

双势垒磁性隧道结的磁电阻效应及其 在自旋晶体管中的应用*

曾中明¹⁾ 韩秀峰¹⁾ 杜关祥¹⁾ 詹文山¹⁾ 王 勇²⁾ 张 泽²⁾

¹⁾中国科学院物理研究所(凝聚态物理国家实验室)磁学国家重点实验室, 100080 北京)

²⁾中国科学院物理研究所(凝聚态物理国家实验室)先进材料与结构分析电镜实验室, 100080 北京)

(2004 年 11 月 22 日收到, 2004 年 12 月 15 日收到修改稿)

利用磁控溅射方法沉积双势垒磁性隧道结多层膜, 其中 Al-O 势垒层由等离子体氧化 1 nm 厚的金属铝膜方式制备, 然后采用深紫外光曝光和 Ar 离子刻蚀技术、微加工制备出长短轴分别为 6 和 3 μm 大小的椭圆形双势垒磁性隧道结(DBMTJ), 并在室温和低温下对其自旋电子输运特性进行了研究. DBMTJ 的隧穿磁电阻(TMR)比值在室温和 4.2 K 分别达到 27% 和 42.3%, 结电阻分别为 $13.6 \text{ k}\Omega \cdot \mu\text{m}^2$ 和 $17.5 \text{ k}\Omega \cdot \mu\text{m}^2$, 并在实验中观察到平行状态下存在低电阻态及共振隧穿效应, 反平行态下呈现高电阻态以及 TMR 随外加偏压或直流电流的增加而发生振荡现象. 由此, 设计了一种基于这种双势垒磁性隧道结隧穿特性的自旋晶体管.

关键词: 双势垒磁性隧道结, 隧穿磁电阻, 共振隧穿效应, 自旋晶体管

PACC: 7340G, 7570P, 7340R

1. 引 言

1995 年宫崎照宣等人在具有磁性金属/绝缘体/磁性金属(FM/I/FM)结构的磁性隧道结中发现了较大的隧穿磁电阻(tunneling magneto-resistance, TMR)效应^[1-3], 由于磁性隧道结在计算机硬盘(hard disk drive, HDD)磁读出头、磁随机存储器(MRAM)、自旋晶体管和其他磁敏器件方面有重要的应用前景和实用价值, 它引发了国际上先进国家的科研单位及许多知名公司对磁性隧道结材料及其器件应用进行了深入和系统的研究^[4-6]. TMR 效应是一种与自旋极化输运过程相关的现象, 其电导率(磁电阻)的大小与上、下两磁电极的磁化方向(反平行、平行)有关^[1]. 目前, 人们在单势垒磁性隧道结(SBMTJ)的研究方面取得了显著成果, 利用能适合工业化大规模生产的磁控溅射方法制备的 Co-Fe 和 Co-Fe-B 多晶合金磁性隧道结其室温 TMR 可分别高达 50%^[5]和 70%^[7]. 但要满足多方面的实际应用, 自旋电子学及其磁性隧道结材料还面临着许多带有挑战性的问题需要进一步研究和解决, 如如何实现自旋极化电

子的自旋分离和自旋极化电流的注入、如何保持自旋极化电子在输运过程中自旋方向不变、如何实现自旋极化电流的输出与放大等等, 这些应用基础研究对发展自旋晶体管等新型自旋电子学器件是非常重要的.

Zhang 等人从理论^[8]上预言了在双势垒磁性隧道结(DBMTJ)中存在隧穿磁电阻随偏置电压的振荡现象, 同样, 一些学者^[9, 10]也从理论上预言在磁性层和势垒层中间插入一薄层非磁金属层(nonmagnetic layer, NM)的磁性隧道结中存在 TMR 随非磁金属层厚度 d 增大而振荡的现象. 然而早期实验^[11-14]仅观测到 TMR 值随偏置电压增加而单调下降、一直未观测到 TMR 随偏置电压(电流)增加而振荡的效应. Yuasa 等人^[15]通过在 Co 单晶膜和势垒层间插入一层 Cu 单晶膜而发现了 TMR 随非磁性金属 Cu 层厚度增大而导致的振荡效应. 虽然这不是偏置电压导致的 TMR 振荡效应, 但这一进展对研究自旋极化共振隧穿效应及开发相关联的新型器件具有很好的启示作用. 然而由于制备工艺的困难和其他原因, 目前对双势垒磁性隧道结的研究还非常薄弱, 特别是对双势垒磁性隧道结的自旋极化共振隧穿的研究,

