

機関番号：13101

研究種目：特別推進研究

研究期間：2006～2010

課題番号：18002008

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（英語）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

研究者番号：60134053

研究成果の概要（和文）：

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、超音波計測による弾性定数や吸収係数の測定により、四極子感受率を観測できる。本研究では、低温での高分解超音波位相差計測を駆使し、希土類化合物の局在 4f 電子の非クラマース 2 重項、カゴ状化合物の局所振動のラットリング、ボロン添加シリコン結晶中の原子空孔軌道などに現れる「電荷揺らぎに由来する強相関量子相」を研究した。

研究成果の概要（英文）：

The ultrasonic strains have specified symmetries and couple to the electric quadrupoles of the electronic and ionic quantum states. The ultrasonic measurements of the elastic constants and attenuation coefficients, therefore, may determine the quadrupole susceptibility. In the present projects, using low-temperature ultrasonic phase difference measurement apparatus with a highly velocity resolution, we have carried out a study of non-Kramers doublet of localized 4f-electron in rare-earth compounds, rattling of local oscillator in clathrate compounds, vacancy orbital in boron-doped silicon crystal in pursuing strongly correlated quantum phases associated with charge fluctuation.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	51,200,000	15,360,000	66,560,000
2007年度	51,200,000	15,360,000	66,560,000
2008年度	38,800,000	11,640,000	50,440,000
2009年度	38,800,000	11,640,000	50,440,000
2010年度	38,800,000	11,640,000	50,440,000
総計	218,800,000	65,640,000	284,440,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学、物性 II

キーワード：電気四極子，超音波，強相関量子相，希土類化合物，カゴ状化合物，ラットリング，シリコン，原子空孔

1. 研究開始当初の背景

金属中に埋め込まれた磁性イオンの局在スピンは伝導電子と結合し、磁気双極子が完全に遮蔽された近藤 1 重項が現れる。電気抵抗極小の記念碑的な研究から 40 年が経過し、局在スピンの伝導電子との強結合による近

藤効果は、重い電子、異方的超伝導など強相関物理として発展を遂げて来た。実験的研究では帯磁率や中性子散乱など磁気測定が重要な役割を果たした。他方、磁気双極子をもたず、電荷揺らぎをもつ局在電子やイオンが、伝導電子と強く結合することで生ずる近藤効

果では電荷揺らぎが主役を演じ、スピンの主役を担う近藤効果では見られない強相関量子相の出現が期待されていた。理論的研究においても、電荷揺らぎと伝導電子との結合が示す四極子近藤効果や多チャンネル近藤効果は、未解決の問題となっていた。

シリコン結晶は半導体デバイス製造の基盤材料であり、チョクラスキー法で育成したウェハ用のシリコンの欠陥制御は長足の進歩を遂げてきた。しかし、これまで、格子から Si 原子 1 個が抜けた原子空孔の観測法が存在せず、原子空孔の制御技術が遅れていた。フラッシュメモリなどデバイス製造では微細化が進行し、究極の欠陥である原子空孔の存在濃度を評価し、デバイス製造に利用する技術の確立が強く要請されており、超音波を用いた原子空孔軌道の研究を開始した。

2. 研究の目的

本研究では、超音波が電気四極子を観測することに着目し、4f 電子軌道の四極子や局所振動のラットリング、シリコン原子空孔軌道など、物性物理の基本問題への挑戦を進めた。

(1) 非クラマース 2 重項

希土類 Pr 化合物の非クラマース 2 重項 Γ_3 基底は、電気四極子と磁気八極子を持つが、磁気双極子は存在しないため、電気四極子を観測できる超音波が威力を発揮する。PrPb₃ など Γ_3 基底系は低温で電気四極子秩序を示すが、PrMg₃ や PrAg₂In は低温で秩序を示さず、四極子近藤効果などの量子相が出現すると期待されていた。本研究では秩序を示さない PrMg₃ に焦点をあて、 Γ_3 基底の量子相の解明を目的とした。四極子感受率を観測できる超音波を実験手法の中心に据え、弾性定数の低温ソフト化と吸収係数の温度磁場依存性を研究した。PrMg₃ の Γ_3 - Γ_4 擬 5 重項の電気 16 極子を含めた多極子効果、および低温での超音波分散の発見を踏まえ、パイロニック状態の散逸量子状態や Γ_3 基底-格子振動結合の擬近藤状態の研究を進めた。

(2) ラットリング

カゴ状物質における熱励起によるラットリングは、局所振動が関与する新しい量子相として注目されている。本研究では、希土類カゴ状化合物 R₃Pd₂₀Ge₆ (R=La, Ce, Pr, Nd) に着目し、Pd₁₂Ge₆ からなるカゴ中の希土類イオンの局所振動が示すラットリングを解明するために、超音波分散の実験を推進した。これまで、充填スクッテルダイト化合物の重い電子超伝導体 PrO₅Sb₁₂ のラットリングが観測されており、本研究では充填スクッテルダイト RO₅Sb₁₂ および RFe₄Sb₁₂ (R=希土類イオン) の超音波分散の研究も進めた。超音波分散から緩和時間の温度依存性 $\tau = \tau_0 \exp(E/kT)$ を求め、特性時間 τ_0 と活性化エネルギー E の決定を進め、10K-30K の温度領域での超音波分

