

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¹、藤本弘之¹、張小威²

¹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

²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 Waseda¹ * Hiroyuki Fujimoto¹ and Zhang Xiaowei²

¹AIST/NMIJ, 1-1-1 Umezono, Tsukuba, 305-8563, Japan

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

1 はじめに

2018年11月にパリ郊外で開かれた度量衡総会で、国際単位系 (SI) の 7 つの基本単位の中の 4 つの基本単位、質量と温度、電流、物質量の定義の改定が承認された。SI 基本単位の中でこれまで唯一人工物である国際キログラム原器で定義されていた質量単位のキログラムは、基礎物理定数の一つであるプランク定数によって再定義されることとなった。この質量の単位キログラムの定義改定に向けては、これまでキップルバランス (ワットバランス) 法によるプランク定数 h の測定と、単結晶シリコンを用いた X 線結晶密度 (X-ray crystal density, XRCD) 法によるアボガドロ定数 N_A の測定[1-2]の二つのアプローチが進められてきた。一方、アボガドロ定数とプランク定数の間には厳密な以下の物理的関係式が成立する。

$$N_A = \frac{M_e}{m_e} = \frac{cM_e\alpha^2}{2R_\infty} \cdot \frac{1}{h}$$

ここで、 M_e 、 m_e 、 c 、 α 、 R_∞ はそれぞれ電子のモル質量、電子の質量、光の速さ、微細構造定数、リュードベリ定数である。ここで N_A と h の変換にかかる係数は相対標準不確かさ 4.5×10^{-10} で非常に精度よく分かっていることから、キップルバランス法と XRCD 法はそれぞれ独立なプランク定数及びアボガドロ定数の測定法である。科学技術データ委員会 (Committee on Data for Science and Technology, CODATA) の基礎定数作業部会は 2017 年 7 月 1 日までに受理された論文のデータを評価し、SI の新しい定義に用いられるプランク定数、電気素量、ボルツマン定数、アボガドロ定数の特別調整を行った [3]。この調整値を元に、SI ではプランク定数を定義値 ($h = 6.626\,070\,15 \times 10^{-34}$ J s) とし、質量単位キログラムが再定義されることとなった。新しい定義は 2019 年 5 月 20 日の世界計量記念日から施行され、キログラムの定義が 130 年ぶりに改定された。

産総研はこれまで単結晶シリコンを用いたアボガドロ定数の決定に関する研究を続けており、各国研究機関と協力し、同位体濃縮 ^{28}Si 単結晶 (AVO28)

の密度、格子定数、モル質量から XRCD 法によりアボガドロ定数を決定するアボガドロ国際プロジェクト (International Avogadro Coordination Project, IAC Project) に参加し研究を推進してきた[4-5]。また、ドイツ物理工学研究所 (PTB) が新たに作製した同位体濃縮 ^{28}Si 単結晶 (Si28-23Pr11) についても、IAC は協力して研究を行い、アボガドロ定数を決定した [6]。これらのデータは SI の新しい定義に用いられる CODATA の 2017 年の特別調整に用いられている。

単結晶シリコンを用いた XRCD 法によるアボガドロ定数の決定では以下の関係式によりアボガドロ定数を決定する。

$$N_A = \frac{8M_{\text{Si}}}{\rho a^3}$$

ここで、 M_{Si} 、 ρ 、 a はそれぞれ単結晶シリコンのモル質量、密度、格子定数である。XRCD 法では単結晶シリコンのモル質量、密度、格子定数の絶対測定を行うとともに、用いる単結晶シリコンの結晶一様性や完全性、欠陥評価を行うことが必須である。格子定数に関しては、X 線干渉計と光波干渉計を組み合わせた絶対測定[7-8]が行われると共に、自己参照型格子比較器 (Self-Referenced Lattice Comparator, SRLC) [9-10]を用いた格子定数の一様性評価[11-12]が行われた。また、SRLC を用いて格子定数の絶対測定が行われた AVO28 結晶と、新しい Si28-23Pr11 結晶の格子定数の結晶間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。