* 国家重点基础研究发展规划项目(批准号 2001CB610601)、中国科学院知识创新工程、国家自然科学基金(批准号 50271081, 10274103)和国家杰出青年基金(批准号 50325104)资助的课题.

在实验方面尚无翔实而可靠的报道.

本文用微加工方法制备了高质量的双势垒磁性隧道结,初步研究了双势垒磁性隧道结的输运特性,获得了较大的室温磁电阻效应,观察到了在低直流电流(偏压)和上中下磁电极处于平行状态下存在低电阻态的共振隧穿效应,同时也在反平行状态下观测到结电阻(磁电阻)随外加直流电流(偏压)呈现出的振荡效应,在自旋极化共振隧穿效应研究方面取得了突破性的进展.我们进一步利用这种隧穿特性,提出了基于双势垒磁性隧道结的几种自旋晶体管原理型器件结构.

2. 实验方法

我们设计的双势垒磁性隧道结由 19 层纳米薄膜构成,其结构如下:Ta(5 nm)/Cu(30 nm)/Ni₇₉Fe₂₁(10 nm)/Ir₂₂Mn₇₈(12 nm)/Co₇₅Fe₂₅(4 nm)/Ru(0.9 nm)/Co₇₅Fe₂₅(4 nm)/Al(1 nm)-oxide/Co₇₅Fe₂₅(1 nm)/Ni₇₉Fe₂₁(2 nm)/Co₇₅Fe₂₅(1 nm)/Al(1 nm)-oxide/Co₇₅Fe₂₅(4 nm)/Ru(0.9 nm)/Co₇₅Fe₂₅(4 nm)/Ir₂₂Mn₇₈(12 nm)/Ni₇₉Fe₂₁(10 nm)/Cu(30 nm)/Ta(5 nm).我们利用日本真空(ULVAC)公司制造的 MPS-4000-HC7 型超高真空、多功能磁控溅射仪来沉积双势垒磁性隧道结多层膜,其中 AlO_x 势垒层由等离子体氧化 1 nm 厚的金属铝膜制备,然后采用深紫外曝光和 Ar 离子刻蚀技术,微加工制备出长短轴分别为 6 和 3 μm 大小的椭圆形双势垒磁性隧道结.溅射前真空腔内本底真空优于 5.0 × 10⁻⁷ Pa,溅射时氩气(Ar)压力为 0.07 Pa.样品的制备和微加工过程均在超净实验室里完成,具体微加工过程类似于文献[16, 17]的描述.采用标准四探针法和物理性能测试系统(PPMS)对双势垒磁性隧道结样品进行了磁电输运特性的测量.

3. 实验结果与讨论

图 1 为双势垒磁性隧道结样品的高分辨透射电镜图(HRTEM),为达到最高的放大倍率图中仅给出双势垒磁性隧道结的中间核心 13 层的 HRTEM 图像,其中上下两个铁磁钉扎层为反铁磁耦合型 Ir₂₂Mn₇₈(12 nm)/Co₇₅Fe₂₅(4 nm)/Ru(0.9 nm)/Co₇₅Fe₂₅(4 nm),两个势垒层为 Al(1 nm)-oxide 以及中间复合自由层为 Co₇₅Fe₂₅(1 nm)/Ni₇₉Fe₂₁(2 nm)/Co₇₅Fe₂₅(1

