

**新潟大学研究推進機構超域学術院**  
**研究プロジェクト研究成果（中間）報告書**

(1) 研究プロジェクト名 超音波物理の国際研究拠点形成と産業応用

(2) 研究プロジェクト構成員・職・氏名

リーダー 根本 祐一（自然科学系・准教授）

メンバー

（学内）

後藤 輝孝（自然科学系・フェロー）

赤津 光洋（自然科学系・助教）

三本 啓輔（自然科学系・特任助教）

椎名 亮輔（自然科学系・准教授）

栗原 綾佑（大学院自然科学研究科・博士後期3年）

池照 弘樹（大学院自然科学研究科・博士前期2年）

伊藤 基樹（大学院自然科学研究科・博士前期2年）

木村 駿生（大学院自然科学研究科・博士前期2年）

石川 諒（大学院自然科学研究科・博士前期1年）

瓦井 有香（大学院自然科学研究科・博士前期1年）

高野 恵理（大学院自然科学研究科・博士前期1年）

藤原万里子（大学院自然科学研究科・博士前期1年）

三原 佳祐（大学院自然科学研究科・博士前期1年）

（学外）

金田 寛（九州工業大学・教授）

中村慎太郎（東北大学金研極低セ・助教）

S. Zherlitsyn（ドレスデン強磁場研究所・部門長）

鹿島一日兒（グローバルウェーブ・ジャパン・技監）

宮下 守也（グローバルウェーブ・ジャパン・参事）

斉藤 広幸（グローバルウェーブ・ジャパン・参事）

斉藤 芳彦（東芝・参事）

(3) 研究成果の概要

①プロジェクトにおいて目標としたもの

本事業は、世界的にも特色ある超音波計測を用いて、希土類化合物における量子多極子、カゴ状化合物のラットリング、金属間化合物での磁性・超伝導などの物性物理学の基礎研究と、シリコン結晶の中にごく僅かに存在する原子空孔の観測による、次世代半導体産業における微小欠陥の評価・制御技術の実用化を目指す応用研究を展開し、超音波による物性物理の国際研究拠点の構築を目的としている。

②目標に到達するために選択した方法・手段

独創的な超音波計測による物性物理の探究には、純良な結晶が必須である。これには、独自に育成する場合と、国内共同研究により提供を受ける場合がある。そのため、新潟大、東北大、

東京大，名古屋大，大阪大などとの共同研究を推進した。また，シリコン原子空孔の研究においては，産業用のシリコンウェーハが研究対象となっているため，大学等の研究機関では製造できず，シリコンウェーハメーカーであるグローバルウェーハズ・ジャパン社およびSUMCO社との共同研究を行っている。特に，デバイス動作層の評価・制御に着目したシリコンウェーハ表層の原子空孔観測においては，従来からのバルク超音波法に対して，表層を伝搬する表面弾性波を駆使し，シリコンウェーハ表層に存在する原子空孔の観測に成功した。この際，最先端300mmウェーハ上へのZnO圧電薄膜スパッタと，楕状表面電極形成が新潟大では製造できないため，フィルテック社との産学連携によってこれを克服した。本成果は学術論文の発表とともに，特許出願を行った。新潟大学での超音波計測は，極低温20mK，強磁場16T，高圧力2GPaでの極限環境下での実験を実現している。さらに強磁場を用いた実験のため，ドイツ・ドレスデン強磁場研究所のパルスマグネット(60 T)およびオランダ・ナイメーゲン強磁場研究所の常伝導磁石(30 T)を用いた共同研究を行った。

### ③これまでの研究で得られた成果

本事業が発足してからの2年間に、Nature Communications, Physical Review Lettersをはじめとするトップジャーナルへの論文発表、国際会議での招待講演、物理学会シンポジウム講演、シリコン原子空孔に関する論文と特許取

