

# 自己参照型格子比較器による単結晶シリコンの格子定数の均一性評価と 結晶間格子定数の超精密比較

## Homogeneity Characterization of Lattice Spacing and Lattice Comparison for Silicon Crystals by the Self-Referenced Lattice Comparator

早稲田篤<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

WASEDA Atsushi<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

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。新しいSIではアボガドロ定数  $N_A$  とプランク定数  $h$  は定義値となり、それぞれモルとキログラムを再定義することとなった。質量の単位キログラムの実現は、キップルバランス (ワットバランス) 法による方法と、単結晶シリコンを用いた X 線結晶密度 (X-ray crystal density、XRCD) 法による方法[1]がある。XRCD 法では定義値であるプランク定数 ( $h = 6.626\ 070\ 15 \times 10^{-34}$  J s) を用いて、以下の式により、質量が決定される。

$$m = \frac{8V\ 2R_{\infty}h\ m_{\text{Si}}}{a_0^3\ c\ \alpha^2\ m_e}$$

ここで、 $m_{\text{Si}}/m_e$ 、 $V$ 、 $a_0$  はそれぞれシリコンと電子の質量比、シリコンの体積、格子定数であり、絶対測定により決められる。これらの絶対測定に加え、単結晶シリコンの結晶評価が重要であり、モル質量や、密度、格子定数の一様性を評価する必要がある。

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[2-3]が行われると共に、格子定数の一様性評価は自己参照型格子比較器 (Self-Referenced Lattice Comparator、SRLC) [4-5]を用いて[6-7]行われる。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 結晶の結晶間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することができる。

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、各国研究機関が協力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[8-9]。再定義後も、同位体濃縮 28Si 単結晶を用いた、キログラムの実現に関して、各国と協力して研究を行っている。

### 2 自己参照型格子比較器

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。

SRLC は PF のビームライン BL3C にインストールされている。今回の実験では、回折面 (10 2 0) と (10 0 2) を使用しており、波長とブラッグ角はそれぞれ、0.1055 nm と 82.03° である。本測定では格子定数のマッピング測定間隔は水平方向が 1 mm、垂直方向が 2 mm で行なった

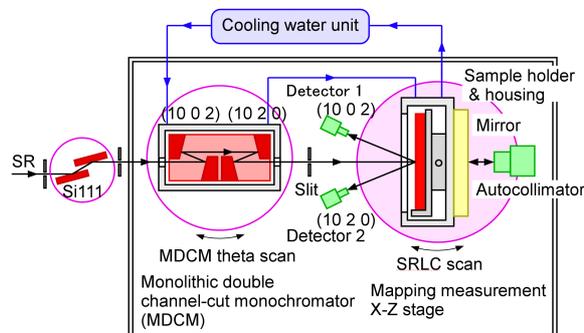


図1：自己参照型格子比較器の概略図

### 3 結果と考察

ドイツ PTB では新たにキログラム実現のための同位体濃縮結晶を FZ 法により二つ作製している。それぞれの種結晶側から切り出された、半円状ディスク試料、Si28-24Pr11 M.1 ( $\phi 70$  mm x 厚さ 6 mm) と Si28-31Pr11 M.1 ( $\phi 76$  mm x 厚さ 6 mm) について、格子定数の一様性評価を行なった。試料面は $\langle 100 \rangle$ である。試料は研磨剤 (#1000) で研磨した後、硝酸、酢酸、フッ酸混合液 (5:3:3) で化学エッチングし、表面の加工変質層を除去した。

両試料はアルミホルダーに固定し (図 2)、温度制御された試料ハウジングにセットした。2 つの白金抵抗測温体をアルミホルダーの左右に貼り付け試料温度を測定した。温度は実験ホール内温度に近い  $23\text{ }^{\circ}\text{C} \sim 24\text{ }^{\circ}\text{C}$  で、左右の温度差は 1 mK 以下、温度の長時間安定性は数 mK であった。

新しい 2 つの結晶試料について予備的な測定を行った。試料 Si28-24Pr11 M.1 については、縦 30 mm、横 60mm の範囲についてマッピング測定を行った。微かな同心円上の模様が見られたが、格子定数の分布は標準偏差で  $4.7 \times 10^{-9}$  であった。

試料 Si28-31Pr11 M.1 については、縦 18 mm、横 50mm の範囲についてマッピング測定を行った。こちらについても微かな同心円状の模様が見られ、格子定数の分布は標準偏差で  $5.6 \times 10^{-9}$  であった。

両結晶とも、格子歪は殆どなく、均一な格子定数分布であった。アボガドロ定数決定で以前用いた同位体濃縮結晶 AVO28 (Si28-10Pr11) についても格子定数は同様に一様な結果が得られている[6-7]。従って、新たに作製された二つの結晶についても、格子定数の一様性についてはキログラムの実現に適した結晶であることが確かめられた。

### 4 まとめ

今回、二つの同位体濃縮結晶、Si28-24Pr11 M.1 と Si28-31Pr11 M.1 について、KEK-PF の放射光を利用した SRLC を用いて格子定数の一様性評価を行なった。両結晶共に、かすかな同心円状の模様が観察されたが、格子定数は十分一様な結晶であった。格子定数の均一性では、新しい結晶はキログラムの実現に適する結晶であることが確認できた。

### 参考文献

- [1] K. Fujii, et al., *Metrologia* **53**, A19 (2016).
- [2] E. Massa, et al., *Metrologia* **48**, S44 (2011).
- [3] E. Massa, et al., *J Phys. Chem. Ref. Data* **44**, 031208 (2015).
- [4] X. W. Zhang, H. Sugiyama, M. Ando, Y. Imai and Y. Yoda, *J. Appl. Crystallogr.* **36**, 188 (2003).
- [5] H. Fujimoto, A. Waseda and X. W. Zhang, *Metrologia* **48**, S55 (2011).
- [6] A. Waseda, H. Fujimoto, X. W. Zhang, N. Kuramoto and K. Fujii, *IEEE Trans. Instrum. Meas.* **64**, 1692 (2015).

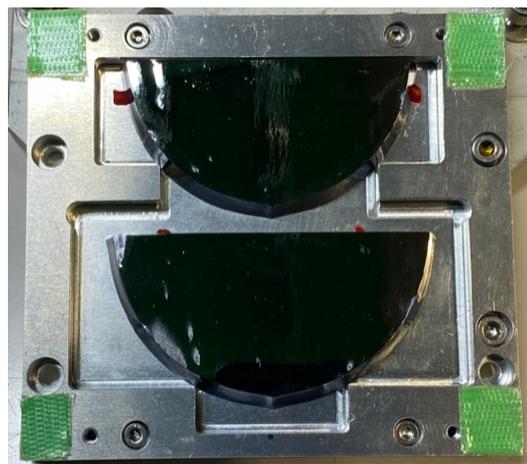


Fig. 2. 測定用ホルダーに設置された試料 Si28-24Pr11 M.1 (上)と Si28-31Pr11 M.1 (下)

- [7] A. Waseda, H. Fujimoto, X. W. Zhang, N. Kuramoto and K. Fujii, *IEEE Trans. Instrum. Meas.* **66**, 1304 (2017).
- [8] B. Andreas et al., *Metrologia*, **48**, S1 (2011).
- [9] Y. Azuma, et al., *Metrologia* **52**, 360 (2015).

\* waseda.atsushi@aist.go.jp