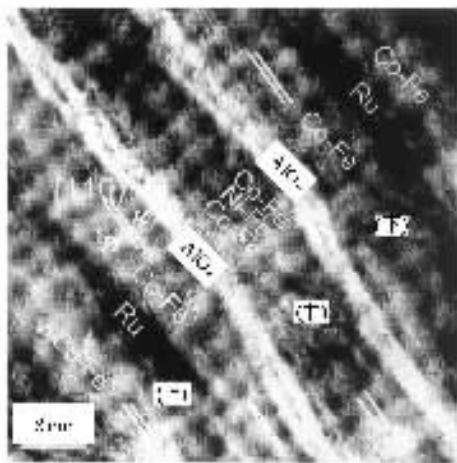


图 1 双势垒磁性隧道结样品的高分辨透射截面图

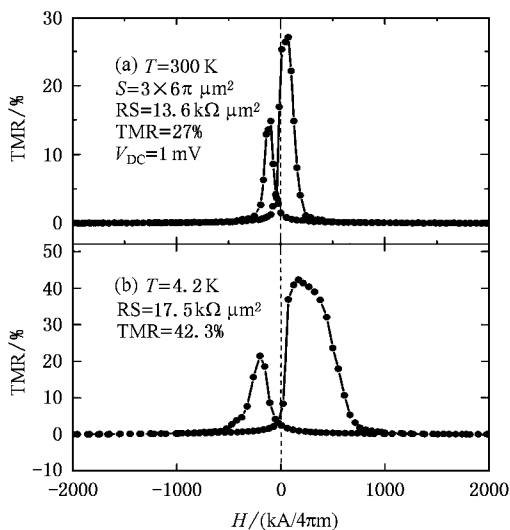


图 2 双势垒磁性隧道结在室温和低温 4.2K 下的磁电阻曲线

nm),从图可以看出,AlO_x 势垒层为非晶态结构,上、中、下磁性层是多晶结构其晶体取向均沿(110)方向.从高分辨 TEM 图像中可以看出,两个氧化铝势垒层相对平直,与上下两个铁磁钉扎层和中间自由铁磁层一起,构成了一个较好的双势垒磁性隧道结.

图 2 为双势垒磁性隧道结样品在室温和 4.2K 下的磁电阻随外磁场的变化曲线.室温下样品的 TMR 比值约为 27%,结电阻约为 13.6 kΩ·μm²,而在 4.2K 其 TMR 比值增加到 42.3%,结电阻约为 17.5 kΩ·μm².低温 4.2 K 时结电阻和磁电阻的增加来源于自旋极化电子在双势垒磁性隧道结隧穿过程中非弹性磁激子和声子激发的减少(自旋极化隧穿电子通道的减少)^[18].

在实验测量双势垒磁性隧道结的磁电阻比值与

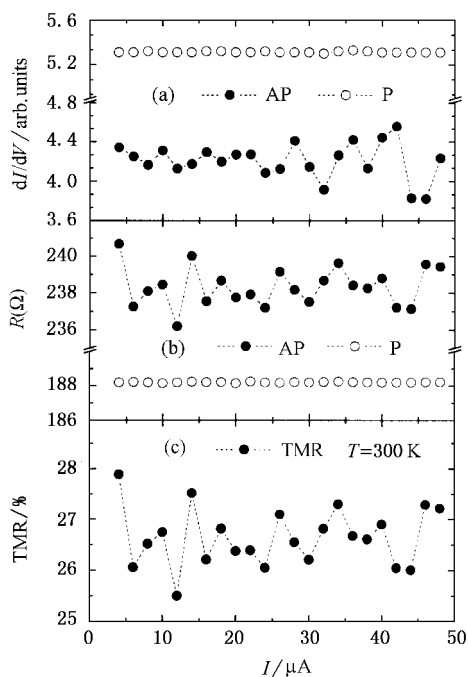


图3 室温下电导率、结电阻和 TMR 比值随外加偏压(电流)的变化关系

DBMTJ 的结电阻和电导率基本不变,而 AP 状态下 DBMTJ 的结电阻和电导率均随直流电流(偏压)的增加而出现明显的振荡现象,结果导致双势垒磁性隧道结的磁电阻比值也随直流电流(偏压)的增加而出现明显的振荡现象,其原因如图 5 所示。

