

# 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<sup>1,\*</sup>, 藤本弘之<sup>1</sup>, 張小威<sup>2</sup>, 倉本直樹<sup>1</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>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<sup>1,\*</sup>, Hiroyuki Fujimoto<sup>1</sup>, Zhang Xiaowei<sup>2</sup> and Naoki Kuramoto<sup>1</sup>

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

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

## 1 測定原理はじめに

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、その係数は十分小さいことから、どちらかの定数が決定できれば、他方も決定することができる。XRCD法とワットバランス法と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しなければならない。しかし現在のところ、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られている。

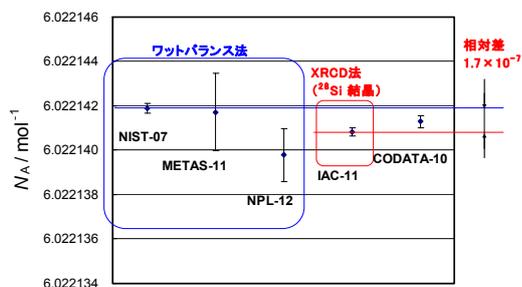


図 1 : アボガドロ定数

## 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と密度、平均モル質量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  $a$  は格子定数、 $d_{220}$  はシリコン(220)格子間隔、 $\rho$  は密度、 $M$  は平均モル質量である。アボガドロ定数決定では、これらの精密測定を行うと共に、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。格子定数の測定については  $d_{220}$  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、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[1]。

## 3 自己参照型 X 線格子コンパレータ

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

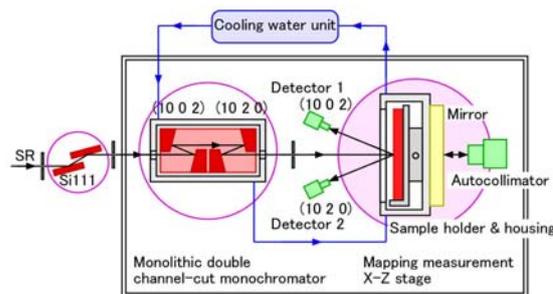


図 2 : 装置の概略図

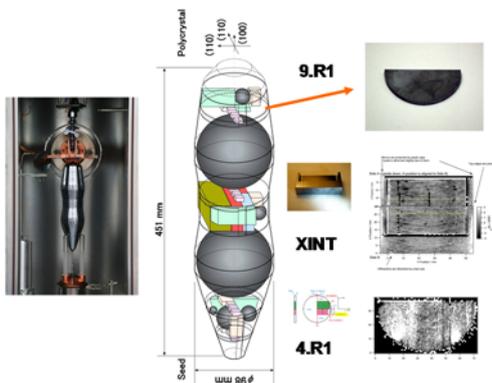


図 3 :  $^{28}\text{Si}$  単結晶インゴット

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)。

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 で特定の波長に選ばれた 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  $\gamma$  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。

これまで測定では、 $3 \times 10^{-9}$  を達成している。さらなる測定精度の向上に向け、2013 年度は以下の装置改良を行った。

- ・ 実験ハッチ内温度安定化のための局所空調装置の導入
- ・ 水冷試料容器と水冷 MDCM 容器の作製

これにより、MDCM 結晶、試料結晶の温度均質性が向上した。温度安定化により X 線強度が約 10% 大きくなった。

#### 4 結果と考察

測定試料は IAC プロジェクトで作製された、同位体濃縮  $^{28}\text{Si}$  単結晶インゴットから切り出された (図 2)。試料表面は、無擾乱研磨或いは化学エッチングを行い、加工歪を除去している。

試料は水冷容器にセットされ、循環恒温槽により温度の安定化を行っている。

これまで、種結晶側試料 4.R1 と中央部の X 線干渉計用試料 XINT、テール (多結晶) 側試料 9.R1 について測定を行ってきた。 $\Delta d/d$  分布は種結晶側試料 4.R1 が  $1.5 \times 10^{-8}$  (p-v)、インゴット中央部 XINT が  $2 \times 10^{-8}$  (p-v) であった。種結晶側である 4.R1 は、不純

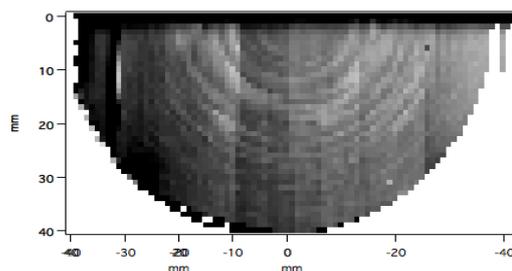


図 4 :  $^{28}\text{Si}$  9.R1 試料の  $\Delta d/d$  分布

物濃度の低い試料であり、格子定数分布も小さく均質であった。

今回測定を行ったテール側試料 9.R1 の格子定数分布の様子を図 4 に示す。これまで観測してきた自然同位体 Si 単結晶では渦巻き状の格子定数の不均質が見られたが、テール側試料についても同様の渦巻き状の格子定数の不均質がみられた。その  $\Delta d/d$  分布は 4.R1 や XINT 試料と比べ、 $4 \times 10^{-8}$  と大きくなっていた。

これまで格子面間隔分布測定を行ってきたアボガドロ結晶の、不純物について表 1 にまとめた [2]。今回測定した 9.R1 試料は、不純物、特にカーボン濃度が大きくなっている。カーボンの偏析が影響している可能性がある。カーボンはシリコン結晶内では置換型不純物で、格子定数を縮める効果がある。現在、顕微 FT-IR により、カーボン不純物濃度の結晶内分布を確認する準備を進めている。

#### 4 今後の予定

2014 年度は以下を予定している。

- ・ 9.R1 試料の顕微 FT-IR による不純物分析
- ・ 装置の温度制御の高度化と測定精度の向上
- ・ 大面積 Be 窓と姿勢制御容態面積セラミックミラーの導入

#### 参考文献

- [1] H. Fujimoto, A. Waseda and X. W. Zhang, *Metrologia* **48**, S55 (2011).  
 [2] B. Andreas, et al., *Metrologia* **48**, S1 (2011).

\* waseda.atsushi@aist.go.jp

表 1 : アボガドロ結晶の不純物

Defect	NRLM3	NRLM4	Avo28 4.7.1 (seed)	NINT (center)	Avo28 9.7.1 (tail)
Carbon ( $\times 10^{15}$ )	5.6(9)	0.3(10)	0.182(83)	1.07(10)	2.990(196)
Oxygen ( $\times 10^{15}$ )	2.0(2)	6.4(1)	0.196(23)	0.37(3)	0.440(38)
Boron ( $\times 10^{15}$ )	<0.0083		0.0196(17)	0.004()	0.344(28)
Vacancy ( $\times 10^{15}$ )			0.33(10)	0.33(10)	0.33(10)
$\Delta d/d$ Distribution (p-v)	$5 \times 10^{-8}$	$2.5 \times 10^{-8}$	$1.5 \times 10^{-8}$ (4.R1)	$2 \times 10^{-8}$	$4 \times 10^{-8}$ (9.R1)