

研究課題別評価

1. 研究課題名： 同位体制御による半導体物性のデザイン
2. 研究者氏名： 伊藤 公平
3. 研究のねらい

通常のシリコン(Si)結晶中には ^{28}Si ^{29}Si ^{30}Si の3種類の質量および核スピン数が異なる安定同位体が存在し、それぞれの組成比は 92.2%(^{28}Si)、4.7%(^{29}Si)、3.1%(^{30}Si)と常に一定である。ゲルマニウム(Ge)の場合も同様に、5種類の安定同位体(^{70}Ge , ^{72}Ge , ^{73}Ge , ^{74}Ge , ^{76}Ge)から構成される。すなわち、SiやGeなどの半導体結晶中には質量や核スピン数の異なる複数の安定同位体が無秩序に分布しているが、それらの乱れが基礎物性におよぼす影響に関して探求した例は非常に少ない。そこで、本研究では、同位体組成とその分布を、バルクおよび低次元構造中で制御し、新しい質量・核スピン秩序を有する相を創製することから、格子・光・スピン物性研究の新しい展開が可能であることを提案した。

本研究の申請時における研究提案は以下の通りであった。

- (1) シリコンおよびゲルマニウムバルク同位体単結晶の成長
- (2) 同位体超格子の作製とラマン分光評価
- (3) シリコンバルク単結晶を用いた熱伝導研究
- (4) ゲルマニウムバルク単結晶を用いた金属-絶縁体転移研究
- (5) シリコン同位体超格子を用いた電気伝導に関する研究
- (6) ゲルマニウム同位体超格子を用いたコヒーレントフォノン研究

4. 研究結果及び自己評価：

はじめに、上記提案内容の個々に関する進捗状況を述べる。次に、提案時には考えてもいなかった核スピンを用いた量子コンピュータの構築を述べる。

尚、以下の文中で、上付き番号は6項の主要論文の番号に対応している。

(1) シリコンおよびゲルマニウムバルク同位体単結晶の成長^{1,8)}

本項目に関しては、提案どおりの成果が得られた。わずか数100グラムのSi同位体パウダーから高純度・高品質の単結晶を成長することは現在の半導体シリコンの常識から考えると非常に困難であったが、幸いなことに、「状態と変革」研究領域には酸化物のバルク単結晶成長に携わる仲間が多く、彼らにとっては常識的な静水圧プレス 焼結 Fz 成長というプロセスを通して半導体としても満足のいく単結晶の成長に成功した。その成果に半導体の研究者は驚いたが、酸化物の人々からみるとあまりにも当たり前であるところが非常に滑稽であった。いずれにせよ、半導体グレードの単結晶成長というねらいが達成できたことに満足をしている。ゲルマニウム同位体単結晶の成長は、融点がシリコンより低く、グラファイトがるつぼ材料として利用できるなど、比較的容易であった。

(2) 同位体超格子の作製とラマン分光評価⁵⁾

さきがけ研究開始当初は東大先端研の分子線エピタキシー装置を借用して、Ge同位体超格子の作製に向けた様々な予備実験を行った。さきがけ研究2年目には慶應大学においても分子線エピタキシー装置を購入し、実際に同位体超格子の作製を行った。同位体超格子が興

味深いのは、電気的に見てバルク Ge となんら変わらない点である。よって、X線回折などの通常の手法では本当に同位体超格子が完成しているのかわからない。本研究では、同位体超格子ではフォノンのモードが変化する（ブリリュアンゾーン折り返し）ことに着目し、その様子をラマン分光で観察する評価法を確立した。得られたラマンスペクトルは理論予測の結果と定量的に比較され、良い一致が得られることから、同位体超格子が完成していることを確認した。