如图 5 左边所示,当双势垒磁性隧道结的三层铁磁性层的磁化方向平行排列时(P 状态),顶部磁电极中自旋方向向右的电子(费米面上的多数电子)由于其自旋极化方向与中间自由层和底部磁电极中的磁化方向相同,可以连续隧穿通过两个势垒层,发生共振隧穿,使 DBMTJ 呈现出较小的结电阻。其中仅有极其少量的自旋极化电子受到 FM1/Al-O 界面处的晶格缺陷或磁性杂质的非弹性散射发生了自旋反转、不能通过第二个势垒层从而滞留在中间自由层中、并在两个势垒层的界面(Al-O/FM2 和 FM2/Al-O)之间可产生多次镜面反射,直到这些自旋极化电子受到 FM2/Al-O 界面处晶格缺陷或磁性杂质的非弹性散射发生了自旋反转可继续通过底部磁电极(但该部分贡献因电子数目极少故可以忽略不计)。而顶部磁电极中自旋方向向左的电子(费米面上的少数电子)由于其自旋极化方向与中间自由层的磁化方向相反,不能隧穿通过第一个势垒层,但其中仅有极其少量的自旋极化电子受到 FM1/Al-O 界面处的晶格缺陷或磁性杂质的非弹性散射发生了自旋反转、并和中间自由层及下部磁电极的磁化方向相同,故可连续通过第二个势垒层和底部磁电极。

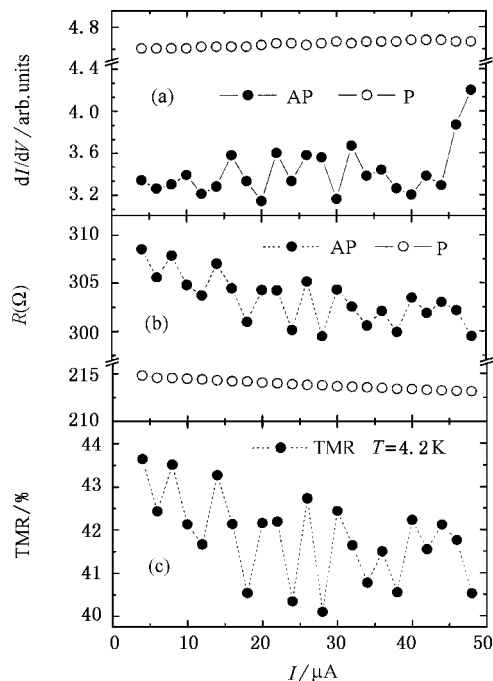


图4 4.2K 时电导率、结电阻和 TMR 比值随外加偏压(电流)的变化关系

外加偏压(电流)关系时,如图 3(室温 300K)和图 4(低温 4.2K)所示,图中 AP 代表中间铁磁性复合自由层和上下两个铁磁性钉扎层的磁化方向反平行排列,而 P 代表这三层铁磁性层的磁化方向平行排列。我们观测到在室温 300K 和低温 4.2K 时,P 状态下

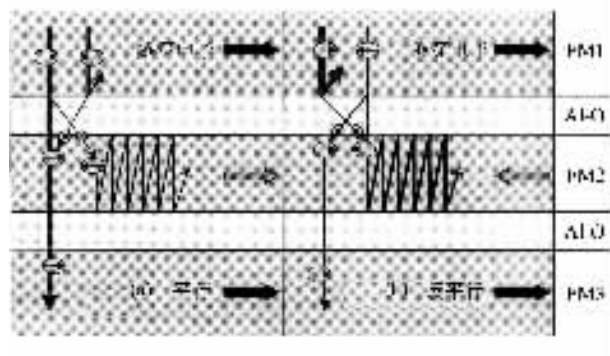


图5 自旋极化电子在三层磁性电极构成的双势垒隧道结中发生的共振隧穿和非弹性散射过程示意图

当双势垒磁性隧道结的中间铁磁性复合自由层和上下两个被钉扎的铁磁性层的磁化方向反平行排列时(AP 状态下),顶部磁电极中自旋方向向右的电子(费米面上的多数电子)由于其自旋极化方向与中间自由层的磁化方向相反,故不能隧穿通过第一个势垒层,仅有极其少量的自旋极化电子受到 FM1/