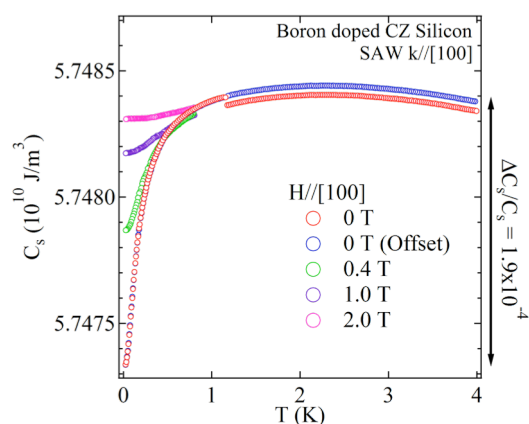


図 1. ボロンドープシリコンウェーハでの表面弾性波の弾性定数  $C_s$  の低温ソフト化とその磁場依存性

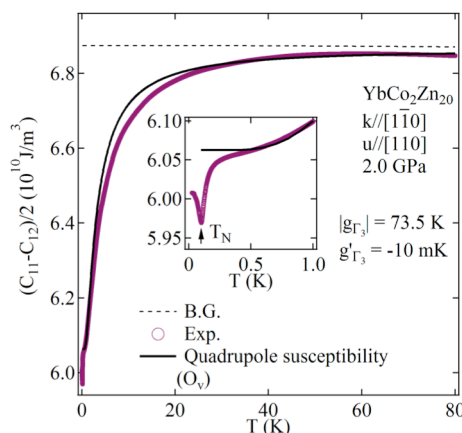


図 2.  $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$  の 2GPa 圧力下における弾性定数  $(C_{11}-C_{12})/2$  の温度依存性。常圧では見られない反強磁性転移  $T_N$  が観測されている。

得・特許出願，基盤研究(A)をはじめとする複

数の科学研究費の採択など，短期間にも関わらず，想定どおりの成果が上がっている。超音波を核として推進してきた頭脳循環プログラム(2010-2012)により開拓した欧州3カ国(ドイツ・オランダ・フランス)とのパルスマグネットや常伝導マグネットを用いた強磁場施設を活用した共同研究では，低次元量子スピン系，鉄系超伝導体，希土類化合物などの超音波実験が進展し，国際共著論文の発表に直結した。また，2014年度には国内の強磁場施設(東北大金研強磁場セ)において，ハイブリッドマグネット(28T)を用いた希釈冷凍機(30mK)による超音波実験のベンチマークデータの取得に成功するなど，次世代の実験環境を整備するに至っている。シリコン原子空孔の研究では，半導体業界からの要請に応えるため，表面弾性波を用いてメモリーやロジックなどのデバイスの動作領域であるシリコンウェーハ表層の評価技術を確認した。また図1に示すように，世界で初めてボロンドープシリコンウェーハの表面波弾性定数のデータ取得と理論解析に成功し，J. Phys. Soc. Jpn. に発表した。これは，東芝，グローバルウェーハズ・ジャパン，フィルテックと新潟大学との産学連携事業による高度な技術開発を基盤とした特筆すべき成果であり，2件の国内特許と1件の国際特許出願を行った。その中で，現在では14nmのデザインルールにまで微細化された半導体デバイスに用いられる高品質ボロンドープシリコンウェーハでの基礎研究をさらに推進するために科研費基盤研究(A)(2014-2016)が採択された。SUMCO と新潟大学との産学連携事業により開発した超音波による原子空孔の観測技術はドイツ，英国，イタリアで特許を取得した。また，極低温・強磁場による極限環境下での超音波実験の観測領域を拡張させるため，新潟大学理学部摂待研究室との共同研究により，高圧下での超音波実験技術を確認した。図2に示すように重い電子化合物  $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$  における 2GPa での弾性定数のデータ取得に世界で初めて成功し，局在電子と伝導電子の競合による量子臨界現象の解明に大きな前進があった。これは従来からの努力が実ったマイルストーンであり，今後の物性物理学における超音波実験の重要性が益々高まると期待されている。

#### ④更新する期間（２年間）で目標とする事項及びその研究計画

新潟大学に世界最高水準に整備した超音波計測システムを駆使し、国内外の物性物理の強相関電子系分野のグループと共同研究を推進し、(1)希土類化合物での4f電子-核スピン結合系の多極子物性の解明、(2)低次元量子スピン系でのスピン四極子-歪み相互作用の解明、(3)縮退バンドを有する超伝導体での四極子物理の解明、(4)多重縮退した重い電子系化合物での量子臨界現象の解明、(5)シリコン原子空孔の基礎研究と産業応用の研究開発を推進する。いずれも物性物理の基本問題の解明に取り組むものである。

