

戦略的国際科学技術協力推進事業（日本－ドイツ 研究交流）

1. 研究課題名：「シリコンナノスピントロニクス素子実現につなげる不純物量子状態の解明と制御」

2. 研究期間：平成20年9月～平成24年3月

3. 支援額： 総額 17,230,000円

4. 主な参加研究者名：

日本側（研究代表者を含め6名までを記載）

|               | 氏名              | 所属         | 役職   |
|---------------|-----------------|------------|------|
| 研究代表者         | 伊藤 公平           | 慶應義塾大学理工学部 | 教授   |
| 研究者           | 森下 弘樹           | 慶應義塾大学理工学部 | 大学院生 |
| 研究者           | 石川 豊史           | 慶應義塾大学理工学部 | 大学院生 |
| 研究者           | Waseem Akhter   | 慶應義塾大学理工学部 | 大学院生 |
| 研究者           | 手塚 宙之           | 慶應義塾大学理工学部 | 大学院生 |
| 研究者           | Rizwanur Rahman | 慶應義塾大学理工学部 | 大学院生 |
| 参加研究者 のべ 34 名 |                 |            |      |

中国側（研究代表者を含め6名までを記載）

|               | 氏名                 | 所属              | 役職   |
|---------------|--------------------|-----------------|------|
| 研究代表者         | Martin S. Brandt   | ウォルターシュottキー研究所 | 教授   |
| 研究者           | Martin Stutzmann   | ウォルターシュottキー研究所 | 教授   |
| 研究者           | Gerhart Abstreiter | ウォルターシュottキー研究所 | 教授   |
| 研究者           | Andre Stegner      | ウォルターシュottキー研究所 | 大学院生 |
| 研究者           | Lukas Dreher       | ウォルターシュottキー研究所 | 大学院生 |
| 研究者           | Felix Hoehne       | ウォルターシュottキー研究所 | 大学院生 |
| 参加研究者 のべ 10 名 |                    |                 |      |

5. 研究・交流の目的

本研究では、将来の量子情報素子への応用を視野に入れながら、半導体の性質を制御するために添加されるシリコン中の不純物（ドーパント）の電荷依存現象及びスピン依存現象の解明を目的とする。日本側の同位体工学及び電子スピン共鳴、核スピン共鳴測定技術と、ドイツ側の半導体構造の磁気共鳴及びパルス電気検知磁気共鳴（EDMR）装置の開発技術を組み合わせ、従来の電荷依存現象に加えて、ナノシリコン中の複数そして最終的には単一のドーパントのスピン依存現象を明らかにする。

6. 研究・交流の成果

6-1 研究の成果

・歪みを印加しない半導体中のアクセプタ不純物の電子磁気共鳴評価に世界で初めて成功（日独共同成果、共著論文2通、共著国際会議発表3件）：

シリコン中のドナー電子スピンを量子ビットとして応用する研究は進んでいるが、アクセプタ正孔スピンを量子情報処理に応用する研究は完全に手つかずであった。すなわちアクセプタ準位に対する電子（正孔）磁気共鳴は極めて困難とされた。これは荷電子帯が重い正孔と軽い正孔による2つのバンドで縮退しているために、結晶中に分散する

様々な欠陥が応力の発生源となり、それにより生じる歪みがアクセプタに捕獲された正孔のエネルギー準位をランダムに分裂してしまい、その結果として共鳴ピークが極端な不均一拡がりにより観測できなくなってしまうことによる。実際に、これまでに報告された半導体中のアクセプタ準位の磁気共鳴は、すべて人為的に外部から応力を加えることにより結晶中のランダムな歪みを覆い隠す操作を行ってきた。このように外部応力が印加された状態での正孔スピンの磁気共鳴は応力がない通常の状態を反映していないために、外部応力なしの状態でアクセプタの磁気共鳴を実施する事が待ち望まれていた。この要望は特に半導体の王様であるシリコンに対して強く、さらにはシリコン中で最も重要とされるホウ素アクセプタに対して強かった。

そこで本研究においては、結晶中のランダム歪みの原因が単なる欠陥ではなく、シリコン結晶中に分散する安定同位体による歪みであるという大胆な仮説をたて、その検証を行った結果、一種類の安定同位体に統一したシリコン単結晶中にホウ素を添加した場合には、ホウ素の正孔スピン共鳴が「外部応力の印加なしでも」明確に観測できることを初めて示す事に成功した。共鳴線幅も極めて狭い事から、異なる安定同位体の結晶中におけるランダムな分散がランダム応力の主原因であることを特定することに成功した。さらに共鳴線の幅が狭くなったことにより、これまで予想されていなかった共鳴線の存在を見出すことに成功した。詳細なる解析の結果、ホウ素準位が印加磁場により4つに分裂した場合に生じる二重共鳴によることを見出し、その成果を *Physical Review B* 誌に *Rapid Communication* の速報として日独共著論文として発表した。さらには異なる安定同位体のランダム分布により生じる歪みの定量性の高い理論により解析することに成功し、その成果も日独共著論文として *Physical Review B* 誌に発表した。

