非弾性電子トンネル分光法(Inelastic Electron Tunneling Spectroscopy:略して IETS)が接合界面のフォノン、マグノン等の素励起を敏感に反映することから、IETSを用いて強磁性トンネル接合の界面状態と伝導特性、特に TMR 効果との関連を明らかにすることを目的に研究を行った。本論文はこの成果をまとめたもので全 5 章よりなる。

第 1 章は序論であり、本研究の背景及び研究目的を述べている。

第 2 章は実験方法で接合試料の作製方法および自作した IET スペクトル測定装置の詳細について述べている。

第 3 章では Al/Al-oxide/M/Al (M=Co, Fe, Ni) 接合の dI/dV - V 特性と IET スペクトルを系統的に調べた結果について記述している。M=Co, Fe の場合には磁性層の平均厚が非常に薄く、微粒子状態と考えられる厚さで正の zero-bias anomaly が現れた。これに対して M=Ni の場合には比較的厚い状態で anomaly が観測された。Ni は非常に薄い状態で磁気モーメントを消失していることを考慮する。これらの特徴は接合界面の磁性不純物によるトンネル電子の散乱により生じていると結論される。また、IET スペクトルには Al-M-O 縦光学フォノンに対応したピークが観測された。

第 4 章では強磁性トンネル接合の IETS について述べている。強磁性トンネルの接合において、接合の両磁性層が平行と反平行でのそれぞれの IET スペクトルを測定し、両者のスペクトルの差を取ることで、マグノンの状態密度によるスペクトルをはじめて求めた。得られた差分 IET スペクトルをマグノン非弾性励起モデルを用いて解析した。その際マグノンの状態密度を界面マグノンとし、強磁性電極界面の結晶粒径とキュリー温度が分布していると仮定すると実験で得られた IET スペクトルの形状を説明できることを示した。このような考察は強磁性トンネル接合の研究では初めてであり、独創的研究といえる。

第 5 章は総括であり本研究で得られた主要な結果をまとめている。

以上、要するに本論文は Al-oxide /強磁性体接合の伝導特性と界面状態との関連を系統的に調べて磁性体がトンネル伝導に与える影響を議論した。更に、磁化が平行と反平行状態での IET スペクトルの差を求めることで、強磁性トンネル接合のマグノン非弾性励起を観測できることを初めて示したもので、今後のスピニエレクトロニクス分野の学問の発展に少なからず寄与する。

よって、本論文は博士（工学）論文として合格と認める。