

はじめに

良質のシリコン単結晶を用い、X線をマクロな光路で干渉させるX線干渉計が、ボンゼ(U. Bonse)とハート(M. Hart)により発明され¹⁾ X線領域の干渉実験が容易におこなえるようになった。ここではX線干渉計の発明により可能になったシリコン格子定数の絶対測定、その重要な応用である質量の原子標準の実現の試み、またナノ時代の長さ計測への応用について述べる。

ところで完全結晶によるラウエケースのX線回折では入射波を E_0 として入射方向の回折波

$$E_o = \frac{1}{2} (1 \pm \frac{W}{\sqrt{W^2 + 1}}) E_o \tag{1}$$

回折方向では

$$E_g = \pm \frac{1}{2} \frac{|P|}{P} e^{ia_g} \frac{E_o}{\sqrt{W^2 + 1}} \tag{2}$$

ここで e^{ia_g} は結晶構造因子の位相項である。

格子定数の絶対測定

座標原点から単位格子の原点までの距離を r_0 とすれば(2)式で $g = -g \cdot r_0$ で座標原点に対し結晶を移動すると回折波の位相が変化する。そこでX線干渉計で例えばアナライザ結晶を g に平行に移動すると回折波の位相がそれに伴って変化する。従って干渉信号強度が d の周期で変化するので結晶の移動距離をレ - ザ - を光源とした干渉計で測定し d を絶対測定することができる。

X線干渉計による格子定数の絶対測定は、X線の波長の精度に左右されずに格子定数を直接光の波長を使って測定できる画期的なものであり、半世紀以上に及ぶX線分野の基本問題を解決できることから、ただちにドイツ、アメリカ、イギリスの国立標準研究所で実験が開始され、アメリカ国立標準局(NBS, 現在 NIST)、ドイツ物理工学研究所(PTB)、イタリアコロネッティ研究所(IMGC)と我国から絶対測定値が発表されている。

X線干渉計が良好な干渉をするための寸法条件と角度条件を右図に示す。格子定数測定では、調整した格子面を平行に保ったまま、pm(ピコメートル, $10^{-12}m$)レベルの滑らかさで結晶を100 μm ほど平行移動し、約192 pmの間隔のX線干渉縞を観察する。それと同時に結晶の移動距離を光波干渉計で絶対測定する。

平行移動

格子定数絶対測定装置のキーデバイスの一つである平行移動台は、pmレベルのなめらかさと高い直進性が求められる。デラットは金属ブロックから、平行移動のリンク機構を一体構造で実現し格子定数の絶対測定を行った。リンクを駆動する変位縮小用でこも一体で組み込まれており、熱的機械的に安定であ

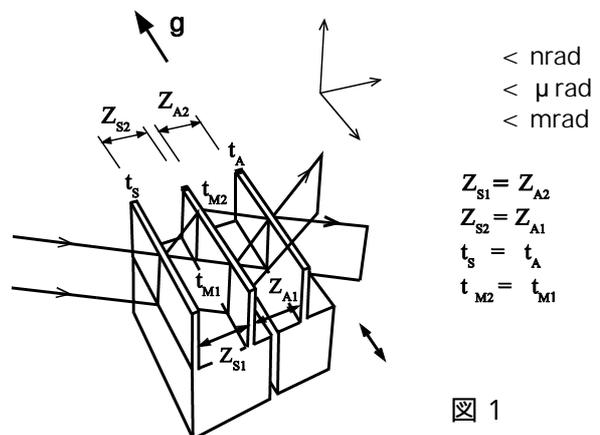


図 1

る。g 方向の自由度の固有振動数も高くなるように作られている。他のグループでも同様の弾性変形を利用した平行移動台が使われている。しかし理想的平行移動台はできないので、微動傾斜台を備えて平行移動からの角度変化を測定し補正する方策がとられている。

一体構造の移動台は移動方向に運動の自由度を持たせるため、どうしてもこの方向の振動が大きくなる傾向にある。固有振動数は100-1kHz のあいだに来ることが多く、人の声などにより共振しやすい。

格子定数絶対測定装置

図2は我々の装置の線図である。平行移動台側を示している。台の駆動は piezo 素子で行っている。X線干渉計の表面を格子面に平行に無歪研磨してあり、移動距離を測る光波干渉計の反射面としている。図2に示すようにX線干渉計の並進距離だけでなく移動に伴う角度変化を測定する角度干渉計、並進の軌跡を測定する干渉計も備えている。並進距離を測る干渉計は測定の重要な要素で、平行移動台がせいぜい 0.1 mm

