

## 機械学習を援用した SrRuO<sub>3</sub> 薄膜の分子線エピタキシー成長

若林 勇希<sup>1</sup>, 大塚 琢馬<sup>2</sup>, Yoshiharu Krockenberger<sup>1</sup>, 澤田 宏<sup>2</sup>, 谷保 芳孝<sup>1</sup>, 山本 秀樹<sup>1</sup>

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

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

近年、情報科学を援用して材料開発を高効率、高速で進めるマテリアルズインフォマティクス[1-3]が急速に発展している。従来、材料の高品質化のための結晶成長条件の最適化は、研究者の知見に基づくトライアルアンドエラーによって行われてきた。これに対し我々は、これまでの試行結果と統計的機械学習手法に基づいた予測モデルによって定量化されたトライアルアンドエラーであるベイズ最適化の手法を取り入れて、強磁性金属 SrRuO<sub>3</sub> の分子線エピタキシー(MBE)成膜に対する成長条件最適化を行い、最適化効率を高めることができた。

SrRuO<sub>3</sub> 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分野で、盛んに研究されてきた材料である。単結晶 SrRuO<sub>3</sub> 薄膜の品質の指標として、室温(300 K)での抵抗率  $\rho(300\text{ K})$  とともに、残留抵抗比  $\text{RRR} \equiv \rho(300\text{ K}) / \rho(4\text{ K})$  が広く用いられており、Ru 欠損や RuO<sub>2</sub> 析出物などが少ない高品質な薄膜ほど  $\rho(300\text{ K})$  が小さく、RRR が大きいことが知られている[4]。一方、SrRuO<sub>3</sub> はバルク単結晶の作製が困難であるため、物性研究の観点からも高品質薄膜の作製は意義深い。例えば、強磁性の起源と関連すると考えられている角度分解光電子分光スペクトル中の準粒子ピークは、RRR > 40 の薄膜で観測されており、RRR の大きな高品質薄膜は、電子状態や強磁性の起源解明等に資すると期待される。しかし、高い RRR を得るためには基板温度や各構成元素の供給量などの成長条件の精密な最適化が必要であり、RRR が 50 を超える SrRuO<sub>3</sub> 薄膜は過去に 3 件しか報告がなかった[5]。

本研究では、ベイズ最適化によって、SrTiO<sub>3</sub> 基板上 SrRuO<sub>3</sub> 薄膜の MBE 成長の成長条件(基板温度、Ru 原子供給量、オゾン供給量)に対する RRR 値の予想と探索を通じた最適化を行い、24 回の MBE 成長で RRR が 50 を超える SrRuO<sub>3</sub> 薄膜を得ることが出来た(図 1)。 $\theta$ -2 $\theta$  X 線回折パターンは明瞭な Laue フリンジを示し、結晶性が高いことがわかる(図 2)。

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。

[1] K. Rajan, Mater. Today **8**, 38 (2005). [2] T. Ueno, *et al.*, npj Comput. Mater. **4**, 4 (2018). [3] Y. K. Wakabayashi, *et al.*, Appl. Phys. Express **11**, 112401 (2018). [4] W. Siemons, *et al.*, Phys. Rev. B **76**, 075126, (2007). [5] G. Koster, *et al.*, Rev. Mod. Phys., **84**, 253 (2012).

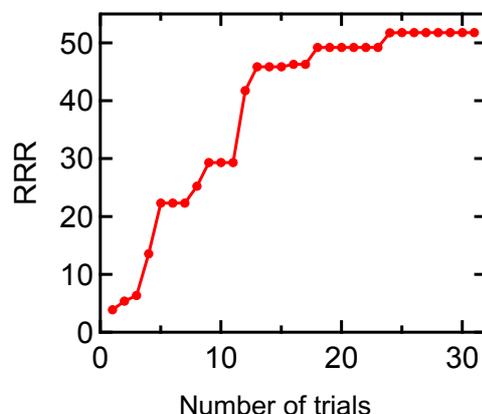


図 1. MBE 成長試行回数による RRR 最高値。ベイズ最適化により成長条件を決定。

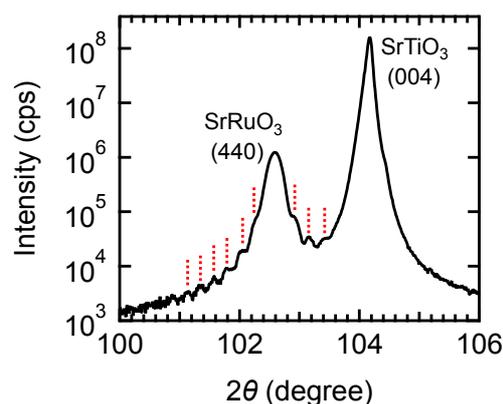


図 2. RRR が 50 を超える SrRuO<sub>3</sub> 薄膜の  $\theta$ -2 $\theta$  X 線回折パターン。