## CVD 成長した数層 hBN 膜の磁気トンネル接合素子への応用

Application of CVD-grown few-layer hBN to magnetic tunnel junction devices

九大院総理工  $^{1}$ , 九大 GIC $^{2}$ , 久留米高専  $^{3}$ , 九大院理  $^{4}$ , 関学大工  $^{5}$ 

<sup>O</sup>楠瀬 宏規<sup>1</sup>, 深町 悟<sup>2</sup>, 河原 憲治<sup>2</sup>, 堺 研一郎<sup>3</sup>, 木村 崇<sup>4</sup>, 日比野浩樹<sup>5</sup>, 吾郷 浩樹<sup>1,2</sup> Kyushu Univ.<sup>a</sup>, Kurume Kosen<sup>b</sup>, Kwansei Gakuin Univ.<sup>c O</sup>Hiroki Kusunose<sup>a</sup>, Satoru Fukamachi<sup>a</sup>, Kenji Kawahara<sup>a</sup>, Kenichiro Sakai, Takashi Kimura<sup>a</sup>, Hiroki Hibino<sup>c</sup>, Hiroki Ago<sup>a</sup> E-mail: h-ago@gic.kyushu-u.ac.jp

【背景】六方晶窒化ホウ素(hBN)は、約6 eV のバンドギャップをもつ絶縁体であり、原子的にフラットな表面をもつことから、グラフェンをはじめとする二次元材料の絶縁膜として広く利用されている。さらに、燃料電池のプロトン透過膜や紫外線レーザー、単一発光素子、磁気トンネル接合(MTJ) 素子など様々な応用研究が進められている。特に MTJ 素子に関しては、理論計算で 1000%を超える 磁気抵抗比(MR 比)が報告され期待を集めるとともに [1]、MgO(001)-MTJ とは異なる、hBN の 3 回対称性を反映したトンネリング機構にも興味がもたれる。しかし、これまでの hBN-MTJ 素子に関す る論文の多くが剥離片を使っており、MR 比も 0.6~2%と低いものであった[2,3]。一方、仏 CNRS の チームは CVD 合成した hBN を用いて 6~60%と高い MR 比を報告しているが [4,5]、hBN や電極の 構造・結晶性、および再現性に関してはほとんど調べられていない。そこで本研究では、我々が開発し てきた Fe-Ni 合金触媒を用いる CVD 法により合成した数層 hBN [6]を用いることで、hBN の MTJ 応 用の可能性を検討した。特に、転写に伴う強磁性電極の表面酸化などの影響を排除するため、CVD 合 成に用いた Fe-Ni 合金を MTJ の強磁性電極として利用することにした。

【結果と考察】サファイア r 面上にスパッタした厚さ 1.3  $\mu$ m の Fe-Ni 合金薄膜を触媒、ボラジン (B<sub>3</sub>N<sub>3</sub>H<sub>6</sub>)を原料として数層からなる hBN 膜を 1200 °C で合成した [6]。STEM と LEEM 測定か ら、生成した hBN 膜は 2 層から 5 層(約 1~3 nm)の層状構造を持っていることが分かった。これ は、理論計算から示唆される最適な膜厚 [1] とほぼ同じである。ラマン分光測定では、hBN 膜に由来 する E<sub>2g</sub>バンドが観測され、その半値幅は平均 14 cm<sup>-1</sup>で、結晶性が比較的高いことが示された。

次に、図1aに示すように Fe-Ni上の hBN 膜上でフォトリソグラフィとメタルマスクを組み合わせて、Au/Coの上部電極を作製した。これにより、転写プロセスを介さず、素子作製時の欠陥や不純物の低減を可能とした。断面の STEM 像と元素マッピング(図 1b)から、所望の素子構造が得られていることが確認できた。また、XRD 測定からは、下部の Fe-Ni 電極が結晶化して fcc(111)面をもつことも分かった。

図1cに10Kで測定した磁場中での抵抗変化を示す。磁場に依存した明瞭な抵抗変化が観察された。 抵抗値が変化する磁場が、振動試料型磁力計(VSM)で測定した保磁力と近いものであったことから、 数層 hBN の MR の測定に成功したといえる。また、図1aに示す多数のデバイスを測定し、数%から 15%の MR 比のデバイスが多く得られた。今後、上部磁性電極の結晶化促進やデバイス作製プロセス の改善、hBN の層数制御を通じてさらなる MR 比の向上が期待できる。



**Figure 1** (a) Structure of hBN-MTJ devices. (b) BF and ADF-STEM images of the cross-section of the device. (c) Tunnel magnetoresistance signal measured with 10 mV bias voltage. Insets show the directions of magnetic moment of each ferromagnetic electrode.

## 【参考文献】

[1] H. Lu *et al.*, *Appl. Phys. Rev.*, **8**, 031307 (2021).
[2] M. Z. Iqbal *et al.*, *J. Mater. Chem. C*, **4**, 8711 (2016).
[3] A. Dankert *et al.*, *Nano Res.*, **8**, 4, 1357 (2015).
[4] M. Piquemal-Banci *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **108**, 102404 (2016).
[5] M. Piquemal-Banci *et al.*, *ACS Nano*, **12**, 4712 (2018).
[6] Y. Uchida *et al.*, *ACS Appl. Electron. Mat.*, **2**, 3270 (2020).