

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

課題番号: 2012S2-004

早稲田篤、藤本弘之、倉本直樹 (AIST/NMIJ)、張小威 (KEK-PF)

I. はじめに

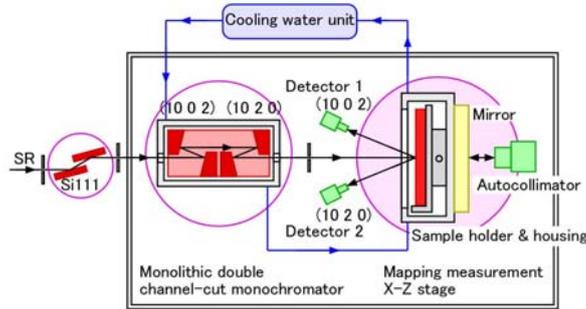
2011年に開催されたメートル条約の最高議決機関である国際度量衡総会で、国際単位系 (SI) の7つの基本単位のうち、質量、温度、電流と物質量の定義改定に向けた方向性が示された。質量については、基本単位の中で唯一、人工物である国際キログラム原器で定義されているが、これを基礎物理定数に基づく新しい質量の定義への改定を目指している。

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、²⁸Si濃縮単結晶を用いた、X線結晶密度 (XRCD) 法によるアボガドロ定数 (N_A) の決定を行っている。XRCD法では、Si単結晶のモル質量 (M) と密度 (ρ)、格子定数 (d_{220}) の精密測定によりアボガドロ定数を決定すると共に、用いる単結晶シリコンの結晶完全性、欠陥評価を行う。我々はKEK-PFにて放射光を用いた結晶格子面間隔の一様性評価を行っている。

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

II. 自己参照型X線格子コンパレータ

KEK-PFにて新たに開発された自己参照型格子コンパレータは、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。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、高感度にて、大面積の結晶に対してマッピング測定を行う。



装置の概略図

これまで、測定精度は 3×10^{-8} を達成しているが、更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。

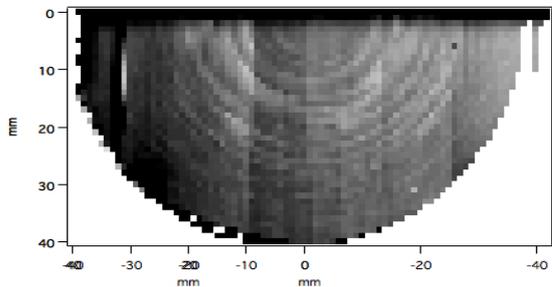
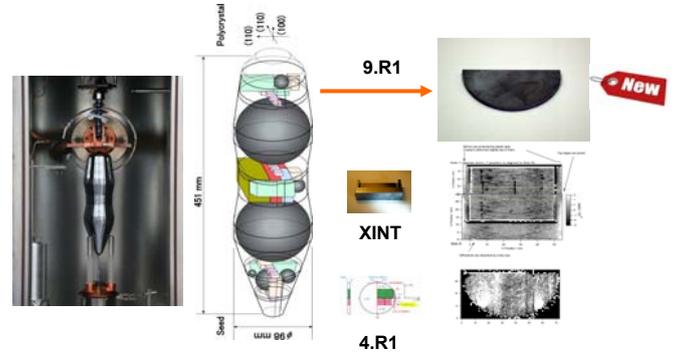
- ・ 実験ハッチ内温度安定化のための、局所空調装置の導入
- ・ 水冷試料容器と水冷モノクロメーター容器の作製

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線強度も10%程度大きくなった。

III. 結果と考察

アボガドロ定数決定用同位体濃縮²⁸Si単結晶 (Avo28) では、インゴットのシード側試料 (4.R1) と、インゴット中央のX線干渉計用試料 (XINT) について、格子面間隔分布測定を行ってきた。 $\Delta d/d$ 分布は4.R1が 1.5×10^{-8} 、XINTが 2×10^{-8} であった。シード側結晶である4.R1は、不純物濃度の低い試料であり、格子定数分布も小さい均質な試料であった。

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、 4×10^{-8} と大きくなっていった。



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、不純物についてまとめたのが、次の表である。

Defect	NRLM3	NRLM4	Avo28 4.7.1 (seed)	XINT (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(1)	0.344(28)
Vacancy ($\times 10^{15}$)			0.33(10)	0.33(10)	0.33(10)
$\Delta d/d$ distribution (p-v)	5×10^{-8}	2.5×10^{-8}	1.5×10^{-8} (4.R1)	2×10^{-8}	4×10^{-8} (9.R1)

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。

V. 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の検討と、測定精度の向上
 - 大面積Be窓、姿勢制御用大面積セラミックミラーの導入
- ・ 顕微FT-IRの結果を踏まえ、格子面間隔分布との関係の解明

VI. 参考文献

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