しか動かないため移動距離を 8 桁まで測るためには pm レベルの測長が必要である。それぞれの研究グループで低雑音、高感度の光波干渉計が格子定数の絶対測定用に開発されている。我々はX線干渉計の並進以外に感度がないことをめざして干渉計を作った。しかしそのために光学表面の数が多くなり、レザ - 光が散乱されるという障害も発生している。

X線干渉計は多数の自由度の調整を必要とするが、安定度を重視することから粗動機構は使わずに調整するのが共通している。その結果調整は気軽に行えないことが多い。

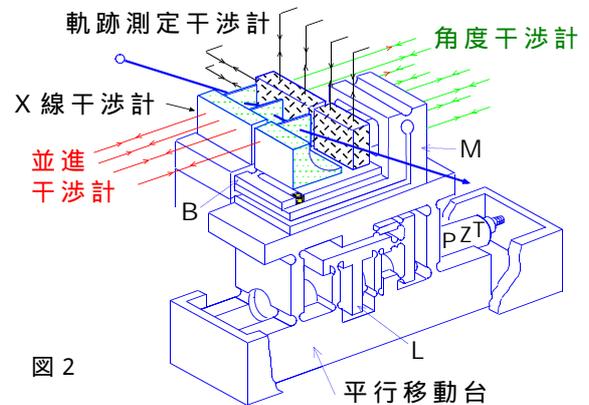


図2

測定環境

X線干渉信号を観察するうえで、振動を減らすことと温度を安定に保つことと防音が重要である。測定室は地下にあり独立基礎の上に防振台を置いている。2トンの鋳鉄製定盤を多段式積層ゴムの防振台で支えたもので、水平方向の共振周波数は0.7Hzであり上に乗っている装置の固有振動数に比べ十分低い。それでもX線干渉計の2部分の相対振動を小さくするのは簡単ではない。真空中で実験していても人の声や隣の部屋で使っている工具の音などに反応するなど振動が取りきれないので、最終的には光波干渉計の信号を用いX線干渉計の並進方向の振動をフィードバックをかけることによりおさえている。

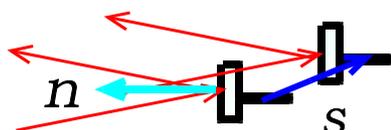
測定

我々はX線干渉計を約 70 μ m 平行移動し、移動距離を光波干渉計で測定する。X線干渉計をゆっくり移動させ、X線干渉縞を 70 μ m にわたって全部数えるのは長時間を要し現実的でないから、X線干渉信号と光波干渉信号の同時測定はデラットの合致法によっている。すなわち、レザ - の半波長 $\lambda/2$ のとシリコンの d_{220} の比 ($\lambda/2d_{220}$) を整数部分と小数部分に分けて考えると整数部分はだいたい分かっているので小数部分を決めればよいことになる。例えば光波干渉計のいくつかの次数で小数部分を測定し精度を上げてゆき最終的には0次, 100次, 200次, 200次, 100次, 0次などと往復の光波干渉縞の位置でX線干渉信号の位相を読むことにより $\lambda/2$ の m 倍と d_{220} の n 倍の比を高精度で決定できる。また往復ではかかることによりドリフトや外乱の影響を取り除くことができる。測定は計算機制御により、完全に無人で行われている。

温度の 3 mK の誤差が 格子定数の 0.01 ppm の誤差になるので、当所の温度標準で校正した白金抵抗温度計で結晶の温度を測っている。

補正

絶対測定では補正すべき量をきちんとおさえることが重要である。アップの誤差、回折補正、温度などの効果を補正する。回折補正はレ - ザ - 光の波面が平面でなく曲率をもっていることの補正である。アップの誤差はX線とレ - ザ - で同一直線上の変位を測っていないことによる誤差であるが、実験的に誤差が最小になる位置を決める。またX線干渉計の位相変化は $g \cdot s$ 、(s は干渉計の出発点から終点を結んだ変位ベクトル) であり、一方レ - ザ - 光についてはコサイン誤差があるので両者を補正しなければならない。



この他に、X線干渉計の表面に凹凸があったりした場合のX線干渉信号の位相の変化などイタリアのグループが研究している。それらの補正は9桁目で効いてくる程度である。

以上の補正を行い、真空中、22.5 °、炭素、酸素が無い状態格子面間隔として

$$192015.593 \text{ fm} \pm 0.010 \text{ fm}$$

をえた。

Becker たち、Basile たちの絶対測定値を以下に示すが我々の測定値は、彼らの測定値に比べ0.17ppm 大きく差の原因はまだ解明されていない。

Becker たち ⁶⁾	192015.560 ± 0.012 fm
Basile たち ⁷⁾	192015.569 ± 0.006 fm
中山、藤本	192015.593 ± 0.010 fm
CODATA(1998)	192015.5845 ± 0.056 fm