散の観測により複数個の超音波分散の解明を目指した。

(3) 原子空孔軌道

シリコンウェハは、半導体デバイス製造における重要な基盤材料であり、結晶育成は精緻を極め、人類が手にする最も理想的な結晶と考えられる。しかし、シリコンは 1412°C の高温で結晶化するので、わずかな結晶の乱れによる点欠陥が存在する。中でも格子からシリコン原子 1 個が抜けた原子空孔は、その存在が推定されていたが、実験的な確証は半導体物理半世紀にわたる難問であった。半導体産業で用いられるボロン添加シリコンにおける原子空孔軌道は、3 個の電子を収納した電荷状態 V が安定であり、巨大な電気四極子を持ち、磁性を帯びる。このため、ボロン添加シリコンの弾性定数は低温ソフト化と磁場依存性を示す。本研究ではシリコンウェハ企業の協力を得て、点欠陥制御を行った FZ および CZ シリコンの超音波計測により、原子空孔軌道の量子状態の解明を進めた。

3. 研究の方法

局在 4f 電子やイオン振動における E_g および T_{2g} 対称性をもつ量子状態は、電荷揺らぎ-電気四極子-を持ち、超音波歪みと結合するので、超音波計測で決まる弾性定数と超音波吸収係数は、四極子感受率の実数部と虚数部に対応している。(図 1) 他方、磁気双極子は帯磁率や中性子散乱で観測でき、電気双極子は誘電率や赤外線観測できる。本研究では、超音波計測を駆使し、Pr 化合物の局在 4f 電子、カゴ状化合物での局所振動、シリコン結晶中での原子空孔軌道などの「電荷揺らぎに由来する強相関量子相の研究」を進めた。

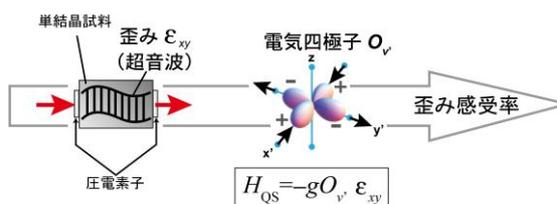


図 1 超音波歪みと電気四極子が結合し、歪み感受率を弾性定数で測定できる。

後藤輝孝 (研究代表者), 根本祐一 (研究分担者), 赤津光洋は (連携研究者) は, 新潟大学に構築してきた超音波位相差計測装置 (5 台), トップローディング希釈冷凍機 (20mK, 超伝導磁石 16T) とヘリウム 3 冷凍機 (超伝導磁石 10T) を用い低温超音波実験を進めた。また, 4 個の試料を同時に装着できる希釈冷凍機 (超伝導磁石 9T, ボア径 77mm) を用い, シリコン中の原子空孔軌道による低温ソフト化の観測を進めた。LiNbO₃ 圧電結晶, ZnO

スツパ薄膜、PVDF有機圧電薄膜などの高性能超音波素子を用いた。柳澤達也(連携研究者)は充填スクッテルダイト $\text{SmOs}_4\text{Sb}_{12}$ 、石井勲(連携研究者)は $\text{PrFe}_4\text{Sb}_{12}$ などの超音波分散と Pr 化合物の新規量子相の探索を進めた。金田寛(研究分担者)は、富士通研究所でのシリコン欠陥制御の研究を踏まえて、原子空孔を制御した種々のシリコン結晶を用いた原子空孔の研究を推進した。

北澤英明(研究分担者)と鈴木博之(研究分担者)は、物質・材料研究機構の楢岡鏡赤外線イメージ炉や高周波誘導炉などによる希土類化合物の純良単結晶育成を進めた。さらに、国内外の量子ビーム施設を用い、中性子線散乱や μ SR 実験によるカゴ状化合物のラットリング、Pr 化合物の四極子効果の研究を進めた。武田直也(連携研究者)は、低温磁場中での比熱計測装置を駆使し、カゴ状化合物の四極子秩序などの量子相の解明を進めた。

大野義章(連携研究者)、三本啓輔(連携研究者)は、動的平均場理論を駆使し、ラットリングを示す局所振動の非調和性、およびシリコン原子空孔軌道における強相関・強結合量子状態の理論研究の展開を進めた。家富洋(連携研究者)、鶴田健二(連携研究者)、小川貴史(連携研究者)は、従来の電子状態計算では、暗黙裏にシリコン中の原子空孔周りの対称性を破る形で電子を占有させていたが、実験結果に反することに着目した。本研究では、大規模計算によって、原子空孔がバンドギャップ中に縮退した電子状態をもたらす状況の解明を目指した。

