

Si 同位体超格子の電子・光・格子物性

慶應義塾大学理工学部物理情報工学科 伊藤 公平

http://appi2.appi.keio.ac.jp/lttoh_group/

1. はじめに

シリコン (Si) 単結晶の中には 3 種類の安定同位体 ^{28}Si 、 ^{29}Si 、 ^{30}Si が必ず 92.2%:4.7%:3.1%の比率で存在する。本研究は、3 種類の安定同位体の組成と分布を原子レベル (ナノスケール) で制御することから同位体超構造の電子・光・格子物性を明らかにし、デバイス材料としてのシリコンの特性向上を目指した。

同位体超格子の例を図 1 に示す。ここでは ^{28}Si と ^{30}Si 同位体が交互に数原子層ずつ積層された構造を示す。この同位体超格子では格子振動は縦方向の周期性の影響を受けるが、電子のバンド構造はバルク Si と全く変わらない。よって電子の分布が超格子内で一様であるという点で、図 2 に示す江崎超格子と大きく異なる。すなわち、電子からみるとただのバルク Si 単結晶であるが、格子振動からみると超格子といえる、全く新しい半導体超構造が同位体超格子である。このような系では、超格子の周期 (^{28}Si と ^{30}Si 同位体層の厚み) を変化させることから、格子振動の様子を自在に制御できる可能性がある。また、同位体超格子中の格子振動物性を明らかにすることから、Si デバイスの特性向上も可能となる。例えば、Si 中の室温における伝導キャリアは、格子振動によって強く散乱される。特に電子は格子振動の運動量を得て inter-valley 散乱され、移動度が inter-valley 散乱がない場合の 1/3 に低下する。この様な散乱は電子と格子の相互作用によっておこるため、同位体超格子を用いて inter-valley 散乱が減少する条

^{28}Si
^{30}Si
^{28}Si
^{30}Si
Si 基板

図 1 $^{28}\text{Si}/^{30}\text{Si}$ 同位体超格子

GaAs
GaAlAs
GaAs
GaAlAs
GaAs 基板

図 2 GaAs/GaAlAs 江崎超格子

件を見出せば、電子の移動度が大幅に向上できる可能性がある。すなわち、これまで考えられてもこなかったことだが、Si 素子の動作速度（高周波特性）向上が Si の同位体組成を制御するだけで実現するのである。

以上の理由から、本研究では 2 種類の Si 安定同位体を入手し、それら同位体を交互に積層した構造（同位体超格子）の作製を目指した。

2. 研究成果

2000 年度の成果は、同位体超格子作製にむけて十分な量の ^{28}Si および ^{29}Si 同位体を確保し、高純度バルク単結晶化を行ったことである。これらのバルク単結晶は分子線エピタキシー装置を用いた $^{28}\text{Si}/^{29}\text{Si}$ 同位体超格子の作製における原料（固体ソース）として利用される。

同位体超格子の効果を最大限に引き出すためには、2 種類の同位体の質量差が大きいほうが望ましい。よって、Si の場合は最も質量差が大きい ^{28}Si と ^{30}Si の組み合わせが好ましいが、今回は ^{28}Si および ^{29}Si の組み合わせをロシアから入手した。 ^{30}Si を使わない理由として、現在入手可能な ^{30}Si 原料に多くのボロン（ホウ素）不純物が混入しており、半導体材料として利用できないことがあげられる。（実際に 2000 年度の前半は ^{30}Si 原料の様々な評価に費やした。）Si 固体からリン、アルミニウム等を除くことは比較的容易であるが、ホウ素を排除することは非常に難しい。よって、現時点では ^{30}Si は半導体材料として利用できないと判断した。一方、ロシアが供給する ^{28}Si および ^{29}Si 原料は様々な評価の結果、不純物濃度が高く半導体材料として充分利用可能であることがわかった。そこで本研究では質量差こそ小さいものの、半導体としての不純物純度を重視して、 $^{28}\text{Si}/^{29}\text{Si}$ 同位体超格子の作製に必要な ^{28}Si および ^{29}Si 固体原料の作製を行った。特に、ロシアから入手する ^{28}Si および ^{29}Si を半導体材料として評価するために

