プランク定数にもとづくキログラムの新しい定義とその実現方法

藤井 賢一

産業技術総合研究所 工学計測標準研究部門 首席研究員

はじめに

キログラムは質量の SI 基本単位であり、多くの力 学関連量を表す際に用いられる最も基本的な単位の ひとつである。力、トルク、密度、粘度、質量流量 などの力学量に加えて比熱などのように単位質量あ たりの物理量を表すときにも用いられる。また、原 子や素粒子の質量やその相対論的エネルギーを求め る場合にも用いられるので、その利用範囲は極めて 広い。

現在、SI基本単位として用いられているメート ル (m) とキログラム (kg) の概念が明確になって きたのは18世紀末のフランス革命の頃に遡る。この とき、メートルは北極から赤道までの子午線の長さ の1千万分の1として定義された。長さの単位が定 義できたので、物体の形状を測れば長さの定義から 体積の単位をつくることができる。当時、4℃におけ る純水の最大密度は一定であると考えられていたの で、キログラムは最大密度にある純水1リットルの 質量として定義された。しかし、質量を測る度に水 の体積を測るのは大変なので、利便性の観点から分

図1 1799 年にフランスのメート 提供: Terence J. Quinn 元 BIPM 局長 真提供: BIPM

図2 1889 年にメートル条約にも とづいて質量の単位の定義として ル法で採用された確定キログラム 採用された国際キログラム原器: 原器(左)と確定メートル原器 直径、高さともに 39 mm の直円 (右):何れも純粋な白金製。写真 筒型。白金イリジウム合金製。写

銅の質量に置き換えられた。このような考え方にも とづいてつくられた純粋な白金製の確定メートル原 器と確定キログラム原器(図1参照)を基準として、 1799年に世界で最初にフランスでメートル法が公布 された。

その後、メートル法の優位性は海外でも認められ るようになり、1875年にメートル条約が締結される と国際度量衡局 (BIPM) が設立され、1889 年にメー トル条約にもとづいて第1回国際度量衡総会(CGPM) が開催された。このとき、キログラムは白金にイリ ジウムを10%混ぜて硬度を高めた白金イリジウム合 金製の国際キログラム原器 (International Prototype of the Kilogram: IPK) によって定義された(図2参照)。 当時、IPK と同じ材料でつくられた複製品が 40 個つ くられ、IPK との質量比較によってそれぞれ質量が値 づけされたキログラム原器がメートル条約加盟国に 配布された。世界の質量標準は IPK とキログラム原 器によって維持されてきた。キログラムは、この IPK という130年前につくられた人工物の質量によって 維持されてきた非常に珍しい単位である。7つのSI 基本単位のなかで最後まで人工物によって定義され てきたのがキログラムだった。

しかし、図3に示すとおり、IPKやその複製品は人

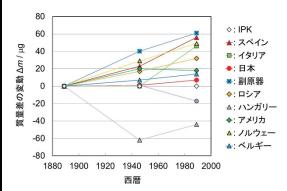


図3 100年間における各国のキログラム原器 と国際キログラム原器 (IPK) との質量差の変 動 Δm の履歴:副原器はBIPM に保管されてい る IPK の複製品。多くのキログラム原器の質量 は IPK に対して増加してきたかのようのみえる が、IPK そのものの質量が減少してきた可能性も ある。

工物なので、表面汚染などによる質量変動が避けられない。このため、これらの質量の安定性は 50 μg (1 億分の 5) 程度が限界であると考えられている ¹⁾⁻³⁾。

このため基礎物理定数⁴など自然界に存在する決して変わることのない普遍的な定数にもとづいてキログラムの定義を改定することがかなり以前から提案されてきた。しかし、これまでは IPK の質量安定性を超える精度でアボガドロ定数やプランク定数などの基礎物理定数を測定することができなかったため、キログラムの定義改定は長い間実現しなかった。2012年の科学誌ネイチャー⁵によれば、キログラムの定義改定は重力波検出などと並び、物理学において解決できていない5つの重要課題の1つに挙げられていた。