(3) シリコンバルク単結晶を用いた熱伝導研究

さきがけ研究開始前に、我々はゲルマニウム半導体の熱伝導度に対する同位体効果を系統的かつ定量的に解明し、Si の場合でも熱伝導度が大幅に上昇することを予想した。それを機に、Si 熱伝導度の同位体効果に対する研究競争が一部で激化した。結果として、我々が先駆けて Si 同位体単結晶の成長に成功したが、熱伝導度の測定は独・マックスプランク研が先行した。彼らの結果は、同位体シリコンにおける大幅な熱伝度の上昇（20 で 60%、100 で 40%！）である。すでに 92%も存在した ^{28}Si の濃度を 99.85%に変化させるだけで熱伝導度がこれほど変化することに研究者は驚き、産業界にも大きなインパクトを与えた。この熱伝導度上昇をもとに実際の 1GHz-CPU に対する熱シミュレーションを行うと、定常状態における動作温度が天然のウエハーを用いた場合と比較して 40 度近く下がることが明らかになったのである。この温度降下は極めて重要で、半導体 LSI の動作速度や歩留まりの向上に大きく寄与するであろう。

正直な気持ち、熱伝導度の成果を我々が先行発表できなかったことは非常に残念であり、申し訳なくも感じている。しかし、データが発表された数ヵ月後に気を取り直し、マックスプランク研のデータを詳細に解析すると、いろいろと不思議なことが見えてきた。詳細は省くが、理論的モデルが決定的に間違っているか、実験結果が大きな誤差を含むか、どちらかの可能性を今は考えている。熱伝導度の問題は理論的には非常に難しい分野であるが、実験が先行できるという意味で、今後の展開が楽しみな分野である。

(4) ゲルマニウムバルク単結晶を用いた金属-絶縁体転移研究¹¹⁾

過去 30 年以上、多くの研究者が携わってきた本研究分野では、理論的な研究が先行する一方、実験結果は混沌としていた。具体的には、臨界指数の値が 0.5 か 1 でもめてきたのだが、同じ Si:P（リンが添加されたシリコン）であっても、ある研究グループの試料では 0.5、異なる研究グループの試料では 1.2 と全くまとまりがなく、良い試料に基づく実験を実施することが非常に大切であった。そこで本研究では Ge:Ga を同位体ゲルマニウムから作製する新手法を開発し、理想的な試料を作製して他から議論の余地がない決定的な実験データを提示することに成功した。少なくとも実験としては決定的な結果を出せたと自負している。

(5) シリコン同位体超格子を用いた電気伝導に関する研究

本課題はシリコンの同位体を交互に積層すればある条件下で電子移動度が大幅に上昇するというアイデアの検証である。申請段階では中心課題の一つであったが、申請時から本アイデアに関してはアドバイザーの方々から疑問の声があがった。当初の予定は実際にシリコン同位体超格子を用いて実験により実証することであったが、最近になって移動度の理論計算をいくつか行い、アドバイザーの先生方の懐疑的な予想を裏付ける結果しか出てこなかった。

すなわち、同位体超格子にしても移動度の上昇は難しいという結果である。実験の方は ^{30}Si 同位体が入手出来ずに終わったため全く進まなかった。申請時の提案に対して全く進まず、むしろ、後退した感の否めないテーマであった。

(6) ゲルマニウム同位体超格子を用いたコヒーレントフォノン研究²⁾

$^{70}\text{Ge}_n/^{74}\text{Ge}_n$ 同位体超格子において、ラマン分光による光学フォノンの解析と、フェムト秒パルスレーザーによるポンプ・プローブ法を用いてコヒーレントに励起された光学フォノンの直接比較を行った。始めに振動モードのブリリュアンゾーン折り込みを確認し、超格子（質量の周期構造）が完成していることを示した。次にラマンとフェムト秒パルスの波長依存性が異なることを示し、同じ光学フォノンとはいえ、励起光が連続である場合と超短パルスである場合のフォノン発生機構が異なることを提示した。特に短パルス法の場合はラマン選択則と電子・正孔対の生成が複雑に絡み合い、励起光の侵入長に関する予想をはるかに下回る量であることが見出された。申請時には Ge 同位体超格子でコヒーレントフォノン分光が可能かどうかも確かではなかったため、本研究の成果には満足している。

追加課題：全シリコン量子コンピュータの提案¹⁾

申請時は質量の変化に起因する格子振動の変化のみに着目したが、さきがけ研究の2年目には核スピンに関する同位体効果の重要性を認識し、シリコンの同位体のみを利用した量子コンピュータの新しい形態を考案することに成功した。本課題は最後の一年間に熱中した課題で、世界的にも量子コンピュータに関する独自の提案が少ない中で、なんとか構成をまとめられたのは良かったと思う。