- ・ 低磁場電子磁気共鳴検知装置開発の成功と、リンドナーおよび酸素-空孔スピン三重項欠陥のスピン状態の低磁場での検知の成功（日独共同成果、共著論文2通、日側単著論文2通、日独共著国際会議発表2件、日側単著国際会議発表10件）：

電子スピン共鳴(ESR)は半導体中の様々な欠陥や不純物の磁気物性を解明する有効な手段である。欠陥によって低磁場（例えば20mT以下）においてエネルギー準位が交差（反交差）し、電子スピンと核スピンが重ね合わせ状態を形成するため、低磁場でのESR測定が必要となる。しかし、ESR信号強度が磁場の2乗に比例するため、通常のESR測定では300mT付近の高い磁場が用いられる。それより低い磁場においては信号強度の確保が難しいためである。

そこで、本プロジェクトでは信号強度が共鳴周波数に依存せず、感度が通常のESRより約10万倍高い電気検知磁気共鳴(EDMR)法を開発し、その動作原理を報告した。そしてシリコン中のリン不純物の低磁場（20mT以下）電子スピン共鳴を測定し、電子スピンと核スピンの重ね合わせ状態などのエネルギー準位の詳細を解明した。20mT以下の低磁場では、リン不純物のスピンハミルトニアンにおいて超微細相互作用の項が支配的になるため、電子スピンと核スピンのエネルギー状態が混ざり合う。そのため、通常のESRでは許容遷移数が二本であるのに対し、低磁場EDMRでは五本の磁気共鳴ピークが検知できることを示した。印可磁場を0~20mT、励起周波数を0~1GHzの範囲で連続的に変化させてEDMRマッピングを行い、理論予測と定量的に比較することから観測されたすべての遷移がリンドナー由来であることも確立した。さらに理論構築を進めることから、Si/SiO<sub>2</sub>界面付近に存在する深い準位を介したリン電子と荷電子帯の正孔のスピン依存再結合が低磁場EDMR信号の起源であることを示した。ここまでの成果は日側単著論文として *Physical Review B* 誌に発表された。さらに、リン不純物の低磁場EDMRの不均一拡がり幅を、安定同位体濃度を制御したシリコン結晶を用いて調べた。印加磁場が異なるにも関わらず、リン不純物の低磁場EDMR線幅を通常のESR線幅は同じであり、その拡がり主要因が背景<sup>29</sup>Si核スピンとの超微細相互作用であることを明らかにした。すなわち、リン電子と界面準位間の相互作用が、信号検出に必要な再結合を促すには十分であるが、

線幅を拓げる程には強くないことを見出している。この成果は日独共著論文として *Applied Physics Express* 誌に発表された。

また、本プロジェクトは固体量子コンピュータの実現を長期目標の1つと据えるため、シリコン中の不純物や量子ドットに束縛された電子スピン、不純物の核スピン、そして安定同位体である  $^{29}\text{Si}$  核スピン等を量子ビットとして利用することを検討し、異なる量子ビット間で量子情報を自由自在に移動する技術の確立を目指した。そこでシリコン中の酸素-空孔欠陥に着目し、光照射により生成される電子スピン三重項状態の詳細を電子磁気共鳴により解明し、その知見に基づき、酸素-空孔欠陥の電子スピン三重項状態と  $^{29}\text{Si}$  核スピンの間で量子情報を自在に交換する実験手法を確立した。ここでも電子磁気共鳴を試料の電気伝導度の変化として捉える手法を駆使し、スピン三重項とリンの電子スピンのゼーマン分裂が等しくなる特定の印加磁場においては、両スピンの間でフリップフロップが誘起されることを見出した。本成果は日側単著論文として *Physica B* 誌に発表された。

- 通常の電子磁気共鳴測定を用いたシリコン中の量子ビット候補と、それらに対する背景不純物の影響の定量的な見積り（日独共同成果、日独共著論文1件、日側単著論文4件、日側単著国際会議発表6件）

シリコン中の量子ビットの候補としてリチウムドナーを詳細に調べ、特にドナー単独のエネルギー準位に加え（日側単著 *Physica B* 誌に発表）、リチウムドナーと周辺  $^{29}\text{Si}$  核スピンの相互作用を用いた量子計算初期化の可能性を示した。（日側単著 *Japanese Journal of Applied Physics* 誌に発表）また、リンドナーと周辺  $^{29}\text{Si}$  核スピンの相互作用を用いた量子計算初期化の効率が高いことを示す事に成功し（日側単著 *Physical Review B* 誌に発表）、さらには日独共同でリンドナーの電子磁気共鳴に対する周辺酸素および炭素不純物の影響を定量的に明らかにした。（日独共著 *Applied Physics Letters* 誌に発表）