1年目は超音波を核とした頭脳循環プログラムで構築した体制を活用して、新潟大学が誇る超高精度超音波計測と、国内および海外の強磁場施設を組み合わせた複合極限環境下での物性研究を展開する。純良単結晶育成に豊富な実績のある理学部の摂待教授グループとの共同研究体制を強化し、重い電子系化合物や異方的超伝導体での量子臨界現象を超音波実験の立場から明らかにする。従来は、局在磁性と近藤効果の競合、磁性と超伝導の競合について、電気抵抗や比熱、帯磁率を用いた圧力下実験などにより伝統的に議論されてきたが、超音波の強みである電気四極子は多重縮退した電子系に敏感であり、局在多極子と近藤効果（多チャンネル近藤効果）や電気四極子が関与する超伝導の量子臨界現象を探索する。これは、世界でもほとんど類例がない研究であり、物性物理学における基本問題に取り組む大きな意義がある。代表例として、希釈冷凍機による極低温・強磁場・高圧下での実験を行い、重い電子系化合物  $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$  の磁場誘起秩序相を明らかにする。また、秩序変数が30年来特定できていない隠れた秩序相をもつ  $\text{URu}_2\text{Si}_2$  の圧力下超音波実験を行い、隠れた秩序から反強磁性転移へと圧力パラメーターによって変貌する様子を詳細に調べ、隠れた秩序に関して提起されている多様な理論モデルの検討を行う。圧力下超音波実験により、鉄系超伝導体や  $\text{V}_3\text{Si}$  での構造相転移と超伝導の量子臨界性を検討する。ここで必要になる圧力下での高周波超音波計測を可能にするため、ピストンシリンダーセル内に極細同軸ケーブルを導入するための技術開発を行い、圧力下弾性定数測定の高精度化を実現する。また、シリコンウェーハの表層評価を前進させるため、経産省NEDOのプログラムへ申請するとともに、フィルテックおよび産業技術総合研究所のスーパークリーンルームを利用した共同研究により、楕状電極の微細化に取り組みGHz帯での超音波計測技術を確立する。さらに、原子空孔を制御したシリコンウェーハを活用するために必要とされる低温超音波計測のスループットを向上させるため、多点測定用希釈冷凍機のプロトタイプ開発を行う。

2年目以降も継続して上記の基礎研究と産業応用のための研究開発を推進する。2014年度には、希釈冷凍機による極低温30mK、常伝導磁石による強磁場28T環境での超音波実験を、東北大金研強磁場センターとの共同研究により確立したので、ピストンシリンダーセル導入による温度・磁場・圧力パラメーターを絡めた極限環境超音波実験を試行する。いずれも前例がない困難な事業であるが、これまでのノウハウ蓄積により着実な進歩が望める。超音波による原子空孔評価および制御技術の産業界への普及に関しては、シリコンウェーハ基板を製造する信越半導体やSUMCO、グローバルウェーハズ・ジャパンなどのウェーハメーカーと、ウェーハ上にメモリーやイメージセンサーを製造する東芝やSONYなどのデバイスメーカーとの現場レベルでの議論が欠かせない。そのため、SONYに所属して産業界で活躍されてこられた新潟大URAの進藤シニア・リサーチ・アドミニストレータの協力を得ながら、フィルテック、産総研との共同研究を踏まえ、市場動向の調査ならびにプロトタイプ評価装置の性能向上を進める。基礎研究に加えて、頭脳循環プログラムなどの国際連携やNEDOなどの産学連携事業を展開することで、

新潟大学の特色である超音波を用いた強相関量子科学の発展に寄与する。これにより、国内外との共同研究を進展させ、国際的にも高度に整備された超音波実験施設の拠点化を目指す。新潟大学に根付いてきた低温物理学などの維持、発展のためには、ヘリウム液化システムの整備、更新が不可欠であるので、コア・ステーションである物質量子科学研究センターと一体となって運営にも寄与する。