しかし今世紀に入ってからようやく、これを上まわる精度での測定が可能になり、国際度量衡委員会 (CIPM) の単位諮問委員会 (CCU) では、キログラムだけではなくアンペア、ケルビン、モルを含む 4つの SI 基本単位をそれぞれプランク定数 h、電気素量 e、ボルツマン定数 k、アボガドロ定数 N_A を用いて定義し直すことを提案してきた $^{6.7}$ 。

2011年に開催された第24回 CGPM では、上記の4 つの SI 基本単位の定義を将来同時に改定することい う基本方針を採択した。この時点では定義を改定す る時期と、用いるべき基礎物理定数の値は決められ なかったが、将来、これらの基礎物理定数の不確か さが十分に小さくなった段階で、科学技術データ委 員会 (CODATA) の基礎定数作業部会 (Task Group on Fundamental Constants: TGFC)⁴⁾ が決定する値を用いて これらの SI 基本単位の定義を改定することが採択さ れた。 さらに 2014 年に開催された第 25 回 CGPM で は、前回の決議を引き継ぐとともに、2018年に開催 される第26回CGPMにおいて、これらの定義改定を 実施するかどうかを審議することが決議された。そ のために、CODATA の基礎定数作業部会(TGFC)で は2017年7月1日までに受理された論文に報告され ているデータにもとづいて、SIの新しい定義で用い られるプランク定数h、電気素量e、ボルツマン定数k、 アボガドロ定数 N_A の特別調整値を決定した $^{8,9)}$ 。

2018年11月に開催された第26回 CGPM では、CODATAのTGFCが決定した特別調整値を用いて新しい定義に移行することが、メートル条約加盟国の賛成多数で採択された。その結果、2019年5月20日の世界計量記念日(World Metrology Day)から新しい定義が施行され、130年ぶりにキログラムの定義が改定された。

本稿ではキログラムの定義改定をめぐる最新の動 向について解説するとともに、プランク定数にもと づく新しい定義がもたらす影響などについて述べる。

2 新しい定義についての考え方

キログラムの新しい定義としては、原子の数から質量を決めるアボガドロ定数 N_A にもとづくものと、アインシュタインの関係式(特殊相対性理論と光量子仮説)から光子のエネルギーと質量とを関係づけるプランク定数 h にもとづくものとが提案されてきた $^{10-19}$ 。前者は比較的古くからある考え方であり、相対原子質量の基準である 12 C の 1 原子あたりの質量を基準にすれば、

◆ キログラムは基底状態にある静止した 5.018… × 10²⁵ 個の自由な炭素原子 ¹²C の質量に等しい。

と定義することができる。ここで、 $5.018\cdots \times 10^{25}$ という数値はアボガドロ定数 $N_{\rm A}=6.022\cdots \times 10^{23}~{\rm mol}^{-1}$ の数値の部分を 1000/12 倍して求めることができる。

一方、プランク定数にもとづく定義は比較的最近提案されるようになってきた考え方である。前述のアインシュタインの関係式を用いればエネルギーを $E=mc^2=hv$ と表すことができる。ここで、mは物体の静止質量、vは光子の周波数を表す。エネルギーと質量が等価であり、しかも光子の周波数によってそのエネルギーを表すことができるので、静止質量mと等価なエネルギーをもつ光子の周波数は $v=mc^2/h$ として表すことができる。真空中の光の速さc=299792 458 m/s は 1983 年のメートルの定義改定以来、既に不確かさのない定数になっているので、mに 1 kg を代入して、プランク定数 h=6.626… \times 10 $^{-34}$ J s を不確かさのない定数として定義してしまえば、

◆ キログラムは周波数が (299 792 458)²/(6.626… × 10⁻³⁴) ヘルツ (Hz) の光子のエネルギーと 等価な質量である。

と定義することもできる。

キログラムの定義を改定する上で、アボガドロ定数とプランク定数の何れを基準にすべきであるのかがしばしば議論されてきたが、キログラムだけに着目すれば、何れの定数を用いても定義することが可能である。ここで重要なことは N_A とhの間に厳密な関係が成立するということである。 M_e を電子のモル質量、 α を微細構造定数、 R_∞ をリュードベリ定数とすると、電子の質量は m_e = $2h R_\infty/(c \alpha^2)$ で表され、定義から $N_A = M_e/m_e$ であることから、 N_A は以下の式によってh に関連づけられる。

$$N_{\rm A} = \frac{cM_{\rm e}\alpha^2}{2R \ h} \tag{1}$$

上式において、h を除く基礎物理定数群 $N_{\rm A}h = c\,M_{\rm e}\,\alpha^2/(2\,R_{\infty})$ はモルプランク定数(molar Planck constant)と呼ばれ、その値は 4.5×10^{-10} の相対標準不確かさで既に求められている 4)。この不確かさは $N_{\rm A}$ や h についての最新の測定の不確かさよりも十分に小さいので、何れの定数を用いてもキログラムを定義することが原理的には可能である。