Al-O 界面处的晶格缺陷或磁性杂质的非弹性散射发生了自旋反转,方可通过第一个势垒层从而进入中间铁磁自由层,但此时的电子其自旋极化方向与底部磁电极的磁化方向相反,因而继续被底部铁磁电极和第二个势垒所反射和阻挡,因此滞留在中间自由层中,并在中间自由层和两个势垒层的界面 (Al-O/FM2 和 FM2/Al-O)之间(相当一个量子阱)产生多次镜面反射,直到该自旋极化电子受到 FM2/Al-O 界面处晶格缺陷或磁性杂质的非弹性散射发生了自旋反转方可通过底部磁电极,因此可导致电荷和自旋随外加偏置电压增加时的瞬时累积(电阻增大)和释放(电阻减小).在反平行状态下,主要是顶部磁电极中自旋方向向左的电子(费米面上的少数电子)由于其自旋极化方向与中间自由层的磁化方向相同,但和底部磁电极中的磁化方向相反,因此可以隧穿通过第一个势垒层而被第二个势垒层和底部磁电极所反射和阻挡,因此这些自旋方向向左的电子可停留在中间自由层中,并在两个势垒层界面(Al-O/FM2 和 FM2/Al-O)界面之间产生多次镜面反射,直到这些自旋极化电子受到晶格缺陷或磁性杂质的非弹性散射发生了自旋反转方可通过底部磁电极,因此这些电子可以随外加偏置电压增加时产生较强烈的电荷和自旋的瞬时累积(电阻增大)和释放(电阻减小),导致反平行状态下的电阻和 TMR 形成振荡效应(该部分自旋极化电子是主要贡献者).

因此与反平行状态相比,平行(P)状态下 DBMTJ 由于共振隧穿表现出较小的电阻和较大的电导率,但其磁电阻的振荡效应可以忽略不计.因为在无缺陷和没有非弹性散射的理想情况下,顶部磁电极中自旋方向向右的电子可以全部和连续共振隧穿通过两个势垒层,而顶部磁电极中自旋方向向左的电子不能隧穿通过第一个势垒层,并被全部反射回去,因此平行(P)状态下 DBMTJ 应该没有磁电阻的振荡效应发生.与平行(P)状态相比,反平行(AP)状态下 DBMTJ 表现出较大的电阻和较小的电导率,有相对强的 TMR 振荡效应.从图 3 和图 4 中可以看出,平行(P)状态下 DBMTJ 的电阻没有明显的振荡效应,而在反平行(AP)状态下 DBMTJ 的电阻有非常显著的振荡效应,实验和物理图像非常符合.

根据这种平行状态下有自旋极化共振隧穿效应,反平行状态下磁电阻振荡的隧穿特性,我们提出了几种新的基于双势垒磁性隧道结的自旋晶体管,其核心结构可以分别为:1)磁性金属 1/绝缘体 1/磁

性金属 2/绝缘体 2/磁性金属 3(FM1/I1/FM2/ I2/FM3) 2)磁性金属 1/绝缘体 1/非磁性金属/绝缘体 2/磁性金属 2(FM1/I1/NM2/I2/FM2), 3)磁性金属 1/绝缘体 1/半导体/绝缘体 2/磁性金属 2(FM1/I1/SC/I2/FM2) 4)磁性半导体 1/绝缘体 1/半导体/绝缘体 2/磁性半导体 2(MSC1/I1/SC/I2/MSC2)等等,其中磁性金属电极可由各种铁磁金属及其合金或半金属材料制备.