まとめと展望

さきがけ研究の3年間をまとめてみて、あらためていろいろなことに手を出したことを実感した。まとまりのない研究に映るかもしれないが、すべては同位体単結晶の成長に成功したことから始まった。新しい材料が創られ、さらに産業の要であるシリコン半導体であったことから研究テーマは無数に考えられた。そのような状況で、熱伝導、低次元系中のフォノン、金属-絶縁体転移、核スピン効果の4点に絞って研究に没頭できたことは本当に恵まれていた。ただし、反省する点もいくつかある。何よりも残念であるのは、熱伝導度に関する実験結果の発表がタッチの差で他機関に先を越されたことである。その内容も室温における60%の上昇と大変インパクトのある結果だっただけに非常に悔やまれたが、しばらくして、その結果をモデル計算の結果と比較してみると不思議なことに色々気がついた。この研究もまだ始まったばかりで、そういう意味では研究の初期段階（先駆け）レベルでかかわれたのはよかったと思い、今後も精力的に進めていきたい。

同位体の利用方法は本さきがけ研究でとりあげた内容以外にも大きな広がりをもつ。例えば、Siチップの集積化の発展とともにナノスケールにおける酸化・拡散・加工技術の開発が急務となっており、それらのプロセスにおけるシリコン原子そのものの動き（ここではあえて物理とよぶ）を解明することは非常に重要である。そこでも異なるシリコン同位体がマーカーとして活躍する。当研究室では、ナノスケール酸化プロセスや、ドーパント拡散プロセスにおけるシリコン原子の挙動を詳細に調べる研究を開始した。また、世界的なスピントロニクスブーム（電子

の電荷とスピンの同時利用を目指す新分野)の要請で、核スピンの利用法を模索している。すでに論文にまとめたシリコン量子コンピュータ提案の実現に向けて、シリコンナノテクノロジーを徹底的に発展させなければいけない。ここでも同位体が役に立つ。

さきがけ研究を開始した98年は慶應大学に助手として採用されてから3年目にあたる。当初から一緒に研究を進めてきた大学院生たちがちょうど後期博士課程に進学した年でもあり、研究室もちょうど立ち上げが完了したときであった。タイミングとして最高の時期に国府田先生をはじめとするアドバイザーの方々に選んでいただいたことを心から感謝している。私が感動したのは、アドバイザーの方々が私のことを一人も知らないにも関わらず、研究提案等を中心に採択決定をして下さったこと、そして、それから常に興味をもって進展を見守って下さったことである。特に一年目を終えた中間報告会で、果てしなく先に感じる自分の研究目標に萎縮し、目先の目標のみを追っかけていた第2期生をそろって叱咤激励して下さった、アドバイザーの皆様の親心は一生心に焼きつくであろう。さきがけの精神にのっとり、今回の研究成果をスタートとして、大きな目標を常に掲げながら研究を続けていきたい。

5. 領域総括の見解

本研究は、その研究成果が基礎・応用の諸分野に及ぼしているインパクトの大きさの点において、また本研究者が未踏分野開拓に傾注している意欲の高さの点において本領域研究者の中でも傑出した水準のものである。本領域研究者採択の審査過程では、半導体元素の同位体利用というかなり特殊な研究提案が机上プランにとどまらず、実際にどれだけの進展を3年間の研究期間に期待できるのかの懸念は少なくなかった。いわば、従来の研究者の常識を超えた発想の研究であったが、同位体単結晶作製の成功がただちに同位体超格子作製に発展し、さらにそれらの試料がもたらす多くの可能性が、次々と本人の卓越した構想力と実力によって明らかにされた。この過程で、本研究領域の他研究者との熱心な交流が、本研究の進展に大きく貢献したことも特記すべきであろう。また、本研究者と本研究領域の他研究者との間に注目に値する発想の共同研究が生まれている。「状態と変革」という本研究領域の趣旨を具体的に示し、「さきがけ研究」制度の意義を内外に宣揚したと言う点で、極めて優れた研究成果である。今後の一層の進展が期待できる。