しかし、電圧と電気抵抗につてはそれぞれ交流ジョセフソン効果と量子ホール効果を用いた電気標準が既に実用化され、高い再現性で維持されている。このため、プランク定数hをキログラムの定義に採用し、さらに電気素量eも不確かさのない定数として定義してしまえば、ジョセフソン定数 $(K_{\rm I}=2e/h)$ とフォンクリッツィング定数 $(R_{\rm K}=h/e^2)$ に関する 1990 年の協定値 $(K_{\rm I,90}$ と $R_{\rm K,90})^{20,211}$ に頼ることなく、SI の定義として交流ジョセフソン効果と量子ホール効果からアンペアの定義を実現することが可能になる。このような考え方から、2011 年に開催された第 24 回 CGPM では、キログラムの定義として以下のようにプランク定数h の値を明示する表現方法が採択された。

◆ キログラム(記号はkg)は質量のSI単位であり、 プランク定数hを単位Js($kg m^2 s^{-1}$ に等しい) で表したときに、その数値を $6.626 \cdots \times 10^{-34}$ と定めることによって定義される。

今回の定義改定ではアンペア、ケルビン、モルの定義についても同様にそれぞれ電気素量e、ボルツマン定数k、アボガドロ定数 N_A の値を明示する表現方法が採択された。

3 アボガドロ定数の測定方法

従来用いられてきた SI の定義 $^{22,23)}$ では、アボガドロ定数 N_A はモルの定義から測定によって求められる基礎物理定数だったので、12~g の 12 C に含まれる原子の数を数えればよいと思われるかもしれない。しかし、その数が膨大であるため、直接的に原子や分子の数を測るには天文学的に長い時間を要する。そこで、シリコン結晶などの完全性の高い結晶の格子面間距離を測定して原子の数を求める X 線結晶密度 (X-ray crystal density: XRCD) 法 23 と呼ばれる測定原理が開発されてきた。

図4に示すようにシリコン結晶などは立方晶系に属する結晶であり、格子定数aの単位胞 (unit cell) には平均で8個の原子が含まれ、その体積は a^3 である。シリコン結晶の単位胞の密度、すなわち、微視的な密度が巨視的な密度 $\rho(Si)$ に等しいものと仮定すると、シリコン原子1個あたりの質量m(Si)は $\rho(Si)a^3/8$ に等しい。また、モルの定義

から、アボガドロ定数は $N_A = M(Si)/m(Si)$ として求められる。ここで、M(Si) はシリコンのモル質量 (1モル当たりの質量)を表す。したがって、アボガドロ定数は次式で与えられる。

$$N_{\rm A} = \frac{M(\rm Si)}{m(\rm Si)} = \frac{8M(\rm Si)}{\rho(\rm Si)a^3} \tag{2}$$

上式において、面指数 (lmn) の格子面間隔を d_{lmn} とすると格子定数は $a=(l^2+m^2+n^2)^{1/2}d_{lmn}$ として与えられるので、例えば、面指数 $(2\ 2\ 0)$ の格子面間隔 d_{220} を X 線回折によって測定すれば格子定数は $a=8^{1/2}d_{220}$ として求められる。

モル質量は同位体存在比の測定から求められる。自然界に存在するシリコンには3種類の安定同位体 28 Si、 29 Si、 30 Si があり、それらの存在比はそれぞれ約92%、5%、3% である。これらの核種の相対原子質量 4 A_{4}(Si) は 10 - 10 よりも小さい相対標準不確かさで既に求められているので、それぞれの核種の存在比 4 X(Si) を質量分析計によって測定すれば、その平均モル質量は次式から求められる。

$$M(Si) = \sum_{i=28}^{30} x(^{i}Si)M(^{i}Si)$$
 (3)