4. 研究成果

(1)非クラマース 2 重項

希土類化合物 PrMg_3 は 1000°C 近い融点を有し、蒸気圧の高いマグネシウム元素を含むため、モリブデン等の高融点金属坩堝を用いて原料を密封したブリッジマン法により単結晶育成を行った。Heusler 型結晶に特有の site-disorder を評価するため、X 線 4 軸回折計による単結晶構造解析を行い、育成した PrMg_3 結晶の純良性を確認した。 PrMg_3 の弾性定数 $(C_{11}-C_{12})/2$ および C_{11} が降温でソフト化し、約 25 K で極小を示したが、非クラマース 2 重項 Γ_3 基底の電気四極子 Q と超音波歪みとの結合による四極子感受率では説明できず、非クラマース 2 重項 (Γ_3) と第一励起 3 重項 (Γ_4) による擬 5 重項の電気 16 極子を考慮した多極子感受率による解析を行った。同様に、 Γ_3 - Γ_4 擬 5 重項を持つ PrPb_3 と PrAg_2In の $(C_{11}-C_{12})/2$ が示す極小も多極子感受率で説明した。

PrMg_3 は、非クラマース 2 重項が基底であるが、極低温まで秩序相が見出されておらず、比熱のブロードなピークや磁化率異常などを示し、非クラマース 2 重項基底が伝導電子によって遮蔽された四極子近藤状態が出現

していると考えられてきた。しかし、希釈冷凍機を用いた低温超音波計測により、500 mK 以下で PrMg_3 の $(C_{11}-C_{12})/2$ における超音波分散を観測することで、非クラマース 2 重項の四極子が対称性を同じくする格子振動と結合したパイロニック状態-散逸量子状態-を形成していることを見出した。(図 2) 極低温では格子結合による擬近藤一重項が実現していると結論し、従来からの四極近藤効果とは異なるシナリオを提起した。

PrMg_3 、 PrAg_2In のミュオンスピン共鳴では、低温に向けてミュオン緩和率の増加

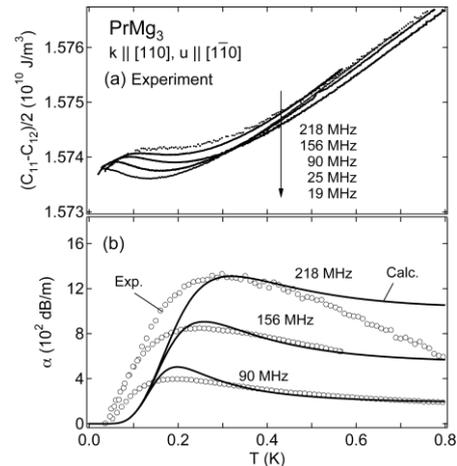


図 2 PrMg_3 の超音波分散、弾性定数の実験(a)、超音波吸収の実験と理論(b)

を見だし、ミュオンは超微細結合で増強された核磁気モーメントからの内場の揺らぎを観測しており、その緩和率の増大が、比熱や弾性定数等の異常が観測される温度域まで増加して止まることを見だし、 μ SR で非クラマース縮退系における多極子の揺らぎを観測した。 PrMg_3 、 PrPb_3 の中性子非弾性散乱実験では、Pr サイトは一つにも関わらず、結晶場励起スペクトルがダブルピーク構造を示した。一つのピークは分散が大きくシャープで強度が強く、もう一つは分散が小さくブロードで強度が弱い。理論的な解析により、非クラマース 2 重項基底の多極子相互作用により特異なダブルピーク構造が出現すると理解できた。

(2)ラットリング

本研究では、ラットリングを示す $\text{R}_3\text{Pd}_{20}\text{Ge}_6$ と類似物質の $\text{R}_3\text{Pd}_{20}\text{Si}_6$ に着目し、物質・材料研究機構の楢岡鏡赤外線イメージ炉により純良単結晶を育成した。 $\text{R}_3\text{Pd}_{20}\text{Ge}_6$ の希土類イオンは、Pd と X=Si, Ge に囲まれた 4a サイトと、Pdのみで構成された 8c サイトからなり、いずれも立方晶の対称性を持つ。ラットリングは 4a サイトで起きる。さらに、二つのサイトの希土類イオンの 4f 電子の基底状態はいずれも軌道縮退しており、低温になると弾性定数のソフト化が見られ、四極子秩序が起

きる。本研究の超音波実験では、四極子とラットリングとの競合を注意深く解析した。

ラットリングを観測するため $\text{La}_3\text{Pd}_{20}\text{Ge}_6$, $\text{Ce}_3\text{Pd}_{20}\text{Ge}_6$ に加えて $\text{Pr}_3\text{Pd}_{20}\text{Ge}_6$ に焦点を当てた。 $\text{Pr}_3\text{Pd}_{20}\text{Ge}_6$ の弾性定数には温度の逆数 $1/T$ に比例したソフト化を観測した。特に、 C_{11} , $(C_{11}-C_{12})/2$ では $T_{Q1}=0.25$ K に異常が見られ、 C_{44} は $T_{Q2}=0.06$ K に相転移を伴う異常と II 相 ($T < T_{Q1}$) の磁気相図には顕著な磁気異方性を見出し、四極子感受率を用いた解析から II 相は $8c$ サイトの Γ_3 二重項による反強四極子秩序相であり、III 相 ($T < T_{Q2}$) は $4a$ サイトの Γ_5 三重項による強四極子秩序相と結論し、 Γ_3 基底および Γ_5 基底の四極子秩序を見出した。