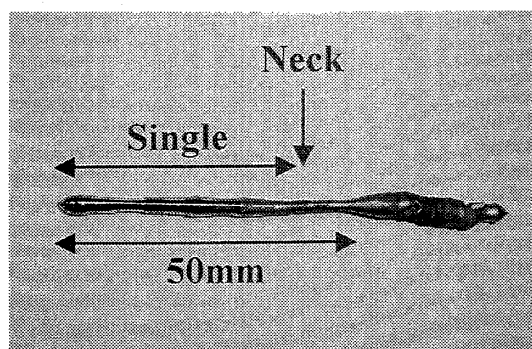


図 3 ^{28}Si 単結晶

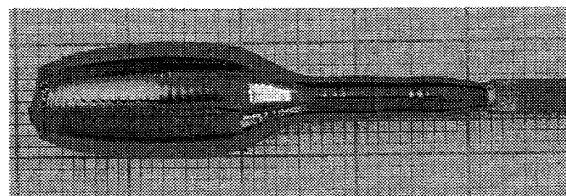


図 4 ^{29}Si 単結晶

は単結晶化が不可欠であった。2000 年度は ^{28}Si (図 3) および ^{29}Si (図 4) の単結晶化に成功し、電気・光学的評価を行った。図 3 の ^{28}Si 単結晶は自製の小型フローティングゾーン成長装置を用いて作製し、Si 同位体単結晶としてはこれまでの最高の同位体純度(99.92%)を得た。同位体純度を高める秘訣は、同位体分離の時点で高純度化につとめることと、結晶成長の時点で純度を落とさないことの 2 点である。同位体分離には直接関与しない我々ができることは結晶成長の時点で同位体純度を落とさないことであった。具体的には、坩堝(ルツボ)を用いないフローティングゾーン法を採用し、種結晶を用いない結晶成長を採用することで同位体純度を保った。BN に代表されるセラミックス坩堝を利用するとホウ素不純物が混入し、石英ルツボを用いるとそこに含まれる ^{29}Si および ^{30}Si 同位体が不純物として結晶の中に混入する。また、種結晶に天然の同位体組成を有する Si を用いると、やはり、 ^{29}Si および ^{30}Si 同位体が不純物として結晶の中に混入する。そこで種結晶を用いないネッキング法によるアクシデンタルな結晶成長、ルツボを用いないフローティングゾーン型の結晶成長を行い、図 3 に示す世界最高同位体純度 ^{28}Si 単結晶を完成させた。また、 ^{29}Si (図 4) に関しては共同研究者との関係で石英ルツボを用いる必要があったが、種結晶としては融点がシリコンより大幅に高い高純度シリコンカーバイド(SiC)を採用し、種結晶を用いながらも同位体純度を全く落とさない結晶成長に成功した。

また、 $^{28}\text{Si}/^{29}\text{Si}$ 同位体超格子の作製にむけて新型電子銃を備えた MBE 装置を立ち上げ、天然の同位体組成を有する Si を用いた様々な予備実験を行った。Ge を用いた同位体超格子の作製にも成功し、そこで最適化された超格子作製条件を用いて、 $^{28}\text{Si}/^{29}\text{Si}$ 同位体超格子の作製に移行する。

3. まとめと今後の展開

2000 年度は同位体超格子作製にむけて十分な量の ^{28}Si および ^{29}Si 同位体 を確保し、高純度バルク単結晶化を行った。 ^{28}Si および ^{29}Si バルク単結晶の評価の結果、高品質同位体超格子の作製にむけて十分な同位体および不純物純度を有することを確認した。またバルク単結晶化と平行して、Ge 同位体を用いた同位体超格子の作製を行った。Ge 同位体超格子の作製は Si 同位体超格子の作製にむけた予備実験としての意味合いも大きい。さらに、本稿では割愛したが、同位体超格子を量子コンピュータ材料として利用する研究も開始した。ここでは核スピンを有する同位体(^{29}Si)ともたない同位体(^{28}Si)の超構造作製が不可欠であり、同位体超格子の新しい応用として注目されている。

4. 謝辞

本研究は平成 12 年度新世代研究所研究助成の支援を受けて進められた。同研究所に心から感謝の意を表する。

研究成果

(1) 発表論文

1. 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, 印刷中

2. J. Kato, K. M. Itoh, and E. E. Haller, "Electric Field Broadening of Arsenic Donor States in Strongly Compensated N-Type Ge:(As, Ga)," Physica B, 印刷中

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, 印刷中

4. Michio Watanabe, Kohei M. Itoh, Youiti Ootuka, Eugene 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 $^{70}\text{Ge}/^{74}\text{Ge}_n$ 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 $^{70}\text{Ge}:\text{Ga}$," Phys. Stat. Sol. B. (b), **218**, 211-216 (2000).