## ⑤研究発表実績

### 口頭発表（招待講演のみ）

2015

“Observation of Vacancy in Crystalline Silicon by Surface Acoustic Wave Measurement” , K. Mitsumoto, M. Akatsu, S. Baba, R. Takasu, Y. Nemoto, T. Goto, H. Yamada-Kaneta, Y. Furumura, H. Saito, K. Kashima, Y. Saito, BIT’s 2nd Annual World Congress of Smart Materials-2016, March 4-6, 2016, Singapore, Singapore, Oral presentation (Invited)

2014

“Surface acoustic wave diagnosis of vacancy orbital in surface layer of silicon wafer” , T. Goto, K. Mitsumoto, M. Akatsu, S. Baba, K. Okabe, R. Takasu, Y. Nemoto, H. Yamada-Kaneta, Y. Furumura, H. Saito, K. Kashima, Y. Saito, The Forum on the Science and Technology of Silicon Materials 2014 (Hamamatsu), October 19-20, 2014, Hamamatsu, Japan, Oral presentation (Invited)

“Ultrasonic diagnosis of vacancy orbital in silicon wafer” , T. Goto, K. Mitsumoto, M. Akatsu, S. Baba, K. Okabe, R. Takasu, Y. Nemoto, H. Yamada-Kaneta, Y. Furumura, H. Saito, K. Kashima, Y. Saito, 13th Bilateral German-Japanese Symposium “Interplay of Spin- and Orbital Degrees of Freedom in Strongly Correlated Electron Systems” , July 13-16, 2014 Rottach-Egern, Germany, Oral presentation (Invited)

“Surface acoustic wave diagnosis of vacancy in boron doped silicon wafer” , T. Goto, K. Mitsumoto, M. Akatsu, S. Baba, K. Okabe, R. Takasu, Y. Nemoto, Y. Furumura, H. Saito, K. Kashima, and Y. Saito, EMRS 2014 Spring Meeting (European Materials Research Society), May 26-30, 2014 Strasbourg, France, Oral presentation (Invited)

“超伝導体の超音波減衰” , 後藤輝孝, Workshop: CROSSroads of Users and J-PARC 第13回「強相関電子系の物理」, 2014年12月2日-3日, いばらき量子ビーム研究センター, 茨城県

“Pr核スピン-f電子相互作用の超音波実験” , 根本祐一, 平成26年度物性研究所短期研究会「スクッテルダイト化合物及び関連物質を舞台とした強相関電子系物理の新展開」, 2014年10月10日-12日, 物性研究所, 千葉県

“原子レベルのウェーハ欠陥検出技術★徹底解説 ~10nm 時代の歩留り向上のための欠陥検出技術を詳解~”，根本祐一，Electronic Journal 第2462回 Technical Seminar，2014年10月2日，連合会館，東京都

“超音波で観る量子力学の世界”，根本祐一，第203回物理学教室セミナー日本物理学会北陸支部特別講演会，2014年7月17日，富山大学，富山県

“表面超音波によるシリコンウェーハの原子空孔の研究と産業応用への展開”，三本啓輔，日本物理学会 第69回年次大会 領域10 シンポジウム「局所構造と物性 その評価と応用」，2014年3月27日-30日 東海大学，神奈川県

#### 出版物 (学術論文)

2015

“Large magnetocaloric effect and adiabatic demagnetization refrigeration with  $\text{YbPt}_2\text{Sn}$ ”，D. Jang, T. Gruner, A. Steppke, K. Mitsumoto, C. Geibel, M. Brando  
Nature Communications, 査読有, Vol. 6, pp. 8680/1-5, 2015年

“Surface acoustic wave diagnosis of vacancy orbital with electric quadrupoles in silicon”，T. Goto, K. Mitsumoto, M. Akatsu, S. Baba, K. Okabe, R. Takasu, Y. Nemoto, H.Y. Kaneta, Y. Furumura, H. Saito, K. Kashima, and Y. Saito, Journal of Physics: Conference Series, 査読有, Vol. 592, pp. 012150/1-7, 2015年

