

アボガドロ定数決定のための単結晶シリコンの結晶評価 Evaluation of Silicon Crystals for the Determination of Avogadro Constant

早稲田篤^{1,*}, 藤本弘之¹, 張小威², 倉本直樹¹

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高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所, 〒305-0801 つくば市大穂 1-1

Atsushi Waseda^{1,*}, Hiroyuki Fujimoto¹, Zhang Xiaowei² and Naoki Kuramoto¹

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

²KEK/IMSS, 1-1 Oho, Tsukuba, 305-0801, Japan

1 はじめに

2011 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、国際単位系 (SI) の 7 つの基本単位のうち、質量、温度、電流と物質量の定義改定に向けた方向性が示された。質量については、基本単位の中で唯一、人工物である国際キログラム原器 (IPK) で定義されているが、これを基礎物理定数に基づく新しい質量の定義に改定しようというものである。

質量の再定義に向けては、X 線結晶密度 (XRCD) 法によるアボガドロ定数の決定と、電気標準であるジョセフソン電圧と量子ホール抵抗を用いたワットバランス法によるプランク定数の決定があり、両研究が進められている。アボガドロ定数は原子の数から、プランク定数はアインシュタインの関係式から質量が再定義できる。アボガドロ定数とプランク定数は、関係式で結ばれており、どちらの実験からも両基礎定数を決定することができる。従って、平行に進めている独立な計測で決められる両物理定数は、不確かさの範囲で一致するはずであるが、現在のところ、XRCD 法とワットバランス法で決めた定数の値に、不一致が存在している (図 1)。この不一致の原因究明と解消を目指し、産総研も参加する新たな国際研究協力やヨーロッパプロジェクトが現在進めている。

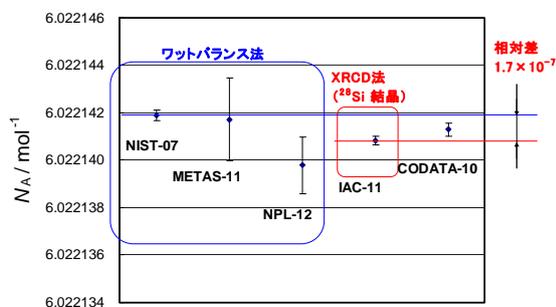


図 1 : アボガドロ定数測定結果

アボガドロ定数決定では、これらの精密測定と共に、用いる単結晶シリコンの結晶完全性、欠陥評価が必須である。我々は KEK-PF において結晶格子面間隔の一様性評価を行っている。

2 アボガドロ定数の決定

アボガドロ定数 N_A は単結晶シリコンの格子定数 a 、密度 ρ 、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。

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

ここで d_{220} はシリコン(220)格子間隔である。 d_{220} の絶対測定に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が、試料間比較、分布測定等の相対測定 ($\Delta d/d$) はこれまで、2 結晶回折を用いた X 線格子比較器が用いられてきた。一方、我々が KEK-PF にて新たに開発した、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格子コンパレータ法は、短時間で結晶面内の格子面間隔分布を測定を行い、単結晶シリコンの結晶評価を行うことができる。

3 測定原理

これまで我々が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格子コンパレータ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 2)。

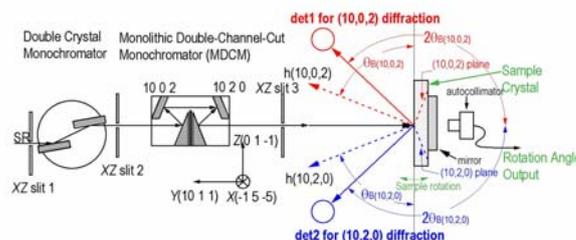


図 2 : 装置の概略図

法線方向の結晶に対して、試料結晶中特定の二つの等価な面指数を用いると、MDCM で特定の波長を選ばれた 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 線回折反射が得られる。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。