横波超音波 C_{44} モードに、低温 15 K 付近とより高温の 25 K 付近にラットリングによる 2 つの超音波分散を見だし、アレニウス型の緩和時間 $\tau = \tau_0 \exp(E/k_B T)$ を持つデバイ分散で再現でき、緩和時間と活性化エネルギーは低温側と高温側でそれぞれ $\tau_{0L} = 4.2 \times 10^{-11}$ s, $E_L = 102$ K, 及び $\tau_{0H} = 1.1 \times 10^{-11}$ s, $E_H = 198$ K と得られた。 $\text{Nd}_3\text{Pd}_{20}\text{Ge}_6$ ではラットリングによる超音波分散が 3 カ所で見出され、ラットリングの発現機構に新しい知見を加えた。

超音波分散によってラットリングを最初に観測したのは重い電子超伝導を示す充填スクッテルダイト $\text{PrO}_5\text{Sb}_{12}$ であった。本研究では強磁性物質 $\text{NdO}_5\text{Sb}_{12}$ において 2 つの超音波分散を観測した。さらに、磁場に鈍感な重い電子系として注目されている $\text{SmO}_5\text{Sb}_{12}$ に 2 つの超音波分散を観測し、その超音波分散が磁場の影響を受けないことを明らかにし、磁場に鈍感な重い電子系である $\text{SmO}_5\text{Sb}_{12}$ が、磁場依存しない局所非調和振動の自由度を有することを実験的に示した。さらに、充填スクッテルダイト $\text{RF}_e\text{Sb}_{12}$ (R : 希土類) のラットリングに起因した超音波分散や低温ソフト化を見出した。同系物質 $\text{RO}_5\text{Sb}_{12}$ や $\text{RRu}_4\text{Sb}_{12}$ の超音波実験結果との比較から、これらの弾性異常はカゴの大きさによらないことを明らかにした。

ラットリングの理論的研究も進展した。電子間のクーロン相互作用に加えて、局所フォノンと f 電子 (あるいは伝導電子) との電子フォノン相互作用を考慮した周期的アンダーソン-ホルスタイン模型 (あるいはハバード-ホルスタイン模型) の強相関・強結合量子状態を、動的平均場理論を用いて調べた。

(3) 原子空孔軌道

我が国には素材産業のトップの座にある複数のシリコンウェハメーカーが存在し、世界シェアの 70% を占めている。ウェハメーカーでのシリコン結晶育成は精緻を極めており、大学研究室での育成は不可能であり、最高度に欠陥制御を施したボロン添加シリコン結晶の試料はウェハメーカーから提供を

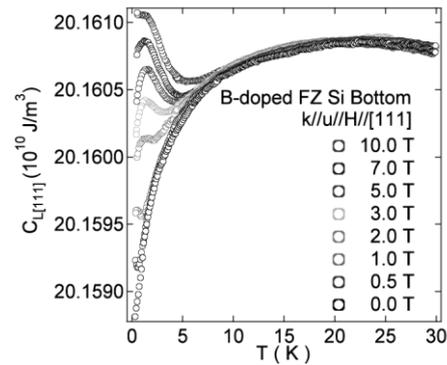


図 3 ボロン添加 FZ シリコンの弾性定数のゼロ磁場および磁場中での温度依存性。

受けた。本研究での超音波計測による原子空孔軌道の研究成果を、半導体デバイス製造で用いられるシリコンウェハ中の原子空孔濃度評価を進める革新的半導体技術へ実用化することが重要である。このため、新潟県に開発製造拠点をもつウェハメーカーのコバレントマテリアル社および、我が国における半導体デバイス製造のトップメーカーである東芝セミコンダクター社との産学連携を推進した。

希釈冷凍機を用いて、ボロン添加シリコン結晶の超音波測定を行い、弾性定数の低温ソフト化とその磁場依存性を詳しく研究した。シリコン原子空孔の周りには共有結合起源のダングリングボンドによる原子空孔軌道が形成され、その軌道半径は約 10 \AA と大きく広がっており、軌道半径の 2 乗に比例して増大する電気四極子は巨大化し、超音波歪みとの結合定数は極めて大きくなる。ボロン添加シリコンの原子空孔軌道は 3 個の電子を持った電荷状態 V^+ を形成し、その原子空孔軌道が磁性と電気四極子を有する。スピン軌道相互作用により原子空孔軌道の基底は 4 重項となる。弾性定数は温度の逆数に比例する四極子感受率 $\chi \sim 1/T$ で表される低温ソフト化 $C = C^0 - N g^2 \chi / (1 - g^2 \chi)$ を示す。このため、原子空孔の濃度 N は極めて少ないにも関わらず、結合定数 g が大きいので低温ソフト化の観測が可能となる。

ボロン添加 FZ シリコンの縦波弾性定数 $C_{L[111]} = C_b + (4/3) C_{44}$ のソフト化と磁場方向に対する異方性の実験を進めた。 $C_{L[111]}$ に現れるソフト化は 3 個の電気四極子 Q_{yz} , Q_{zx} , Q_{xy} の和の感受率として理解でき、電荷状態 V^+ の原子空孔軌道が Γ_8 四重項基底であることを示した。(図 3)

