

# キログラムの実現に向けたシリコンの格子定数均一性評価とその応用 Homogeneity Characterization of Lattice Spacing of Silicon for the Realization of Kilogram and its Application

早稲田篤<sup>1,\*</sup>, 藤本弘之<sup>1</sup>, 張小威<sup>2</sup>

<sup>1</sup>産業技術総合研究所 計測標準研究部門, 〒305-8563 つくば市梅園 1-1-1 中央第 3

<sup>2</sup>中国科学院高能物理研究所 同步輻射, 100049 中国北京市玉泉路 19 号乙

Atsushi Waseda<sup>1,\*</sup> Hiroyuki Fujimoto<sup>1</sup> and Zhang Xiaowei<sup>2</sup>

<sup>1</sup>AIST/NMIJ, 1-1-1 Umezono, Tsukuba, 305-8563, Japan

<sup>2</sup>IHEP/BSRF, Yuquan Road 19B, Shijingshan District, Beijing 100049, China

## 1 はじめに

2014 年に開催されたメートル条約の最高議決機関である国際度量衡総会では、国際単位系 (SI) の将来の改定については決議 1 としておおむね下記の通り決議された。

- 2011 年の第 24 回 CGPM で採択した方針のとおり、質量の単位キログラムはプランク定数  $h$ 、物質の単位モルはアボガドロ定数  $N_A$ 、電流の単位アンペアは電気素量  $e$ 、熱力学温度の単位ケルビンにボルツマン定数  $k$  に基づきそれぞれ再定義する。
- 2018 年に予定される第 26 回 CGPM で、新定義に移行できるよう必要な作業を関係機関 (BIPM、各国 NMI、等) 完遂するよう奨励する。

質量の再定義に向け、国際アボガドロプロジェクト (IAC project) では、<sup>28</sup>Si 濃縮単結晶を用いた、X 線結晶密度 (X-Ray Crystal Density, XRCD) 法によるアボガドロ定数の決定を行ってきた [1, 2]。2015 年には質量の単位キログラムの再定義に必要な相対不確かさ  $2 \times 10^{-8}$  で、アボガドロ定数を決定している [2]。

XRCD 法では単結晶シリコンの単位モル体積当たりの原子の数を数えることにより、アボガドロ数を決定する。アボガドロ定数  $N_A$  は単結晶シリコンの格子定数  $d_{220}$  と密度  $\rho$ 、平均モル質量  $M$  の絶対測定から以下のように決められる。

$$N_A = \frac{8(M/\rho)}{a^3} = \frac{M/\rho}{\sqrt{8}d_{220}^3}$$

さらに、このアボガドロ定数決定では、用いる単結晶シリコンの結晶評価として、モル質量と密度、格子定数のインゴット内一様性評価を行う必要がある。

格子定数  $d_{220}$  の絶対測定はレーザー干渉計を組み合わせた X 線干渉計が用いられる [3]。二結晶間比較、分布測定等の格子定数の相対測定 ( $\Delta d/d$ ) はこれまで、2 結晶回折を用いた X 線格子比較器が用い

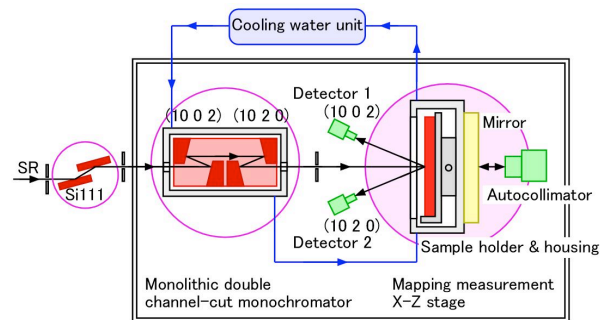


図 1: 装置の概略図

られてきた。一方、KEK-PF にて開発した、結晶内の等価な指数面の同時反射を活用した自己参照型 X 線格子比較器 (Self-Referenced Lattice Comparator, SRLC) は、短時間で結晶面内の格子面間隔分布の測定を行い、単結晶シリコンの結晶評価を行うことができる [4, 5]。

今回、ドイツ PTB で新たに引き上げた同位体濃縮 <sup>28</sup>Si 単結晶について、SRLC を用いて格子定数の分布測定を行った。さらに、以前の同位体濃縮 <sup>28</sup>Si 単結晶 AVO28 との格子定数の比較測定を行った。

## 2 自己参照型 X 線格子比較器

KEK-PF にて開発してきた単結晶シリコンの格子面間隔分布評価の測定手法は、放射光の強度と指向性および波長選択性を生かし、結晶内の等価な指数面の同時反射を活用した自己参照型 X 線格子比較法で、高速かつ高精度、高感度に、大面積の結晶に対してマッピング測定を行うものである (図 1)。

結晶に対して試料結晶中の法線方向の特定な二つの等価な面指数を用いると、モノクロメータで単色化された X 線は、結晶の回転がわずか 10 秒程度の角度範囲で二つの X 線回折反射がほぼ同時に得られる。二つの反射角度位置の差  $\gamma$  が 0.004 秒程度に検出できれば、回折面の面間隔分解能が  $1 \times 10^{-9}$  の不確かさで求められることに対応する。