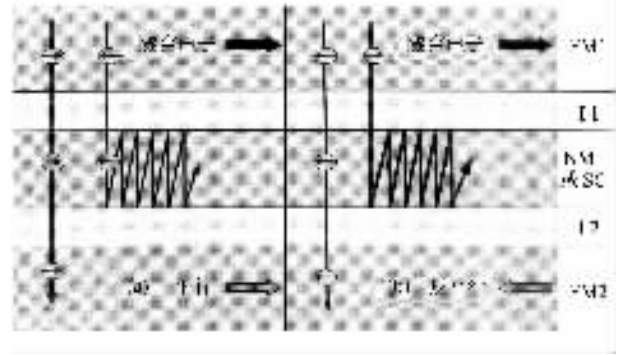


图 6 自旋极化电子在双势垒隧道结“磁性金属 1/绝缘体 1/非磁性金属或者半导体/绝缘体 2/磁性金属 2”中发生的共振隧穿和非弹性散射过程示意图

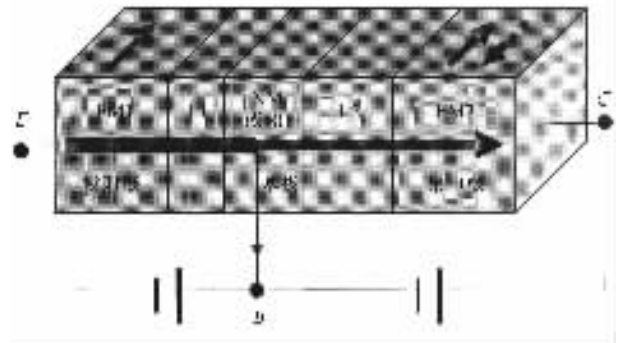


图 7 一种基于双势垒隧道结(FM1/I1/NM 或 SC/I2/FM2)隧穿特性的自旋晶体管的工作原理示意图

图 6 给出了由磁性金属 1/绝缘体 1/非磁性金属或者半导体/绝缘体 2/磁性金属 2(FM1/I1/NM 或 SC/I2/FM2)核心层构成的自旋晶体管中自旋极化电子共振隧穿示意图,图 7 是这种自旋晶体管的工作原理结构示意图.图 6 和图 7 中 FM1 和 FM2 代表铁磁性材料、半金属材料或磁性半导体材料等等, I1 和 I2 代表两个隧道势垒层,箭头“→”代表上下两个铁磁电极的磁化方向.在该类自旋晶体管结构中,发射极(FM1)被反铁磁层钉扎可固定其易磁化方向,基极(NM 或 SC)可采用的非磁性金属材料、半导体或其他种类导电材料制备,最后利用较小矫顽力的

铁磁性材料、半金属材料或磁性半导体材料等制备集电极(FM2)并且其易磁化方向在沉积过程中和发射极(FM1)保持一致方向(磁场取向沉积)。但集电极(FM2)由于矫顽力小、相对自由,可通过外磁场或电流直接驱动反转。从图6和图7可以看出,当发射极(FM1)和集电极(FM2)的磁化方向处于平行状态时,发射极(FM1)中自旋方向与集电极的磁化方向平行的多数电子有极高的概率可共振隧穿通过基极(NM或SC)和两个势垒层而进入集电极(FM2),导致集电极中有较大的电流通过,而发射极中自旋方向与集电极的磁化方向反平行的电子,将受到很强的散射作用而不能隧穿到集电极,此时有少数的电子停留在基极(NM或SC)自由层中(即在两个势垒阻挡层之间)产生弹性或非弹性散射,此时将自由层(基极)的电流导出,由于基极电流很小而集电极电流较大,因而可以期望产生放大作用。而当集电极的磁化方向与发射极的磁化方向相反时,虽然发射极中自旋方向与集电极的磁化方向平行的电子(费米能级上的多数电子)能隧穿过第一隧道阻挡层(势垒层I1),但由于与集电极的磁化方向相反而受到强烈的阻挡(相当于镜面弹性散射)作用而停留在中间非磁性导电层中发生电荷和自旋累积、或被基

极引出,此时仅有很少自旋极化电子由于受到杂质散射或其他非弹性散射作用导致自旋反转,可以通过第二隧道阻挡层(势垒层I2)而进入集电极。因此,反平行状态下集电极的电流较小而基极电流较大,DBMTJ没有放大作用但可以期望有自旋阀开关功能。因此,该自旋晶体管除了可以期望作为磁敏和电敏开关外,还可以期望作为自旋晶体管放大器使用。