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

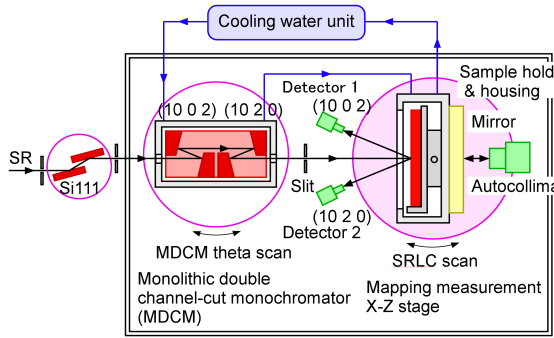


図 1：装置の概略図

る。二つの反射角度位置の差 γ が 0.004 秒程度に検出できれば、回折面の面間隔分解能が 1×10^{-9} の不確かさで求められることに対応する。

3 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。

同位体濃縮結晶 AVO28 の種結晶側試料 4.12 と、多結晶（テール）側試料 9.R1 の格子定数の相対差を測定した。測定は図 2 の点 A 及び点 B での格子定数の比較を行うと共に、白線での格子定数の一様性評価を行った（図 3）。これらの結果から、この二結晶の格子定数の相対差は $-2.43(19) \times 10^{-8}$ であった。この差は、不純物原子である炭素と酸素の濃度差から計算される、格子定数の差とよく一致していた。

同位体濃縮結晶 AVO28 と Si28-23Pr11 の格子定数の比較測定についても現在再測定を実施している。

4 まとめ

SRRLC を用いてこれまで、単結晶シリコンの結晶内の格子定数の分布測定による一様性評価を行ってきた。さらに、結晶間の格子定数の比較測定を行うことにより、格子定数が既知の結晶との比較から、新しい結晶の格子定数の値を決定することができることを示した。

参考文献

[1] P. Becker, Rep. Prog. Phys. **64**, 1945 (2001).
 [2] K. Fujii, et al., Metrologia **53**, A19 (2016).
 [3] D. B. Newell et al., Metrologia **55**, L13 (2018).
 [4] B. Andreas et al., Metrologia. **48**, S1 (2011).
 [5] Y. Azuma, et al., Metrologia **52**, 360 (2015).
 [6] G. Bartl, et al., Metrologia **54**, 693 (2017).
 [7] E. Massa, et al., Metrologia **48**, S44 (2011).
 [8] E. Massa, et al., J Phys. Chem. Ref. Data **44**, 031208 (2015).
 [9] X. W. Zhang, H. Sugiyama, M. Ando, Y. Imai and Y. Yoda, J. Appl. Crystallogr. **36**, 188 (2003).

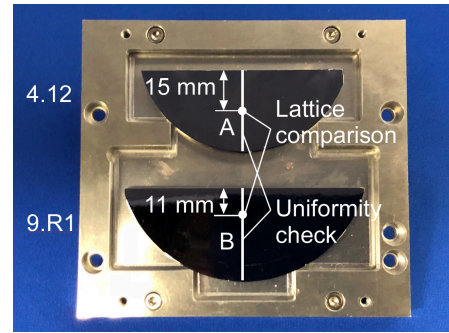


図 2：同位体濃縮結晶 AVO28 4.12 と 9.R1

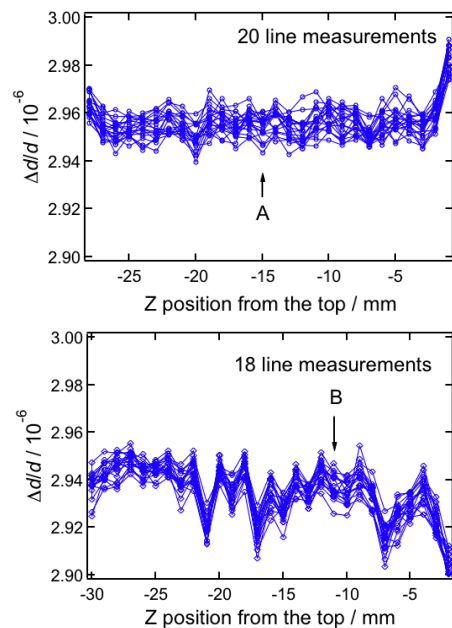


図 3：4.12（上）と 9.R1（下）の格子定数分布

[10] H. Fujimoto, A. Waseda and X. W. Zhang, Metrologia **48**, S55 (2011).
 [11] A. Waseda, H. Fujimoto, X. W. Zhang, N. Kuramoto and K. Fujii, IEEE Trans. Instrum. Meas. **64**, 1692 (2015).
 [12] A. Waseda, H. Fujimoto, X. W. Zhang, N. Kuramoto and K. Fujii, IEEE Trans. Instrum. Meas. **66**, 1304 (2017).

* waseda.atsushi@aist.go.jp