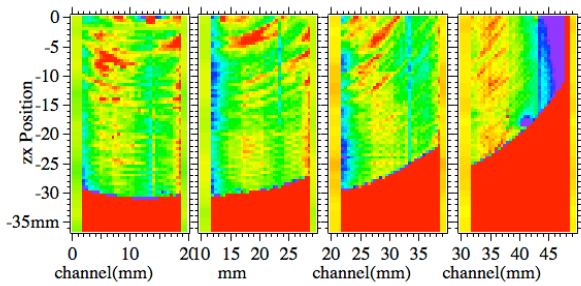


図 2 : Avogadro 結晶 9.12 の格子定数分布

装置の高度化では、一次元マルチディテクタを用いた予備実験を行った。一次元ディテクタ 0.5 mm × 40 点 (20 mm) を用いスキャンした。図 2 に Avogadro 結晶の 9.R1 についてのスキャン結果を示す。これまでの測定結果と同様の渦巻き状の格子定数分布が測定されている。MDCM の一様性から、有効な間隔は 10 mm であった。これにより、測定時間は 10 倍程度速くなった。

### 3 結晶内の格子定数分布測定

ドイツ PTB で新たに作製した同位体濃縮単結晶 <sup>28</sup>Si から切り出した試料 M.2 について、結晶内格子定数分布測定を行った。今回の測定での定点での標準偏差は  $3.8 \times 10^{-9}$  であった。測定は新結晶試料 (M.2) と前回の結晶試料 (4.12) の測定を交互に二回ずつマッピングを行った。マッピング分布 (分布の標準偏差) は、4.12 が  $9.6 \times 10^{-9}$  と  $7.3 \times 10^{-9}$  で、新結晶 M.2 が  $8.3 \times 10^{-9}$  と  $8.9 \times 10^{-9}$  であった。図 3 に M.2 の格子定数分布を示す。結晶 M.2 の一様性は 4.12 と同程度であり、この新しい結晶も格子定数を決定するのに適していることが確認できた。

### 4 結晶間の格子定数比較測定

二結晶間の格子定数の相対差は、それぞれのマッピングデータの平均の差を比較することによって評価できる。それぞれ異なる結晶のマッピングデータの平均を比較するために、測定では注意深く結晶をセッティングして行った。図 4 にそれぞれ SRLC 測

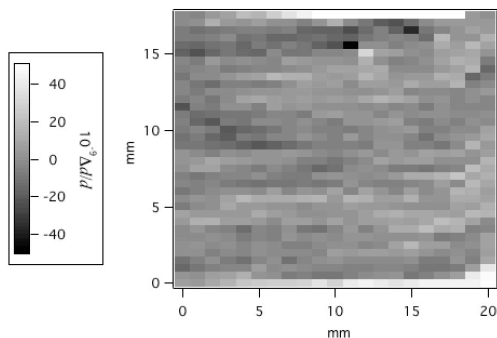


図 3 : M.2 の格子定数分布

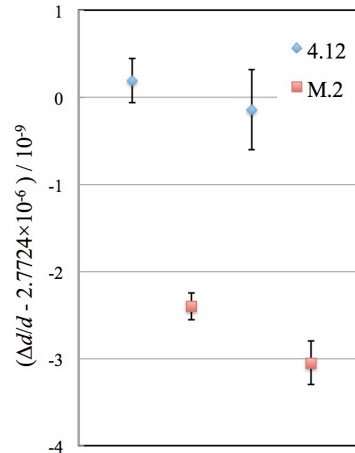


図 4 : SRLC 測定で得られたマッピングデータの平均値

定で得られたマッピングデータの平均値を示す。繰り返し測定の再現性が良いことが確認できる。新結晶 M.2 と旧結晶 4.12 の格子定数の相対差は以下ようになった。

$$\begin{aligned} \Delta d_{M.2,4.12}/d &= (d(M.2) - d(4.12)) / d(4.12) \\ &= -2.6 (1.9) \times 10^{-9}. \end{aligned}$$

この結果は、新結晶を用いたアボガドロ定数決定に用いられた。[6]

### 4 まとめ

自己参照型 X 線格子比較器の改良として、一次元マルチディテクタを用いた予備実験を行い、測定時間が 1/10 程度と大幅な改善ができることを確認した。アボガドロ定数決定用に新たに作成された <sup>28</sup>Si 同位体濃縮 <sup>28</sup>Si 単結晶について、自己参照型 X 線格子比較器を用いて、格子定数分布の分布評価を行った。結晶は格子定数分布も小さく、十分小さい不確かさで格子定数の絶対値決定が可能であることを確かめた。また、これまで測定してきた AVO28 結晶と格子定数の比較測定を行うことにより、新しい結晶の格子定数を決定した。この結果は、新結晶を用いたアボガドロ定数決定に用いられた。

### 参考文献

- [1] B. Andreas et al., *Metrologia* **48**, S1 (2011).
- [2] Y. Azuma, et al., *Metrologia* **52**, 360 (2015).
- [3] G. Mana, et al., *J. Phys. Chem. Ref. Data* **44**, 031209 (2015).
- [4] H. Fujimoto, A. Waseda and X. W. Zhang, *Metrologia* **48**, S55 (2011).
- [5] A. Waseda, H. Fujimoto, N. Kuramoto and K. Fujii, *IEEE Trans. Instrum. Meas.*, **64**, 1692 (2015).
- [6] G. Bartl et al., to be published in *Metrologia* (2017).

\* waseda.atsushi@aist.go.jp