

科学研究費補助金（特別推進研究）公表用資料
〔研究進捗評価用〕

平成18年度採択分

平成21年 3月31日現在

研究課題名（和文） 電荷揺らぎに由来する強相関量子相の研究

研究課題名（英文） Strongly correlated quantum phase associated with charge fluctuation

研究代表者

後藤 輝孝 (GOTO Terutaka)

新潟大学・自然科学系・教授



研究の概要：超音波歪みは明確な対称性を備え、電子やイオンの量子系が持つ電気四極子と結合するので、弾性定数の測定により四極子感受率を観測できる。本研究では、極低温での高分解能超音波位相差計測を駆使し、希土類化合物の局在4f電子、カゴ状化合物のオフセンター振動、シリコン結晶中の原子空孔軌道に現れる電荷揺らぎに由来する強相関量子相を研究する。

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学

キーワード：超音波 電気四極子 ラットリング 原子空孔 強相関

1. 研究開始当初の背景

これまでの強相関物理学では、帯磁率や中性子散乱などの磁気計測を用いた、電子スピン間の相互作用に由来する磁気秩序の研究や、スピン揺らぎと伝導電子の結合による近藤効果などの研究が、主要なテーマであった。本研究では、電荷揺らぎに由来する新しい強相関量子相の研究を目的としている。局在電子、オフセンター振動、原子空孔の電荷揺らぎは明確な対称性を備え周囲の格子歪みと結合するので、後藤らが開発してきた超音波計測を用いることで電荷揺らぎを直接観測することが可能である。本研究では、極低温での超音波計測を駆使し、局在4f電子、カゴ状化合物でのオフセンター振動、シリコン結晶中での原子空孔などの電荷揺らぎに由来する強相関量子相の研究を推進する。

2. 研究の目的

(1) 希土類Pr化合物における局在4f電子状態の非クラマース2重項は磁気双極子が存在せず、電気四極子を持っている。PrInAg₂とPrMg₃を取り上げ、極低温での超音波計測を進め、局在4f電子の電気四極子の揺らぎと伝導電子との結合による四極子近藤効果を説明する。

(2) カゴ状化合物R₃Pd₂₀Ge₆ (R=La, Ce, Pr, Nd)のカゴ中に充填された希土類イオンがオフセンター振動を示す。熱活性ラットリングによる超音波分散とトンネリングによる弾性定数の低温ソフト化を研究し、オフセンター振動（局所振動）の電荷揺らぎと伝導電子との結合による多チャンネル近藤効果を解

明する。

(3) 申請者はシリコン結晶中の原子空孔に起因した弾性定数の低温ソフト化を観測している。FZ（浮遊帯域融解）法、CZ（チョクラルスキー）法で育成したシリコン結晶の超音波計測を推進し、原子空孔と価電子との結合がもたらす電荷状態を解明し、次世代シリコンウエーハで必要となる孤立した原子空孔の定量評価技術の基礎物性を確立する。

3. 研究の方法

電荷揺らぎを伴う電子やイオンの量子系を観測するため、超音波位相差計測を用いた極低温での高分解能の音速測定を行う。³He-⁴He希釈冷凍機、³He冷凍機と超伝導磁石(18T)の低温設備を駆使する。シリコン結晶は100K以下で体積が膨張するので、体積が収縮するLiNbO₃圧電素子との接着面が破壊され、超音波計測に困難が生じる。本研究ではシリコン結晶表面にZnO圧電薄膜を生成し、GHz超音波での高分解能音速測定を行う。

4. これまでの成果

(1) Pr化合物における非クラマース2重項

高周波誘導炉によって育成したPrMg₃純良単結晶を用いた超音波実験を進め、極低温で弾性定数(C₁₁-C₁₂)/2のソフト化が消失し、極低温領域まで相転移を示さず“四極子近藤一重項”が実現していることを示唆する結果を得ており、重要な成果である。また、Γ₃基底-Γ₄第一励起状態の結晶場準位をもつPrMg₃, PrInAg₂, PrPb₃に、共通に弾性定数(C₁₁-C₁₂)/2に特徴的な極小を見だし、Γ₃型の歪みと結

合する電気 16 極子を考慮することで実験結果を再現できることを明らかにし、多極子物理の新しい発展が期待できる。 $\text{Ce}_3\text{Pd}_{20}\text{Si}_6$ の磁場中実験により、反強四極子相を見だし、典型物質として研究が進むと期待できる。

(2) カゴ状化合物のラットリング

カゴ状化合物 $\text{Ce}_3\text{Pd}_{20}\text{Ge}_6$ 、 $\text{La}_3\text{Pd}_{20}\text{Ge}_6$ および充填スクッテルダイト $\text{PrOs}_4\text{Sb}_{12}$ の超音波分散と低温ソフト化を発見し、カゴ中の希土類イオンの局所振動がラットリングをしていることを世界に先駆けて明らかにした。これは、伝導電子との相互作用によって局所振動の非調和性が増大していることを実験的に示したものであり強相関物理の新しい課題となっている。特に $\text{PrOs}_4\text{Sb}_{12}$ では、オフセンター振動の電荷揺らぎが重い電子とその超伝導の出現に本質的役割を果たしていると考えられており、大きな注目を集めている。

