

4d, 5d 強磁性酸化物の 分子線エピタキシー成長と機械学習の援用

若林 勇希¹, Yoshiharu Krockenberger¹, 辻本 直人³, 大塚 琢馬², Tommy Boykin¹, 澤田 宏²,
常行 真司³, 谷保 芳孝¹, 山本 秀樹¹

NTT 物性科学基礎研究所¹, NTT コミュニケーション科学基礎研究所²,

東京大学大学院理学系研究科物理学専攻³

E-mail: yuuki.wakabayashi.we@hco.ntt.co.jp

ペロブスカイト酸化物は誘電性・超伝導性・磁性など様々な物性の宝庫であり、基礎・応用の両面から盛んに研究されてきた。なかでも、スピン軌道相互作用(SOC)の強い遷移元素を含む磁性体に対しては、SOC に由来した長距離強磁性秩序の形成[1]や大きな磁気光学効果の発現[2]といった新規物理現象が報告されており、これを材料の磁気特性の向上に繋げる観点からの研究も盛んである。実際、我々の研究グループでは、独自に培った高度な酸化物分子線エピタキシー(MBE)技術により、SOC の大きな 4d、5d 遷移元素(Ru、Os 等)を構成元素に含む磁性ペロブスカイト酸化物の新物質探索、品質向上に取り組んできた。

強磁性絶縁体は、永久磁石や高周波用素子として広く使用されるとともに、その小さな磁気摩擦やスピン依存トンネル抵抗などを活用したスピントロニクス応用も広く提案され、重要性を増す一方である。その中で、我々は、全ての絶縁体及び酸化物の中で最高の T_c (~1060 K)を持つ(図 1)、B-サイト秩序型ダブルペロブスカイト Sr_3OsO_6 を世界に先駆けて合成・発見した[3]。これは、絶縁体の T_c を 88 年ぶりに 100°C 以上更新する結果である。さらに、密度汎関数理論に基づくバンド計算により、 Sr_3OsO_6 では、5d 遷移元素 Os の大きな SOC に由来する $J_{\text{eff}} = 3/2$ 強磁性絶縁状態が形成していることを明らかにした。

一方、機械学習を活用した材料開発の加速への取り組み[4](図 2)として、強磁性金属 SrRuO_3 の品質向上にも取り組んでいる。 SrRuO_3 は、強磁性に加え、高い伝導度と化学的安定性を有することから、酸化物エレクトロニクスの分野で盛んに研究されてきた材料である。我々は、 SrTiO_3 基板上 SrRuO_3 薄膜の MBE 成長の成長条件に対し、統計的機械学習手法であるベイズ最適化の手法を取り入れて、単結晶 SrRuO_3 薄膜の品質の指標として広く用いられている残留抵抗比 $\text{RRR} \equiv \rho(300 \text{ K}) / \rho(4 \text{ K})$ の最適化を行い、24 回の MBE 成長で $\text{RRR} > 50$ の SrRuO_3 薄膜を得ることが出来た(図 3)。新材料開発のプロセスでは、材料の高品質化に多大な時間とコストを要するのが常であるが、本アプローチによるその大幅な削減を通じて、新物質・新材料開発が加速されることが期待される。

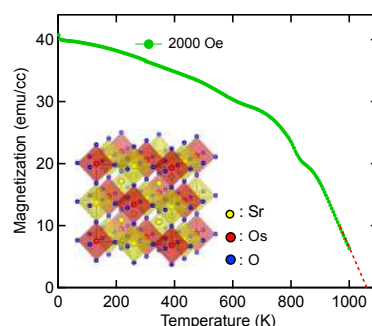


図 1. Sr_3OsO_6 の磁化の温度依存性と結晶構造の模式図。

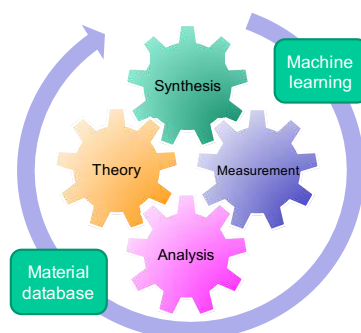


図 2. 新材料開発サイクル。

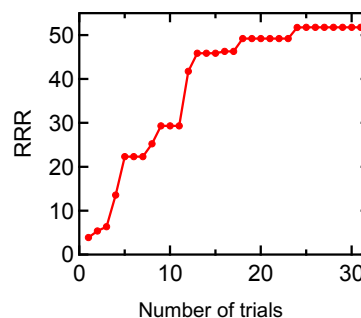


図 3. MBE 成長試行回数による SrRuO_3 薄膜の RRR 最高値。ベイズ最適化により成長条件を決定。

[1] S. Calder, *et al.*, Nat. Commun. **7**, 1 (2016). [2] G. Koster, *et al.*, Rev. Mod. Phys., **84**, 253 (2012). [3] Y. K. Wakabayashi, *et al.*, Nat. Commun. **10**, 535 (2019). [4] Y. K. Wakabayashi, *et al.*, Appl. Phys. Express **11**, 112401 (2018).