“Ytterbium ESR in a lattice with weak coupling: the case of  $\text{YbPt}_2\text{Sn}$ ”，J. Sichelschmidt, T. Gruner, D. Jang, A. Steppke, M. Brando, K. Mitsumoto, and C. Geibel, Journal of Physics: Conference Series, 査読有, Vol. 592, pp. 012017/1-6, 2015年

2014

“Magnetic ordering of hyperfine-coupled nuclear and 4f-electron moments in clathrate compound  $\text{Pr}_3\text{Pd}_{20}\text{Ge}_6$ ”，O. Iwakami, Y. Namisashi, S. Abe, K. Matsumoto, G. Ano, M. Akatsu, K. Mitsumoto, Y. Nemoto, N. Takeda, T. Goto, and H. Kitazawa, Physical Review B, 査読有, Vol. 90, pp. 100402(R)/1-5, 2014年

“Elastic Softening of Surface Acoustic Wave Caused by Vacancy Orbital in Silicon Wafer”，K. Mitsumoto, M. Akatsu, S. Baba, R. Takasu, Y. Nemoto, T. Goto, H.Y.-Kaneta, Y. Furumura, H. Saito, K. Kashima, and Y. Saito, Journal of Physical Society of Japan, 査読有, Vol. 83, pp. 034702/1-12, 2014年

“Effect of Magnetic Field on Spin Excitations in the Kondo Lattice Antiferromagnet”，R. Shiina, Journal of Physical Society of Japan, 査読有, Vol. 83, pp. 124705/1-5, 2014

年

“Coexistence and Competition of Magnetic and Charge Orders in an Extended Kondo Lattice Model for Sm Skutterudite”, R. Shiina, Journal of Physical Society of Japan, 査読有, Vol. 83, pp. 094706/1-7, 2014 年

“*p-f* Mixing, Competing Interactions, and Unconventional Magnetism SmRu<sub>4</sub>P<sub>12</sub>”, R. Shiina, JPS Conference Proceedings, 査読有, Vol. 3, pp. 011006/1-6, 2014 年

2013

“Strong Quadrupole-Strain Interaction of Vacancy Orbital in Boron-Doped Czochralski Silicon”, K. Okabe, M. Akatsu, S. Baba, K. Mitsumoto, Y. Nemoto, H. Y.-Kaneta, T. Goto, H. Saito, K. Kashima, and Y. Saito, Journal of Physical Society of Japan, 査読有, Vol. 82, pp. 124604/1-8, 2013 年

“Role of Hyperfine Coupling in Magnetic and Quadrupolar Ordering of Pr<sub>3</sub>Pd<sub>20</sub>Si<sub>6</sub>”, L. Steinke, K. Mitsumoto, C. F. Miclea, F. Weickert, A. Dönni, M. Akatsu, Y. Nemoto, T. Goto, H. Kitazawa, P. Thalmeier, and M. Brando, 査読有, Physical Review Letters, Vol. 111, pp. 077202/1-5, 2013 年

“Low-Temperature Softening Due to Vacancy Orbital with G<sub>8</sub> Quartet Ground State in Boron-doped Floating Zone Silicon”, S. Baba, M. Akatsu, K. Mitsumoto, S. Komatsu, K. Horie, Y. Nemoto, H. Y.-Kaneta, and T. Goto, 査読有, Journal of Physical Society of Japan, Vol. 82, pp. 084604/1-12, 2013 年

“Quadrupole Effects in Tetragonal Crystals PrCu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> and DyCu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>”, K. Mitsumoto, S. Goto, Y. Nemoto, M. Akatsu, T. Goto, N. D. Dung, T. D. Matsuda, Y. Haga, T. Takeuchi, K. Sugiyama, R. Settai, and Y. Ōnuki, 査読有, Journal of Physics: Condensed Matter, Vol. 25, pp. 296002/1-8, 2013 年

“Spin-Nematic Interaction in the Multiferroic Compound Ba<sub>2</sub>CoGe<sub>2</sub>O<sub>7</sub>”, 査読有, Physical Review Letters, M. Soda, M. Matsumoto, M. Mansson, S. Ohira-Kawamura, K. Nakajima, R. Shiina, T. Matsuda, Vol. 112, pp. 127205/1-5, 2014 年

