

機械学習援用分子線エピタキシー法による SrRuO₃ 薄膜の高品質化

若林 勇希¹, 大塚 琢馬², Yoshiharu Krockenberger¹, 澤田 宏², 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

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。我々は、独自の酸化物分子線エピタキシー技術と、統計的機械学習手法のベイズ最適化とを組み合わせた、機械学習援用分子線エピタキシー (ML-MBE) 技術を開発し、スピン軌道相互作用の大きな *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を対象に、新物質探索、結晶性向上に取り組んできた[4,5]。SrRuO₃ は高い電気伝導度と化学的安定性から酸化物エレクトロニクスにおける電極材料として盛んに研究されてきた。近年では、加えて、新しいトポロジカル物質の一つである磁性ワイル半金属の候補物質としても注目されている。本研究では、ML-MBE 技術によって、強磁性金属 SrRuO₃ の世界最高品質の単結晶薄膜を作製できたので報告する。

単結晶 SrRuO₃ 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 $\text{RRR} \equiv \rho(300\text{ K}) / \rho(T \rightarrow 0\text{ K})$ が広く用いられており、Ru 欠損や RuO₂ 析出物などが少ない高品質な薄膜ほど $\rho(T \rightarrow 0\text{ K})$ が小さく、RRR が大きいことが知られている[6]。本研究では、SrTiO₃ 基板上 SrRuO₃ 薄膜の成長条件 (基板温度、Ru 原子供給量、オゾン供給量) を、各条件下で成膜した薄膜に対する RRR 値の予想と探索 (ベイズ最適化) を通じて最適化し、44 回の MBE 成長で、世界最高の RRR (= 84.3) を示す SrRuO₃ 薄膜を得ることが出来た (図 1) [7]。高角散乱環状暗視野走査透過顕微鏡 (HAADF-STEM) 像から、理想的な Ru と Ti の原子配列を有する原子レベルで急峻な界面の形成と、非常に高い結晶性が確認されている (図 2)。さらに、原子間力顕微鏡像におけるステップ&テラス構造から原子レベルで平坦な表面が、X 線 θ - 2θ 回折パターンでは高品質な薄膜結晶で観測されるラウエフリッジが確認されている。RRR が 84.3 の SrRuO₃ 薄膜の残留抵抗 $\rho(T \rightarrow 0\text{ K})$ は $2.23\text{ }\mu\Omega\cdot\text{cm}$ と非常に小さく、また、20 K 以下における抵抗の温度依存性はフェルミ液体の振る舞い ($\rho \propto T^2$) を示し、欠陥や不純物による散乱が抑えられていることが分かった。

本研究で得られた世界最高の RRR を持つ高品質 SrRuO₃ 薄膜は、磁気抵抗測定によるワイル粒子の存在の検証などを通じて、SrRuO₃ の物性解明に資するものと期待される。

[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] Y. K. Wakabayashi, *et al.*, *Nat. commun.* **10**, 535 (2019). [5] Y. K. Wakabayashi, *et al.*, *APL Mater.* **7**, 101114 (2019). [6] G. Koster, *et al.*, *Rev. Mod. Phys.*, **84**, 253 (2012). [7] K. Takiguchi, Y. K. Wakabayashi, *et al.*, arXiv:2004.00810.

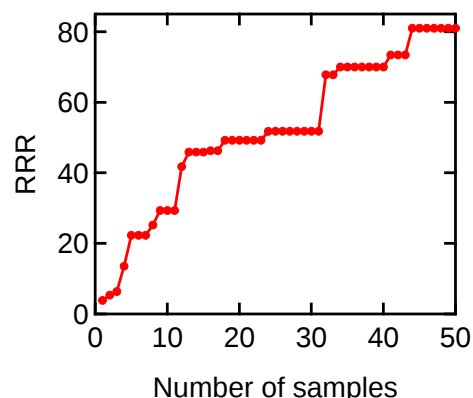


図 1. MBE 成長試行回数による RRR 最高値。ベイズ最適化により RRR の更新が予測される成長条件を探索。

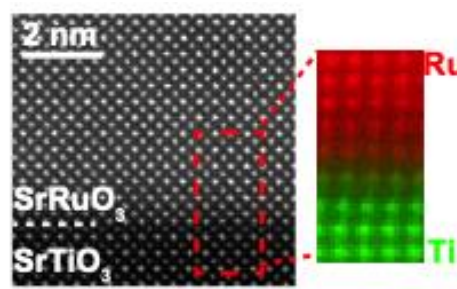


図 2. SrRuO₃ 薄膜の HAADF-STEM 像 (SrTiO₃ 基板[100]方向入射)。右図は Ru と Ti 元素に対する電子エネルギー損失分光 (EELS)-STEM 像。