

# 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)

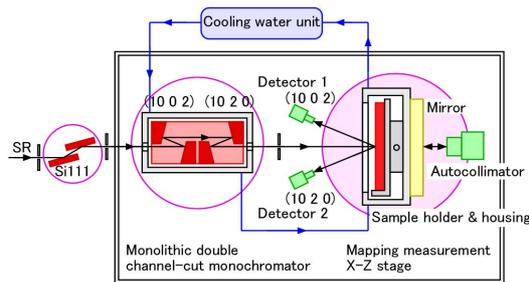
## I. はじめに

国際単位系(SI)の基本単位のひとつである質量の単位「キログラム」の再定義に向け、アボガドロ国際プロジェクト(IAC)では、同位体濃縮<sup>28</sup>Si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( $N_A$ )の決定を行ってきた。XRCD法では、Si単結晶のモル質量( $M$ )と密度( $\rho$ )、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た。

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

## 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X線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、本課題では以下の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
- ・ 大面積Be窓の作製
- ・ 微小回転角測定用セラミックミラーの作製

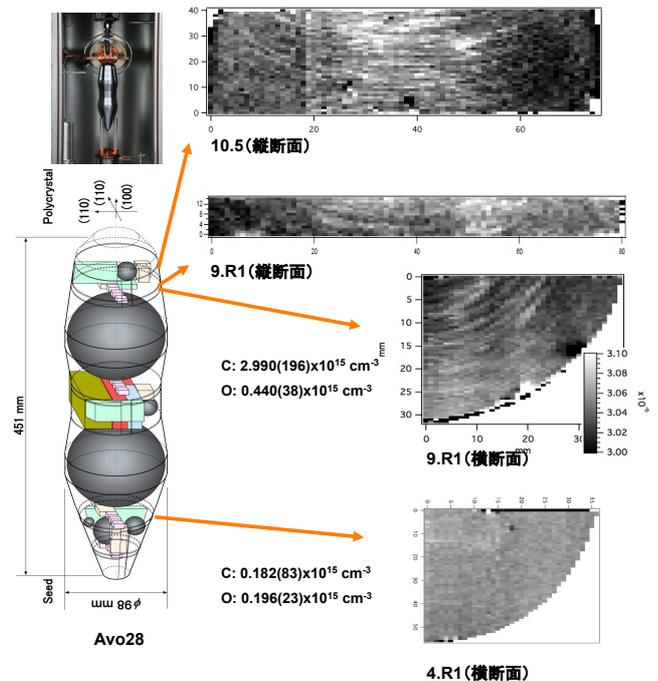
これにより、MDCM結晶、試料結晶の温度均質性が向上した。X線強度も10%程度大きくなった。測定精度は現在 $3 \times 10^{-9}$ となっている。

## III. 結果

アボガドロ定数決定用同位体濃縮<sup>28</sup>Si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 $1.5 \times 10^{-8}$ 、XINTが $2 \times 10^{-8}$ 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 $4 \times 10^{-8}$ 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、テール側試料の縦断面試料10.5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。



Avo28単結晶では、種結晶側試料(4.R1)では不純物炭素、酸素濃度が小さいが、多結晶側試料(9.R1, 10.5)試料では、結晶化による偏析の影響で、炭素、酸素濃度共に大きくなっている。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広げる効果がある。これら不純物の影響で、多結晶側試料では、格子定数分布が大きくなっている可能性がある。

## IV. 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第25回国際度量衡総会(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た。

- ・ 2011年の第24回CGPMが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はボルツマン定数 $k$ 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、文献[3]の結果は最新の基礎物理定数の調整(CODATA2014)に用いられている。

## V. 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.*, **64**, 1692-1695 (2015).
- [3] Y. Azuma et al., *Metrologia*, **52**, 360-375 (2015).