

球体のはなし



柴田順二（芝浦工業大学名誉教授）

●国際単位系 SI とその定義 国際度量衡の制度(国際単位系 SI)が 1875 年に制定されて以来、国際原器に基づく単位の統一が世界規模で行われている。そこでは実体物による当初の単位定義が、物理法則によるものへ徐々に置き換えられて来た。その結果、7 つの基本単位(長さ m、質量 kg、時間 s、電流 A、熱力学温度 K、物質 mol、光度 cd)の中で未だに実体物による定義として留まっているのは、質量だけとなってしまった。未だに、国際キログラム原器がパリの国際度量衡局 BIPM に保管され、その複製である副原器が各国に配布され、質量単位が国際管理されているのである。この状況の早急な打開が叫ばれている。

●物理法則に基づく質量原器とアボガドロ数 物理法則による有力な質量原器の候補として期待されているのが、ある所定材料(密度標準物質)の原子質量 m_A である。もし、この質量 m_A を正確に特定すれば、それを質量原器に据えることができるはずである。この構想を具体化する手段として、厳密なアボガドロ数 N_A Avogadro's Constant の追究が開始された。アボガドロ数 N_A とは物質 1 モルに含まれる原子数(モル分子数)であり、 N_A から物質の密度 ρ (kg/m^3) を科学的に算出することができるのである。逆に、結晶構造が既知である物質の密度 ρ を実測することにより、アボガドロ数 N_A の逆算が可能となる。

●単結晶シリコン球によるアボガドロ数の測定原理 アボガドロ数 N_A の測定は、歴史的には Perrin(1909 年)が天然樹脂ガンボージの粒子を用いたブラウン運動の観察に始まり、 $N_A = 6.88 \times 10^{23}$ を得た。以来、その精度は時代と共に向上している。現在では、アボガドロ数 N_A は結晶の格子定数から求められ、 $N_A = 6.0238 \times 10^{23}/\text{mole}$ (有効数字 5 桁) が最も信頼できる値として知られている。シリコン単結晶は密度安定性に優れていることから最近、この単結晶を密度標準物質に選び、アボガドロ数を有効数字 8 桁の精度で測定する国際共同研究プロジェクトが、メートル条約加盟国の代表からなる国際度量衡委員会(CIPM)によって開始された。

高純度、無転位という完全性の高い大寸法シリコン単結晶の製造技術は半導体産業の興隆により、工業的にも成熟レベルに近づいていることが追い風となった。そこで、シリコン単結晶素材を理想的な真球体に成形することによって、その密度 ρ と格子定数 a を絶対測定し、これに同位体組成比に関する評価を加えることにより、アボガドロ定数 N_A の測定精度を有効数字 8 桁まで高められるはずと目論んだのである。なお、アボガドロ数 N_A は次式により求められる：

$$N_A = \frac{8A}{\rho a^3} \quad (1)$$

(A: 密度標準物質のモル質量、 ρ : 同物質の密度、 a : 同格子定数)

● **アボガドロ数 N_A の測定精度** 従前のキログラム原器の精度; $1.000000169\text{kg} \pm 2.3 \mu\text{g}$ は、有効数字 9 桁である。アボガドロ数 N_A を物理法則によりこの分解精度で特定するには、式 (1) から分かるように、単結晶シリコン球体の密度 ρ を液中秤量法により有効数字 9 桁 (1 億分の 1 桁) で測定しなければならないことになる。真球の世界チャンピオンデータ (真球度の直径比: 1.8×10^{-7}) でさえ、この目標精度に 2 桁及ばないのが現状である。そこで、キログラム原器の質量監視という当座の目標を掲げて、ここにアボガドロ数測定用の単結晶シリコン真球製作の意義を見出した。

● **CSIRO による単結晶シリコン球の真球精度** シリコン単結晶を真球に創成研磨するプロジェクトは、1987 年、オーストラリア連邦科学産業研究機構 (CSIRO) とイタリア IMGC の共同によりスタートした。シリコン単結晶には結晶方位に応じた硬さの異方性があり、慣用される研磨技術では完全真球の創成は困難と思われていたが、CSIRO では真球精度はもとより、表面品質も、恐らく技能の力によって克服したのであろう。CSIRO によって創成研磨されたシリコン単結晶球は、キログラム原器 (1kg) に近い質量になるよう約 94mm ϕ の球径が選ばれ、達成した Si 球の加工精度として、以下の数値が報告されている (図 1)。

真球度: 約 50 nm

体積の測定精度: 0.38 ppm

密度の測定精度: 0.39 ppm

更に、不純物 (炭素、酸素)、表面酸化膜などを補正した結果、得られた Si 球の密度:

$2329.0832 \pm 0.0008 \text{ kg} / \text{m}^3$

と、有効数字 7 桁を保証している。

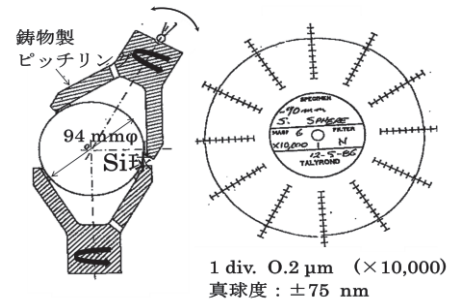


図 1 CSIRO による Si 単結晶球の研磨例

● **単結晶シリコン球磨きに対するわが国の挑戦** わが国でもほぼ時期を同じくして、工業技術院計量研究所が中心となり、このプロジェクトが立ち上げられた。シリコン単結晶球の製作では、国内のしかるべき企業の協力が得られたものの、到達した真球精度は 100nm~300nm が限界であり、目標とする真球度を達成できなかったと伝え聞く。筆者も挑戦したが叶わなかった (図 2)。同所ではやむなく、シリコン単結晶球の製作を CSIRO に依頼せざるを得なかった。しかし、単結晶シリコン球直径の絶対測定に当たって、光周波数制御型干渉計により、標準偏差 0.1nm (分解能: 2×10^{-11}) で計測することに成功している。また、質量の測定では、空気密度を補正する方法を開発し、体積と質量を共に、1000 万分の 6 (有効桁数 8 桁) での測定精度を実現した。これは従前精度の 1 桁アップである。現在、このシリコン単結晶球は密度の国家計量特定標準器に指定され、校正連鎖 (トレーサビリティ) の一環として貢献している。

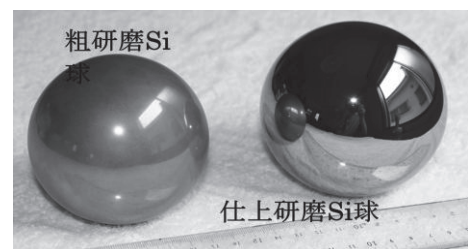


図 2 単結晶 Si 球 (芝浦工業大学 1995)