いずれも22.5 °、真空中、炭素、酸素による格子の変形を補正した値である。

絶対測定値に関連した物理定数

格子定数の絶対値はX線波長や吸収端の波長測定などに使われるが、基礎定数決定にも重要であり、クリューガー (Kruger) たちは、絶対測定された格子定数を用い、中性子線の波長と速度を測定し h/m_n を決定し、さらに微細構造定数の逆数 λ^{-1} を実験的に 137.03601082 (524) と決定した。

質量の原子標準の研究

質量の標準はいまだにキログラム原器という物体によっている。キログラムは白金イリジウム合金の物体で定義されており、数十年に1回しか使えない、経時変化があっても分からないなど不都合があり、なんとか質量の原子標準を実現しようというのが標準関係者の重要なテーマである。その試みの一つがX線結晶密度法である。単位格子の密度はマクロな結晶密度と等しいことを利用する。単位格子の質量は、モル質量、アボガドロ定数、単位格子中の原子の数から計算できる。単位格子の体積は立方格子の場合、格子定数の3乗である。これらから単位格子の密度が求まり、これをマクロな密度と等しいとおいてアボガドロ定数を決定し原子の質量を高精度で決めようというものである。

$$N_A = f \cdot M / (q \cdot \rho \cdot a_0^3) \quad (1)$$

a_0 : 単位格子の辺の長さ, n : 単位格子中の原子数, M : 結晶を構成している原子のモル質量, q : 単位格子の形状因子で立方晶系の場合は $q=1$, ρ : 結晶の密度, N_A : アボガドロ定数

アボガドロ定数を 8 桁で決定できるようになれば, 質量の単位 kg を原子の質量を使った定義に変えることが可能になる。X線干渉計でシリコン格子定数の高精度絶対測定が可能になったことから, 浮遊帯域法 (FZ) で作られた高純度のシリコン単結晶の密度, モル質量を測定してアボガドロ定数を決定することが試みられた。モル質量は密度と格子定数測定に使ったサンプルについてシリコンの 3 種の同位体の存在比を質量分析計で絶対測定して求める。ところがモル体積 (モル質量と密度の比) は,

$$M/\rho = N_A f a_0^3$$

で格子定数に大きな差がないことから一定値をとるはずであるが, 我々の結晶の一つが他の結晶に比べ 3ppm の差があり, シリコン原子数にすると約 $1.5 \times 10^{17}/\text{cm}^3$ という大きな違いになる。この差を説明できるような結晶欠陥や実験の不備は見つかっておらず, この 3ppm の違いの原因は現在不明である。

おわりに

シリコン格子定数の絶対測定は今後 10^{-9} の不確かさをめざして進められる。未知の誤差要因の探索や絶対値の食い違いの原因究明などのためにも, さらに測定を進める必要がある。

シリコン結晶は X 線回折, 分光のための標準やナノメートル計測の標準となりうるが, 格子定数は不純物, 欠陥の濃度や分布などで変化するから, 厳密にはサンプルごとに測定が必要である。

また分離型の X 線干渉計は技術的に確立したものになりつつあり, 約 200 pm 間隔の極めて正確な信号が得られるから, 光波干渉計と直列にしてメートルからピコメートルまで測るといった計測への応用も始まったおり, 原子オーダーの長さ測定の道具として期待される。

参考文献

1. U. Bonse, and M. Hart: Principles and Design of Laue-case X-Ray Interferometers, Z. Phys., 188, 154 (1965).
2. R. D. Deslattes and A. Henins: Phys. Rev. Lett. 31, 972 (1973).
3. P. Becker, K. Dorenwendt, G. Ebeling, R. Lauer, W. Lucas, R. Probst, H.-J. Rademacher, G. Reim, P. Seyfried and H. Siebert: Absolute determination of the (220) lattice spacing in a silicon crystal, Phys. Rev. Lett., vol. 46, 1540, (1981).
4. G. Basile, A. Bergamin, G. Cavagnero, G. Mana, E. Vittone and G. Zosi, Measurement of the Silicon (220) Lattice Spacing, Phys. Rev. Lett. 72, 3133, (1994).
5. K. Nakayama and H. Fujimoto: Progress in the Measurement of Lattice Spacing d(220) of Silicon, IEEE Trans. Instrum. Meas., 46-2, 580 (1997).
6. P. De Bievre, S. Valkiers, R. Gonfiantini, P. D. P. Taylor, H. Bettin, F. Spieweck, A. Peuto, S. Pettoroso, M. Mosca, K. Fujii, M. Tanaka, Y. Z. Nezu, A. J. Leistner and B. W. J. Gardini: The Molar Volume of Silicon, IEEE Trans. Instrum. Meas., 46-2, 592 (1997)