“Theory Of Metal-Insulator Transition and Unconventional Magnetic Ordering in SmRu<sub>4</sub>P<sub>12</sub>”, Journal of Physical Society of Japan, 査読有, Vol. 82, pp. 083713/1-5, 2013 年

⑥競争的資金の応募・採択状況

根本 祐一（代表），科学研究費 挑戦的萌芽研究，「半導体プロセスによる表面超音波デバイス開発と強相関物性解明への応用」，H27-H28，総額 3,770 千円，採択

根本 祐一（代表），科学研究費 基盤研究(B)，「電気四極子に由来する超微細相互作用の超音波による研究」，H27-H29，総額 19,680 千円，不採択

後藤 輝孝（代表），根本 祐一（分担），科学研究費 基盤研究(A)，「表面超音波によるシリコンウェーハ表層の原子空孔の研究」，H26-H28，総額 41,600 千円，採択

後藤 輝孝（代表），NEDO エネルギー・環境新技術先導プログラム，「半導体デバイスの進化に資する原子空孔評価技術の研究開発」，H27-H28，総額 200,000 千円，不採択（第1次審査通過）

椎名 亮輔（代表），科学研究費 基盤研究(C)，「希土類化合物における競合的混成効果と磁性および多極子状態の理論的探求」，H25-H27，総額 2,860 千円，採択

赤津 光洋（代表），科学研究費 若手研究(B)，「超音波によるマルチバンド超伝導体の電気四極子効果の解明」，H26-H27，総額 3,900 千円，採択

赤津 光洋（代表），内田エネルギー科学振興財団 試験研究費，「マルチバンド超伝導体の四極子揺らぎの解明」，H26，総額 350 千円，採択

三本 啓輔（代表），科学研究費 若手研究(B)，「超音波によるシリコン原子空孔がもつ四極子歪み結合の解明」，H27-H29，総額 4,160 千円，採択

三本 啓輔（代表），内田エネルギー科学振興財団 試験研究費，「表面超音波によるシリコンウェーハ表層の原子空孔の解明」，H25，総額 300 千円，採択

#### ⑦研究成果による知的財産権の出願・取得状況

##### 特許

2015

“CZ 法による Si 単結晶インゴットの製造方法”，後藤輝孝，根本祐一，金田寛，宝来正隆，特許番号 EP 1997940，登録国（ドイツ，英国，イタリア），取得日 2015 年 8 月 19 日，PCT 出願番号 PCT/JP2007/054619

2014

シリコンウェーハ表層中原子空孔評価方法及び装置，後藤輝孝，根本祐一，金田寛，赤津光洋，三本啓輔，PCT/JP2014/005580，出願日 2014 年 11 月 05 日

2013



シリコンウェーハ中の原子空孔濃度の絶対値の決定方法，後藤輝孝，根本祐一，金田寛，赤津光洋，三本啓輔，鹿島一日兒，特願 2013-232353(請求項追加)，2013 年 11 月 8 日

シリコンウェーハ表層中原子空孔評価方法及び装置，後藤輝孝，根本祐一，金田寛，赤津光洋，三本啓輔，特願 2013-232352(請求項追加)，2013 年 11 月 8 日

シリコンウェーハ中の原子空孔濃度の絶対値の決定方法，後藤輝孝，根本祐一，金田寛，赤津光洋，三本啓輔，鹿島一日兒，特願 2013-017811(優先権主張番号)，出願日 2013 年 1 月 31 日

シリコンウェーハ表層中原子空孔評価方法及び装置，後藤輝孝，根本祐一，金田寛，赤津光洋，三本啓輔，特願 2013-017810(優先権主張番号)，出願日 2013 年 1 月 31 日

#### ⑧新聞等のメディアに掲載された事項

##### 新聞報道

日刊工業新聞 2014 年 5 月 5 日，第 1 面，超音波計測による原子空孔濃度の研究成果が掲載された。東芝・室町正志取締役会長のコメントも掲載され注目を集めた。