(3) シリコン結晶の原子空孔

シリコンは、人類が手にすることができる最も理想的な結晶である。しかし、 1412°C の高温で結晶化するので、わずかな結晶の乱れにより、真性点欠陥が必ず存在する。中でも原子空孔の直接観測は、半導体物理において半世紀にわたる未解決の難問であった。原子空孔の電子軌道は電気四極子を持っている。この事実に着目し、シリコン結晶の弾性定数の低温ソフト化を見だし(図1)、原子空孔の直接観測に世界で初めて成功した。低温ソフト化の磁場依存性の実験が進み、無添加シリコン結晶では4個の電子を捕獲した非磁性の電荷状態 V^0 が、ボロン添加結晶では3個の電子を捕獲した磁性を帯びた V^+ が実現していることが解り、スピン-軌道相互作用を取り入れた解析が進んでいる。特に、ボロン添加 CZ シリコンの超音波計測による原子空孔濃度評価は半導体技術として重要であり、コバレントマテリアル社、東芝セミコンダクターとの産学協同開発が進んでいる。

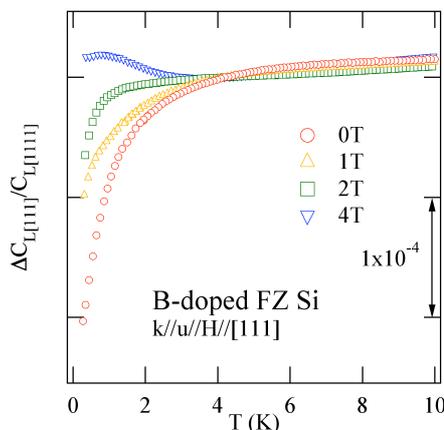


図1. ボロンドープ FZ シリコンの弾性定数の温度依存性。零磁場での低温ソフト化が、磁場を強くするに伴って減少していく。

5. 今後の計画

(1) カゴ状化合物における超音波分散と低温ソフトの発見は、伝導電子とカゴ中の希土類原子の局所振動が結合することで大きな非調和性によるラットリングが現れていることを示し、強相関物理の新しい研究課題として重要であり、継続して研究する。

(2) 超音波によるシリコン中の原子空孔の世界初の観測成功は、半導体物理半世紀の難問に解決への道筋をつけただけではなく、LSI デバイス製造に必要なシリコンウエーハの高品質化をもたらす原子空孔濃度を評価する全く新しい産業技術として注目されており、電荷状態の解明を継続する。

6. これまでの発表論文等 (受賞等も含む)
(研究代表者は太字、研究分担者は二重下線, 連携研究者は一重下線)

● H. Y-Kaneta, T. Goto, Y. Nemoto, K. Sato, M. Hikin, Y. Saito, S. Nakamura, “Vacancies in CZ silicon crystals observed by low-temperature ultrasonic measurements” *Physica B* **401-402** (2007) 138-143.

● H. Y-Kaneta, T. Goto, Y. Nemoto, K. Sato, M. Hikin, Y. Saito, S. Nakamura, “Vacancies in as-grown CZ silicon crystals observed by low-temperature ultrasonic measurements” *J. Mater. Sci.: Mater Electron* (2008) **19**: S19-S23

● T. Yanagisawa, P-C Ho, W. M. Yuhasz, M. B. Maple, Y. Yasumoto, H. Watanabe, Y. Nemoto, T. Goto “Ultrasonic investigation of off-center rattling in filled skutterudite compound $\text{NdOs}_4\text{Sb}_{12}$ ”, *J. Phys. Soc. Jpn.* **77** (2008) 074607 1-5.

● T. Goto, T. Watanabe, S. Tsuduku, H. Kobayashi, Y. Nemoto, T. Yanagisawa, M. Akatsu, G. Ano, O. Suzuki, N. Takeda, A. Dönni, H. Kitazawa, “Quadrupole Ordering in Clathrate Compound $\text{Ce}_3\text{Pd}_{20}\text{Si}_6$ ” *J. Phys. Soc. Jpn.* **78** (2009) 024716 1-9.

受賞：後藤輝孝 第 61 回新潟日報文化賞
「純粋なシリコン結晶中に存在する原子空孔を世界初観測。高品質化で産業界と連携。」
新聞発表：

● 「シリコン原子レベルで評価」, 日本経済新聞 2006 年 4 月 21 日, 15 面.

● シリコンウエーハ極限微細領域で覇権原子空孔濃度測定 上「新潟大が技術・装置開発経産・文科省、実用化後押し」下「完全結晶ウエーハとデバイス歩留まり、画期的に向上」化学工業日報 2009 年 3 月 16, 17 日. 1 面.

ホームページ等

新潟大学後藤研究室

<http://www.sc.niigata-u.ac.jp/goto/>

新潟大学物質量子科学研究センター

<http://www.gs.niigata-u.ac.jp/~cqms/>