さらに、単独の四極子 Q_{zx} を観測することのできる横波弾性定数 C_{44} の磁場中測定を行った。 C_{44} は 5 K ~ 30 K にかけて 1.7×10^{-4} のソフト化を示した。さらに、 C_{44} の磁場中測定を 3 通り (k_x, u_x, H_x), (k_y, u_y, H_y), (k_z, u_z, H_z),

u_y, H_z) の超音波モードで行い、全ての配置で異なる振る舞いを観測し、横波超音波の誘起する回転 $\omega_{zx} = \omega_{xz}$ が弾性定数の磁場依存性に寄与することを確認した。さらに、横波弾性定数 $(C_{11}-C_{12})/2$ の測定を行ったところ、1.5 K から 20 mK にかけて 1.6×10^{-4} のソフト化を観測した。これらの結果は、ボロン添加シリコンの原子空孔軌道の基底が四重項 Γ_8 であることを示している。

原子空孔軌道の量子状態の解明が重要であり、大野は動的平均場理論を用い、これまでの理論計算では実現しないと考えられていた原子空孔の V 状態が、原子空孔軌道と動的ヤーン・テラーフォノンとの強結合効果により安定化され実現することを示した。この結果は、ボロン添加シリコンの超音波実験と一致している。さらに、シリコン中の原子空孔軌道の広がりが 20 \AA にも達し、その結果、原子空孔が巨大な有効四極子を持つことを示した。

家富、鶴田、小川は大きく広がった原子空孔軌道の大規模シミュレーションを進め、 T_d 対称の原子空孔周囲に局在した電子軌道について、その局在性と電気四極子の大きさの定量評価を行った。粒子数が 63, 215, 511 個に対応したセルサイズの系の結果を比較したところ、電子軌道は 10 \AA 程度の広がりをもつことを明らかにした。電気四極子の大きさはセルサイズに大きく依存することを確認し、 Γ_5 対称性の電気四極子の値が Γ_3 対称性の値より一桁程度大きいことを示した。この計算結果は、超音波実験において C_{44} のソフト化の大きさが $(C_{11}-C_{12})/2$ に比べて大きいという観測結果と一致した。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 69 件)

- ① Heavy-Electron Formation and Polaron-Bipolaron Transition in the Anharmonic Holstein Model, Takahiro Fuse, Yoshiaki Ōno, and Takashi Hotta, *J. Phys. Soc. Jpn.* 81 (2012) 044701/1-11.
- ② Dissipation In Non-Kramers Doublet of PrMg_3 , Koji Araki, Terutaka Goto, Keisuke Mitsumoto, Yuichi Nemoto, Mitsuhiro Akatsu, Hiroyuki S. Suzuki, Hiroshi Tanida, Shigeru Takagi, Shadi Yasin, Sergei Zherlitsyn, Joachim Wosnitza, *J. Phys. Soc. Jpn.* 81 (2012) 023710 1-4.
- ③ Crystal Field Level Diagrams at the Pr Sites ($8c$) and ($4a$) in the Clathrate Compound $\text{Pr}_3\text{Pd}_{20}\text{Si}_6$, Andreas Dönni, Hideaki Kitazawa, Thierry Stässlé, Lukas Keller, Masaaki Matsuda, Kazuhisa Kakurai, Genki Ano, Mitsuhiro Akatsu, Yuichi Nemoto, Terutaka Goto, *Journal of the Physical Society of Japan* 80, 0447151 (2011).
- ④ Quadrupole Effects of Layered Iron Pnictide Superconductor $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.9}\text{Co}_{0.1})_2\text{As}_2$, Shunichi Tatematsu, and Masatoshi Sato, Terutaka Goto, Ryosuke Kurihara, Koji Araki, Keisuke Mitsumoto, Mitsuhiro Akatsu, Yuichi Nemoto, *J. Phys. Soc. Jpn.* 80 (2011) 073702. "Papers of Editors' Choice"
- ⑤ Antiferro-quadrupolar Ordering at the Lowest Temperature and Anisotropic Magnetic Field-Temperature Phase Diagram in the Cage Compound $\text{PrIr}_2\text{Zn}_{20}$, I. Ishii, H. Muneshige, Y. Suetomi, T.K. Fujita, T. Onimaru, K.T. Matsumoto, T. Takabatake, K. Araki, M. Akatsu, Y. Nemoto, T. Goto and T. Suzuki, *J. Phys. Soc. Jpn.* 80 (2011) 093601 1-4.
- ⑥ Quadrupole effects of vacancy orbital in boron-doped silicon, Shotaro BABA, Terutaka GOTO, Yuta NAGAI, Mitsuhiro AKATSU, Hajime WATANABE, Keisuke MITSUMOTO, Takafumi OGAWA, Yuichi NEMOTO and Hiroshi YAMADA-KANETA: *J. Phys. Soc. Jpn.* 80 (2011) 094601
- ⑦ Multipole effects of Γ_3 doublet- Γ_4 triplet states in PrMg_3 , Koji Araki, Yuichi Nemoto, Mitsuhiro Akatsu, Shinya Jumonji, and Terutaka Goto, Hiroyuki S. Suzuki, Hiroshi Tanida, Shigeru Takagi: *Phys. Rev. B* 84, 045110 (2011)
- ⑧ An abinitio analysis of electronic states associated with a silicon vacancy in cubic symmetry, T. Ogawa, K. Tsuruta, and H. Iyetomi, *Solid State Communications*, vol. 151, pp. 1605-1608 (2011).
- ⑨ Magnetic-Field-Independent Ultrasonic Dispersions due to Rattling in the Magnetically Robust Heavy Fermion System $\text{SmOs}_4\text{Sb}_{12}$, Tatsuya Yanagisawa, Hitoshi Saito, Hiroyuki Hidaka, Hiroshi Amitsuka, Koji Araki, Mitsuhiro Akatsu, Yuichi Nemoto, Terutaka Goto, Pei-Chun Ho, Ryan E. Baumbach and M. Brian Maple, *J. Phys. Soc. Jpn.* 80, 043601 (2011) [4 pages].
- ⑩ Ultrasonic Measurements on the Cage-Structured Clathrate Compound $\text{U}_3\text{Pd}_{20}\text{Si}_6$, Tatsuya Yanagisawa, Naoyuki Tateiwa, Hiroshi Amitsuka, Taichi Mayama, Hitoshi Saito, Hiroyuki Hidaka, Hiroshi Amitsuka, Yoshinori Haga, Yuichi Nemoto and Terutaka Goto, *J. Phys. Soc. Jpn.* 80 SA105 (2011).
- ⑪ Low Temperature Magnetic Properties of