4. 结 论

我们成功制备了双势垒磁性隧道结,并在室温和低温下对其自旋电子输运特性进行了研究。双势垒磁性隧道结样品的隧穿磁电阻比值在室温下和4.2K分别达到27%和42.3%,结电阻分别为 $13.6 \text{ k}\Omega \cdot \mu\text{m}^2$ 和 $17.5 \text{ k}\Omega \cdot \mu\text{m}^2$,并在实验中观察到双势垒磁性隧道结在反平行状态下的结电阻(磁电阻比值)随外加偏压增加而发生振荡的现象,而在平行状态下其结电阻较小,呈现很好的共振隧穿状态。由此,我们设计了一种基于这种双势垒磁性隧道结隧穿特性的自旋晶体管,该种自旋晶体管具有开关和放大等作用。

[1] Julliere M 1975 *Phys. Lett.* **54** A 225
 [2] Myazaki T and Tezuka N 1995 *J. Magn. Magn. Mater.* **139** L231
 [3] Moodera J S *et al* 1995 *Phys. Rev. Lett.* **74** 3273
 [4] Prinz G A 1998 *Science* **282** 1660
 [5] Han X F *et al* 2000 *Appl. Phys. Lett.* **77** 283
 [6] Wolf S A *et al* 2001 *Science* **294** 1488
 [7] Wang D X *et al* 2004 *IEEE transaction on Magnetics* **40** 2269
 [8] Zhang X *et al* 1997 *Phys. Rev. B* **56** 5484
 [9] Vedyayev A *et al* 1997 *Europhys. Lett.* **39** 219
 [10] Mathon J and Umerski A 1999 *Phys. Rev. B* **60** 1117

[11] Moodera J S *et al* 1999 *Phys. Rev. Lett.* **83** 3029
 [12] LeClair P *et al* 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 2933
 [13] LeClair P *et al* 2001 *Phys. Rev. Lett.* **86** 1066
 [14] Colis S, Gieres G, Bar L and Wecker J 2003 *Appl. Phys. Lett.* **83** 948
 [15] Yuasa S, Nagahama T and Suzuki Y 2002 *Science* **297** 234
 [16] Wei H X *et al* 2004 *Chin. Phys. Lett.* **13** 1553
 [17] Wang T X *et al* 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 3895 (in Chinese) [王天兴等 2004 物理学报 **53** 3895]
 [18] Han X F *et al* 2001 *Phys. Rev. B* **63** 224404

Magnetoresistance effect of double-barrier magnetic tunneling junction applied in spin transistors^{*}

Zeng Zhong-Ming¹⁾ Han Xiu-Feng¹⁾ Du Guan-Xiang¹⁾ Zhan Wen-Shan¹⁾ Wang Yong²⁾ Zhang Ze²⁾

¹⁾*State Key Laboratory of Magnetism, Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080, China*

²⁾*Laboratory of Advanced Materials and Electron Microscopy, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080, China*

(Received 22 November 2004 ; revised manuscript received 15 December 2004)

Abstract

The multilayer films of the double-barrier magnetic tunneling junctions (DBMTJs) were deposited by magnetron sputtering. The AlO_x insulator was formed by plasma oxidizing aluminium. The photolithographic patterning procedure combined with Ar ion milling was used to microfabricate the DBMTJs with an ellipse of $\pi \times 3 \times 6 \mu\text{m}^2$. Magnetic transport properties of DBMTJs were investigated. The junctions show a resistance-area product about $13.6 \text{ k}\Omega \cdot \mu\text{m}^2$ and $17.5 \text{ k}\Omega \cdot \mu\text{m}^2$, a high tunneling magnetoresistance of 27% and 42.2% at 300 K and 4.2 K, respectively. A tunneling magnetoresistance oscillation phenomenon with respect to the bias voltage was first observed in this experiment. We designed a few kind of spin transistors based on the spin-dependent resonant tunneling effect of the DBMTJs.

Keywords : double barrier magnetic tunnel junction, TMR oscillation, resonant tunneling effect, spin transistor

PACC : 7340G, 7570P, 7340R

^{*} Project supported by the State Key Development Program for Basic Research (Grant No. 2001CB610601) , the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 50271081 and 10274103) , the Funds for Outstanding Young Researchers from the National Science Foundation of China (Grant No. 50325104).