- 「相手国との協力による研究への相乗効果」の観点から

日側研究者は述べ日数にして 673 日、独側研究者は延べ日数 107 日と徹底した交流を行った。日本側が多く映るのは、米国、豪などの中立国での日独の打ち合わせが含まれるからであり、JST への報告のフォーマット上、「日本から海外」、「独から日本」と分けられるために独が少なく映っている。プロジェクト開始時に独側ミュンヘン工科大学で実施したキックオフシンポジウム TUM-Keio Nanoelectronics Workshop の効果が絶大で、そこで知り合った日独大学院生同士が日独研究代表者の元で徹底した研究討論・交流を行ったことから様々な新しいアイデアが生み出され、結果として予想外の実験結果といった多くの新しい発見に繋がった。その成果が物理分野で最も高い権威を誇る *Physical Review* 誌などへの多数の共著論文発表に繋がった。

- 「当該研究の今後の展開見込、社会への波及効果」の観点から

本プロジェクトはシリコンを量子情報応用に向けて発展させるものであるが、シリコンは現在の電子産業の中心材料でもある。そのシリコンにドナーやアクセプタを添加した場合、不純物準位を電子磁気共鳴分光により評価する事が望ましい。電子磁気共鳴により不純物のスピン状態の分裂や、電子状態の対称性が明らかになる。よって半導体を n 型にするドナー準位に対しては電子磁気共鳴による評価が多用されてきたが、p 型に対してはそれが困難であった事は既に述べた。その困難の原因を本プロジェクトが初めて突き止め、その解決によりアクセプタ正孔スピン共鳴評価を可能にしたという点において産業界に対しても少なからず貢献できたと考える。

## 6-2 人的交流の成果

### ● 「相手国との研究交流につながる人材育成」の観点から

日独双方において本プロジェクトの中心メンバーとして関わった大学院生が博士課程に進学し、現時点で博士号を取得した者も多数輩出された。また、本プロジェクトでの密なる共同研究の成果としてミュンヘン工科大学と慶應義塾大学で2011年よりダブルディグリープログラム（修士課程学生の共同教育・指導プログラム）設置された。これは研究交流の増加/継続的発展という観点からも大きな成果である。優秀な大学院生が共同研究の担い手という観点から、継続的にミュンヘン工科大学と慶應義塾大学で学生交換を行うプログラムで、毎学年、2名の学生が交換されることになっている。

## 7. 主な論文発表・特許等（5件以内）

相手国側との共著論文については、その旨を備考欄にご記載ください。

| 論文<br>or<br>特許 | ・論文の場合： 著者名、タイトル、掲載誌名、巻、号、ページ、発行年<br>・特許の場合： 知的財産権の種類、発明等の名称、出願国、出願日、<br>出願番号、出願人、発明者等                                                                                                                                                                                                                                                                             | 備考        |
|----------------|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------|
| 論文             | H. Tezuka, A. R. Stegner, A. M. Tyryshkin, S. Shankar, M. L. W. Thewalt, S. A. Lyon, K. M. Itoh, and M. S. Brandt, "Electron Paramagnetic Resonance of Boron Acceptors in Isotopically Purified Silicon, Phys. Rev. B 81, 161203(R) (2010).                                                                                                                        | 日 独<br>共著 |
| 論文             | A. R. Stegner, H. Tezuka, T. Andlauer, M. Stutzmann, M. L. W. Thewalt, M. S. Brandt, and K. M. Itoh, "Isotope Effect on Electron Paramagnetic Resonance of Boron Acceptors in Silicon," Phys. Rev. B 82, 115213 (2010).                                                                                                                                            | 日 独<br>共著 |
| 論文             | H. Morishita, E. Abe, W. Akhtar, L. S. Vlasenko, A. Fujimoto, K. Sawano, Y. Shiraki, L. Dreher, H. Riemann, N. V. Abrosimov, P. Becker, H.-J. Pohl, M. L. W. Thewalt, M. S. Brandt, and K. M. Itoh, "Linewidth of Low-Field Electrically Detected Magnetic Resonance of Phosphorus in Isotopically Controlled Silicon," Applied Physics Express, 4, 021302 (2011). | 日 独<br>共著 |
| 論文             | A. R. Stegner, H. Tezuka, H. Riemann, N. V. Abrosimov, P. Becker, H.-J. Pohl, M. L. W. Thewalt, K. M. Itoh, and M. S. Brandt, "Correlation of Residual Impurity Concentration and Acceptor Electron Paramagnetic Resonance Linewidth in Isotopically Engineered Si," Appl. Phys. Lett. 99, 032101 (2011).                                                          | 日 独<br>共著 |
|                |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                    |           |