- Ce₃Pd₂₀Si₆, Hiroyuki Mitamura, Takashi Tayama, Takaaki Sakakibara, Seiji Tsuduku, Genki Ano, Isao Ishii, Mitsuhiro Akatsu, Yuichi Nemoto, Terutaka Goto, Akiko Kikkawa and Hideaki Kitazawa, J. Phys. Soc. Japan **79**, 074712 (2010).
- ⑫ Quadrupole Order in Clathrate Compound Pr₃Pd₂₀Si₆, Mitsuhiro Akatsu, Seiji Tsuduku, Yuichi Nemoto, Terutaka Goto, Isao Ishii, K. Mitsumoto, Genki Ano, H. Kobayashi, Naoya Takeda, Andreas Dönni and Hideaki Kitazawa, Journal of Physics: Conference Series 200, 012121 (2010).
- ⑬ Effect of the spin-orbit interaction and the electron phonon coupling on the electronic state in a silicon vacancy, Takemi Yamada, Youichi Yamakawa and Yoshiaki Ōno, Journal of Physics: Conference Series, 200 (2010) 012228/1-4.
- ⑭ Acoustic Faraday effect in Tb₃Ga₅O₁₂, A. Sytcheva, U. Löw, S. Yasin, J. Wosnitza, S. Zherlitsyn, P. Thalmeier, T. Goto, P. Wyder, and B. Lüthi, Phys. Rev. B **81**, (2010) 214415.
- ⑮ Transition at Finite Temperature in the Holstein Model, Takahiro Fuse and Yoshiaki Ōno, First Order Bipolaronic Transition Journal of the Physical Society of Japan, **79** (2010) 093702/1-4.
- ⑯ Orbital Order, Structural Transition and Superconductivity in Iron Pnictides, Yuki Yanagi, Youichi Yamakawa, Naoko Adachi and Yoshiaki Ōno, Journal of the Physical Society of Japan, **79** (2010) 123707/1-4. "Papers of Editors' Choice"
- ⑰ Quadrupole Ordering in Clathrate Compound Ce₃Pd₂₀Si₆, Terutaka Goto, Tomoyuki Watanabe, Seiji Tsuduku, Haruki Kobayashi, Yuichi Nemoto, Tatsuya Yanagisawa, Mitsuhiro Akatsu, Genki Ano, Osamu Suzuki, Naoya Takeda, Andreas Dönni, Hideaki Kitazawa: J. Phys. Soc. Jpn. (2009)78 024716 1-9.
- ⑱ Ultrasonic Dispersion in the Filled Skutterudite CeFe₄Sb₁₂, I. Ishii, T. Suzuki, T. Fujita, I. Mori, H. Sugawara, M. Yoshizawa, Y. Nemoto and T. Goto, J. Phys.: Conf. Ser. **150** (2009) 042071 1-4.
- ⑲ Cluster Model Calculations for Charge States of a Silicon Vacancy, Youichi Yamakawa and Yoshiaki Ōno, Journal of Physics: Conference Series, **150** (2009) 042233/1-4.
- ⑳ Elastic Softening due to a Vacancy in Silicon Crystal, Journal of the Physical Society of Japan, Takemi Yamada, Youichi Yamakawa and Yoshiaki Ōno, Quadrupole Susceptibility and **78** (2009) 054702/1-6.
