

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 (IHEP-BSRF、KEK-PF)

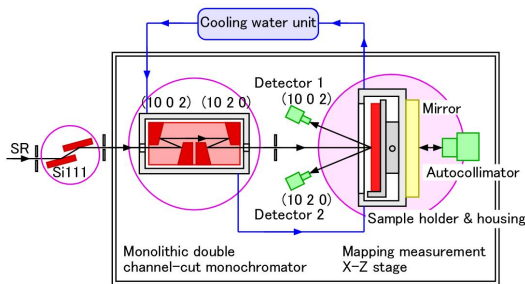
I. はじめに

国際単位系(SI)の基本単位のひとつであ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、大面積の結晶に対してマッピング測定を行う[1]。



装置の概略図

測定精度向上に向け、これまで以下のような装置改良を行ってきた。

- ・ 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
- ・ 新しい二次冷却用恒温循環槽の導入
- ・ 微小回転角測定用セラミックミラーの作製
- ・ 大面積Be窓の導入

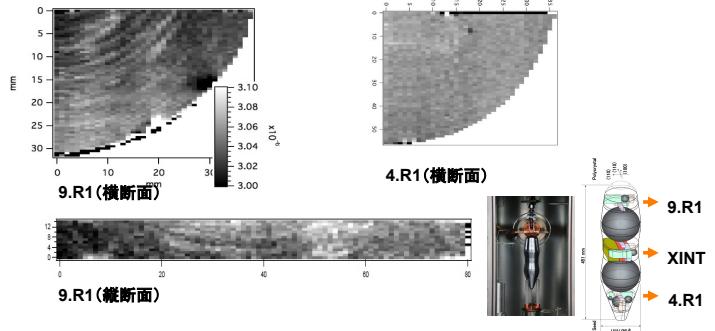
これにより、MDCM結晶、試料結晶の温度均質性が向上した。、X線強度も10%程度大きくなった。測定精度は現在 3×10^{-9} となっている。

III. 結果

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。

一方、テール側試料9.R1の格子定数分布については、これまで観測してきた自然同位体Si単結晶でみられた渦巻き状の格子定数の不均質が同様にみられた。その $\Delta d/d$ 分布は 4×10^{-8} となっており、4.R1やXINT試料と比べ大きくなっていった[2]。

また、9.R1の縦断面についても格子定数分布測定を行った。横断面の同心円パターンに対応し、曲面層状パターンが見られた。



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)

炭素はシリコン結晶内では置換型不純物として格子定数を縮め、酸素は格子間不純物として格子定数を拡げる効果がある。今回測定した9.R1試料は、不純物である炭素、酸素の濃度が大きくなっており、これら不純物の偏析が影響している可能性がある。

IV. 今後の予定

2015年度は、以下を予定している。

- ・ テール側縦割りサンプルの測定
- ・ 格子面間隔分布と不純物との関係の解明

V. おわりに

2014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(CGPM)では、「国際単位系(SI)の将来の改訂について」は決議1としておおむね下記の通り決議されている。

・ 2011年の第24回CGPMで採択した方針のとおり、質量の単位キログラムはプランク定数 h で、物質量の単位モルはアボガドロ定数 N_A で、電流の単位アンペアは電気素量 e で、熱力学温度ケルビンにボルツマン定数 k に基づきそれぞれ再定義する。

・ 2018年に予定される第26回CGPMで、新定義に移行できるよう必要な作業を関係機関(BIPM、各国NMI、等)完遂するよう奨励する。

また、基礎物理定数の調整、CODATA2014が予定されている。文献[3]の結果もこの調整に用いられる。

VI. 参考文献

- [1] H. Fujimoto, A. Waseda and X. W. Zhang, *Metrologia* **48**, S55 (2011).
- [2] A. Waseda, H. Fujimoto, X. W. Zhang, N. Kuramoto and K. Fujii, *IEEE Trans. Instrum. Meas.*, to be published.
- [3] Y. Azuma et al., *Metrologia*, to be published.