6. 主な論文等

- 1) T. D. Ladd, J. R. Goldman, F. Yamaguchi, Y. Yamamoto, E. Abe, and K. M. Itoh, "An All Silicon Quantum Computer," Phys. Rev. Lett. 投稿中
- 2) M. Nakajima, H. Harima, K. Morita, K. M. Itoh, K. Mizoguchi, E. E. Haller, "Coherent Confined LO Phonons in $^{70}\text{Ge}/^{74}\text{Ge}$ Isotope Superlattice," Phys. Rev. B 63, 161304(R) (2001).
- 3) K. M. Itoh and E. E. Haller, "Isotopically Engineered Semiconductors - New Media for the Investigation of Nuclear Spin Related Effects in Solids," Physica E, 10, 463-466 (2001).
- 4) M. Watanabe, K. M. Itoh, Y. Ootuka, E. E. Haller, "Localization Length and Impurity Dielectric Susceptibility in the Critical Regime of the Metal-Insulator Transition in Homogeneously Doped P-Type Ge," Phys. Rev. B, 62, R2255-R2258 (2000).

- 5) K. Morita, K. M. Itoh, J. Muto, K. Mizoguchi, N. Usami, Y. Shiraki, and E. E. Haller, "Growth and Characterization of $^{70}\text{Ge}_n/^{74}\text{Ge}_n$ Isotope Superlattices," *Thin Solid Films*, 369, 405-408 (2000).
- 6) M. Nakajima, K. Mizoguchi, K. Morita, K. M. Itoh, H. Harima, and S. Nakashima, "Comparison of Coherent and Incoherent LO Phonons In Isotopic $^{70}\text{Ge}/^{74}\text{Ge}$ Superlattices," *J. Lumin.*, 87-89, 942-944 (2000).
- 7) K. M. Itoh, "Variable Range Hopping Conduction in Neutron-Transmutation-Doped $^{70}\text{Ge:Ga}$," *Phys. Stat. Sol. (b)*, 218, 211-216 (2000).
- 8) K. Takyu, K. M. Itoh, K. Oka, N. Saito, and V. I. Ozogin, "Growth and Characterization of the Isotopically Enriched ^{28}Si Bulk Single Crystal," *Jpn. J. Appl. Phys.* 38, L1493-L1495 (1999).
- 9) K. M. Itoh, M. Watanabe, Y. Ootuka, and E. E. Haller, "Scaling Analysis of the Low Temperature Conductivity in Neutron-Transmutation-Doped $^{70}\text{Ge:Ga}$," *Ann. Phys. (Leipzig)*, 8, 631-637 (1999).
- 10) M. Watanabe, K. M. Itoh, Y. Ootuka, and E. E. Haller, "Critical Exponent for Localization Length in Neutron-Transmutation-Doped $^{70}\text{Ge:Ga}$," *Ann. Phys.(Leipzig)*, 8, Spec. Issue, SI-3-SI-9, 273-276 (1999).
- 11) M. Watanabe, K. M. Itoh, Y. Ootuka, and E. E. Haller, "Metal-Insulator Transition of Isotopically Enriched Neutron-Transmutation-Doped $^{70}\text{Ge:Ga}$ in Magnetic Fields," *Phys. Rev. B*, 60, 15817-15823 (1999).
- 12) M. Watanabe, K. M. Itoh, Y. Ootuka, and E. E. Haller, "Metal-Insulator Transition of NTD $^{70}\text{Ge:Ge}$ in Magnetic Field," *Physica B*, 284-288, 1677-1678 (2000).
- 13) 大槻東巳、伊藤公平、Keith Slevin、「アンダーソン転移の理論と実験の現状」、*固体物理*、Vol. 34, No. 5, 301-308 (1999)
- 14) 伊藤公平、渡部道生、大塚洋一、「 Ge:Ga における金属 絶縁体転移」、*日本物理学会誌*、Vol. 54, No.3, 205-208 (1999).
- 15) 伊藤公平、「半導体同位体工学」、*固体物理*、Vol. 33, No. 12, 965-978 (1998).