- ㉑ Magneto -elastic properties of Tb₃Ga₅O₁₂ (TGG), K. Araki, T. Goto, Y. Nemoto, T. Yanagisawa, and B. Lüthi : Eur. Phys. J. B **61** (2008) 257-259.
- ㉒ Ultrasonic investigation of field-dependent ordered phases in the filled skutterudite compound PrOs₄As₁₂, T. Yanagisawa, W. M. Yuhasz, T. A. Sayles, P-C. Ho, M. B. Maple, H. Watanabe, Y. Yasumoto, Y. Nemoto, T. Goto, Z. Henkie, A. Pietraszko: Phys. Rev. B **77** (2008) 094435 1-7.
- ㉓ Rattling in crathrate compounds of ROs₄Sb₁₂ and R₃Pd₂₀Ge₆, Yuichi Nemoto, Tatsuya Yanagisawa, Yuri Yasumoto, Haruki Kobayashi, Akio Yamaguchi, Seiji Tsuduku, Terutaka Goto, Naoya Takeda, Akira Ochiai, Hitoshi Sugawara, Hideyuki Sato, Hideaki Kitazawa: J. Phys. Soc. Jpn. **77** (2008) Suppl. A, 153-158.
- ㉔ Thermodynamic and transport studies of the ferromagnetic filled skutterudite compound PrFe₄As₁₂, T. A. Sayles, W. M. Yuhasz, J. Paglione, T. Yanagisawa, J. R. Jeffries, M. B. Maple, Z. Henkie, A. Pietraszko, T. Cichorek, R. Wawryk, Y. Nemoto, T. Goto, Phys. Rev. B **77** (2008) 144432 1-12.
- ㉕ Vacancies in as-grown CZ silicon crystals observed by low-temperature ultrasonic measurements, Hiroshi Yamada-Kaneta, Terutaka Goto, Yuichi Nemoto, Koji Sato, Masatoshi Hikin, Yasuhiro Saito, Shintaro Nakamura: J. Mater. Sci.: Mater Electron (2008) 19:S19-S23
- ㉖ Ultrasonic investigation of off-center rattling in filled skutterudite compound NdOs₄Sb₁₂, Tatsuya Yanagisawa, Pei-Chun Ho, William M. Yuhasz, M. Brian Maple, Yuri Yasumoto, Hiromu Watanabe, Yuichi Nemoto, Terutaka Goto: J. Phys. Soc. Jpn. **77** (2008) 074607 1-5.
- ㉗ Electric quadrupole effect in clathrate compound Pr₃Pd₂₀Si₆, Hiroki Kobayashi, Seiji Tsuduku, Osamu Suzuki, T. Yanagisawa, Yuichi Nemoto, Terutaka Goto, A. Andreas Dönni, Hideaki Kitazawa, Naoya Takeda, J. Phys. Soc. Jpn. **77**, Suppl. A., 263 (2008).
- ㉘ Effects of Electron Correlation and Electron-phonon Coupling on the quantum state of a Silicon Vacancy, Youichi Yamakawa, Keisuke Mitsumoto and Yoshiaki Ōno, Journal of the Physical Society of Japan **77** (2008) Supplement A, 266-268.
- ㉙ Off-Center Rattling and Tunneling in Filled Skutterudite LaOs₄Sb₁₂, Yuri Yasumoto, Akio Yamaguchi, Tatsuya Yanagisawa, Yuichi Nemoto, Terutaka Goto, and Akira Ochiai, J. Phys. Soc. Jpn. **77** (2008) Supplement A, pp.