これまで測定では、自然同位体 Si 単結晶の格子面間隔は相対値で約 4×10^{-8} の分布が見られたが、同位体濃縮 ^{28}Si 単結晶の格子定数の変化は標準偏差で 4.7×10^{-9} であり、充分均質で一様な単結晶であった [1]。測定精度は 3×10^{-9} を達成している。

4 現在の状況

本研究では、 2×10^{-9} 測定精度の向上に向け、現在装置の改良を行っている。測定では熱膨張による格子面間隔の変化を如何に抑えるかが重要となってくる。

- 試料容器の作製と温度制御用循環水の温度安定化

試料温度の均質化を目指し、試料容器を新しく作製した。また、温度調節用循環水についても、冷却系の改良を行っている (図 3)。

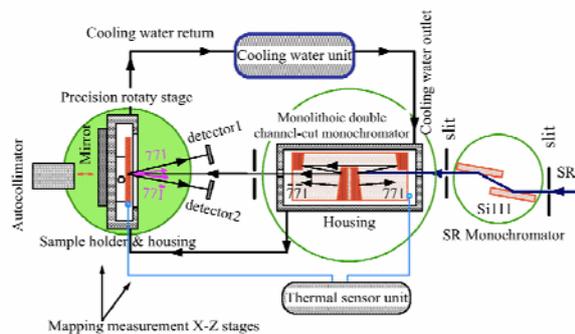


図 3 : 試料温度制御系

- 実験ハッチ内空調の導入

実験ホール内は $0.5 \text{ }^\circ\text{C}$ の温度変動が見られるが、この影響を小さくするとともに、実験ハッチ内を速やかに設定温度にし、温度を安定化させるために、局所空調装置を導入した。

- X 線集光素子の導入

放射光の Z 軸の平行化を行うために、X 線集光素子を導入する (図 4)。簡易的なシミュレーションでは 2 倍~4 倍程度の増強が期待できる。



図 4 : X 線集光素子

5 今後の予定

2013 年度も継続して、温度制御の高度化、X 線集光素子の導入による、測定精度の向上を目指す。温度制御の高度化については、2012 年度中に導入した、新試料容器と実験ハッチ内空調の評価と最適化を行う。また恒温水循環系についても、改良を検討している。最終的に温度制御は室温近傍で $1 \text{ mK} \sim 2 \text{ mK}$ の安定度を目指している。X 線集光素子についても、その効果を検証する。

測定試料については、これまでトップ部分 (4.R1) と、中央部 XINT 結晶の測定を行っている。現在、アボガドロ WG より、KEK-PF 用に新たな測定試料が配布された。同位体濃縮 ^{28}Si 単結晶インゴットのテール部分の試料 (9.R1) である (図 5)。本試料については無歪研磨を終了しており、測定を行う準備は整っている。測定の高度化とあわせ、これらの試料の結晶評価を行う予定である。

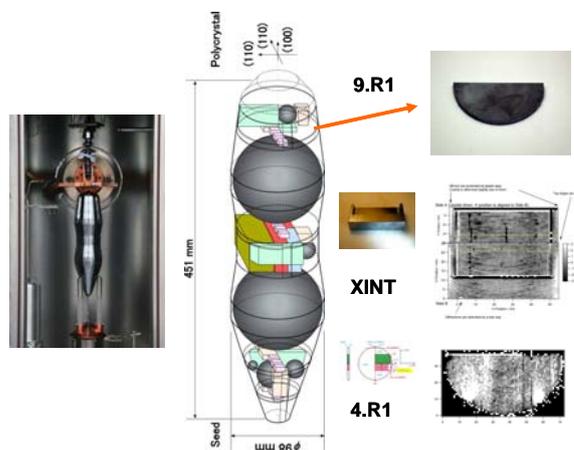


図 5 : ^{28}Si 単結晶インゴット

参考文献

[1] H. Fujimoto, A. Waseda and X. W. Zhang, *Metrologia* **48**, S55 (2011).

* waseda.atsushi@aist.go.jp