242-244.

- ③⑩ Quadrupole Effect in the Filled Skutterudite Compound $\text{PrOs}_4\text{As}_{12}$, T. Yanagisawa, Y. Yasumoto, Y. Nemoto, T. Goto, W. M. Yuhasz, P.-C. Ho, M. B. Maple, Z. Henkie and A. Pietraszko, J. Phys. Soc. Jpn. **77** (2008) Supplement A, pp. 225-228.
- ③⑪ Ultrasonic study of rattling and tunneling in clathrate compounds $\text{R}_3\text{Pd}_{20}\text{X}_6$ (R=La, Ce; X=Si, Ge), Tomoyuki Watanabe, Takashi Yamaguchi, Yuichi Nemoto, Terutaka Goto, Naoya Takeda, Osamu Suzuki and Hideaki Kitazawa, J. Mag. and Mag. Mat. **310**, (2007) 280.
- ③⑫ “Novel Ultrasonic Tool for Vacancy Observation in Crystalline Silicon”, ECS Trans. **11** (3) (2007) 187-194., Terutaka Goto, Hiroshi Yamada-Kaneta, Masatoshi Hikin, Koji Sato, Yuichi Nemoto, Shintaro Nakamura
- ③⑬ Vacancies in CZ silicon crystals observed by low-temperature ultrasonic measurements, Hiroshi Yamada-Kaneta, Terutaka Goto, Yuichi Nemoto, Koji Sato, Masatoshi Hikin, Yasuhito Saito, Shintaro Nakamura: Physica B (2007) 401-402 138-143.
- ③⑭ Nonadiabatic interaction between electrons and Jahn-Teller distortions in a silicon vacancy, Yuichi Yamakawa, Keisuke Mitsumoto and Yoshiaki Ōno, Journal of Magnetism and Magnetic Materials **310** (2007) 993-995.
- ③⑮ Ultrasonic investigations of antiferro-quadrupole ordering in $\text{Pr}_{1-x}\text{La}_x\text{Pb}_3$ (x=0, 0.02), Motoi Fukuura, Shinya Jumonji, Yuichi Nemoto, Terutaka Goto, Hiroyuki S. Suzuki, Toshiro Sakakibara, J. Magn. Magn. Mater. **310** (2007) 801-803.
- ③⑯ Quadrupolar Kondo Effect in Non-Kramers Doublet System PrInAg_2 , Osamu Suzuki, Hiroyuki S. Suzuki, Hideaki Kitazawa, Giyuu Kido, T. Ueno, Takashi Yamaguchi, Yuichi Nemoto and Terutaka Goto, J. Phys. Soc. Jpn. **71**, (2006) 013704.
- ③⑰ Observation of Low-Temperature Elastic Softening due to Vacancy in Crystalline Silicon, Terutaka Goto, Hiroshi Yamada Kaneta, Yasuhito Saito, Yuichi Nemoto, Koji Sato, Koichi Kakimoto, Shintaro Nakamura, J. Phys. Soc. Jpn. **75** (2006) 044602 1-6.
- ③⑱ Magnetic properties of clathrate-like compound $\text{Pr}_3\text{Pd}_{20}\text{Ge}_6$, Osamu Suzuki, Hideaki Kitazawa, Giyuu Kido, Takashi Yamaguchi, Yuichi Nemoto, Terutaka Goto, Journal of Alloys and Compounds **408-412**, (2006) 107.

[学会発表] (計 154 件)

[産業財産権]

超音波によるシリコン中の原子空孔の直接観測は、半導体産業で用いられているシリコンウェハの検査技術として実用化が可能であるため、知的財産権の確保は新潟大学のみならず我が国半導体産業にとっても重要課題である。これまで、海外特許も含めると総計 20 件の特許を出願 (うち取得 3 件) をしており、知的財産の確保に努めている。

○出願状況 (計 20 件)

○取得状況 (計 3 件)

[その他]

産業技術への展開に関連して、経済産業省「ナノエレクトロニクス半導体新材料・新構造技術開発-うち新材料・新構造ナノ電子デバイス」委託事業「超音波による原子空孔濃度評価事業」(平成 19-23 年度) および科学技術振興機構独創的シーズ展開事業大学発ベンチャー創出推進「原子空孔受託評価及び評価装置製作ベンチャー企業の創出」(平成 20-22 年度)を推進している。

新聞発表

特に、新潟大学では低温・磁場中での超音波位相差計測を開発し、世界で最初にシリコン結晶中の原子空孔軌道の観測に成功した意義は極めて大きく、J. Phys. Soc. Jpn. **75** (2006) 044602. に掲載され注目論文となった。さらに、新潟日報文化賞の受賞、国内主要な欧米業界誌の記事掲載など国内外で注目を浴びた。

6. 研究組織

(1) 研究代表者

後藤 輝孝 (GOTO TERUTAKA)
新潟大学・自然科学系・教授
研究者番号：60134053

(2) 研究分担者

根本 祐一 (NEMOTO YUICHI)
新潟大学・自然科学系・准教授
研究者番号：10303174
研究分担者
北澤 英明 (KITAZAWA HIDEAKI)
物質・材料研究機構・量子ビームセンター・ゲル
-プリーター
研究者番号：00195257
研究分担者
鈴木 博之 (SUZUKI Hiroyuki)
物質・材料研究機構・量子ビームセンター・
主幹研究員
研究者番号：60354370
研究分担者
金田 寛 (KANETA HIROSHI)
新潟大学・研究推進機構超域学術院・教授
研究者番号：30418131

(3) 連携研究者

柳澤 達也 (YANAGISAWA TATSUYA)
北海道大学・大学院理学研究院・准教授
研究者番号：10456353

連携研究者

家富 洋 (IYETOMI HIROSHI)
新潟大学・自然科学系・教授
研究者番号：20168090

連携研究者

大野 義章 (ONO YOSHIAKI)
新潟大学・自然科学系・教授
研究者番号：40221832

連携研究者

武田 直也 (TAKEDA NAOYA)
新潟大学・自然科学系・教授
研究者番号：80242171

連携研究者

鶴田 健二 (TSURUTA KENJI)
岡山大学・自然科学研究科・教授
研究者番号：40221832

連携研究者

酒井 治 (SAKAI OSAMU)
物質・材料研究機構・量子ビームセンター・特別研究員

研究者番号：60005957

連携研究者

赤津 光洋 (AKATSU MITSUHIRO)
新潟大学・自然科学系・特任助教
研究者番号：10431876

連携研究者

石井 勲 (ISHII ISAMU)
広島大学・先端物質科学研究科任師
研究者番号：20444713

連携研究者

三本 啓輔 (MITSUMOTO KEISUKE)
新潟大学・自然科学系・特任助教
研究者番号：50515567