ここで、 $\sum_{i=28}^{30} x(i'Si) = 1$ であり、従来の SI の定義に おいて各核種のモル質量は $M(i'Si) = A_r(i'Si)$ g/mol として与えられる。

X線結晶密度法によるアボガドロ定数の測定において重要な役割を果たしたのは、1965年のBonseら²⁵⁾によるX線干渉計(x-ray interferometer)の開発である。それまで、結晶の格子定数はX線の波長を基準としてX線回折から求められていたが、基準となるX線波長の不確かさが大きかったため、それよりも小さい不確かさで格子定数を測定できなかった。X線干渉計が開発されたことによって、光の波長を基準にして格子定数を測定することが可能となり、不確かさが飛躍的に減少した。

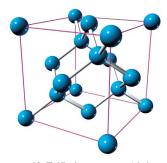


図4 シリコンの結晶構造:一辺の長さはを格子定数 a とする立方晶系の単位胞には平均で8個のシリコン原子が含まれる。

図5にマッハ・ツェンダー型のX線干渉計を示した。 シリコン単結晶の塊を研削して、3枚並行に等間隔に 並んだ形の厚さ約1mmの平行平板を準備する。そし て、3枚目の結晶(アナライザー)を切断し、その格 子面に対して法線の方向に平行移動させる。

図 6 に結晶よる動力学的回折 10 によって X 線の透過型対称反射が起こる様子を示した。アナライザーをその格子面に対して法線の方向(逆格子ベクトルの方向、ここではx 方向)に平行移動すると、透過 X 線の位相は変化しないが、回折 X 線の位相はアナライザーの移動距離 x に応じて変化するので、透過 X

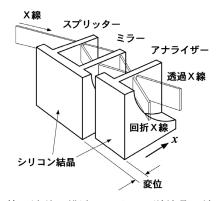


図5 X線干渉計の構造:シリコン単結晶の塊を研削して、3枚並行に等間隔に並んだ形の厚さ約1 mm の平行平板を準備する。そして、3枚目の結晶(アナライザー)を切断し、その格子面に対して法線の方向に平行移動させることができるようにする。

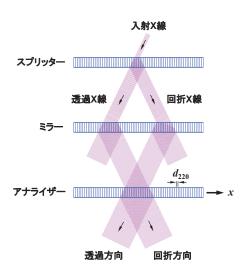


図 6 X線干渉計による格子定数の測定原理:アナライザーを逆格子ベクトルの方向 (x 方向)に走査すると、透過X線と回折X線とアナライザーで干渉し格子面間距離 d_{220} に等しい周期で明滅する。アナライザーの移動距離 x をX線の強度変化の関数としてレーザー干渉計で絶対測定すれば、光の波長を基準として格子面間距離 d_{220} を絶対測定することができる。

線と回折 X 線は干渉し、格子面間距離に等しい周期でアナライザーが移動する毎に X 線は明滅する。したがって、アナライザーの移動距離 x をレーザー干渉計で絶対測定しながら X 線の強度変化を観測すれば、結晶の格子面間距離を絶対測定することができる。

3.1 シリコンの同位体濃縮とモル質量の測定

XRCD 法による従来の測定では自然同位体比のシリコンが用いられてきたので、モル質量 M(Si) の測定精度に限界があり、質量分析計によるシリコンのモル質量の測定の相対標準不確かさは最も小さい場合でも 2.4×10^{-7} だった 26 。これが原因となり、IPKの質量安定性を超える精度でアボガドロ定数を測ることができなかった。

この課題を解決するために、 28 Si 同位体濃縮単結晶を用いて N_A を高精度化するためのアボガドロ国際プロジェクト (International Avogadro Coordination (IAC) Project)が 2004 年から実施された $^{27),28)}$ 。このプロジェクトには現在、産業技術総合研究所の計量標準総合センター (NMIJ)、ドイツ物理工学研究所 (PTB)、イタリア計量研究所 (INRiM)、オーストラリア連邦計量研究所 (NMIA)、BIPM などが参加している。遠心分離法による同位体濃縮 29 、化学精製、多結晶化などを経て 99.99% まで同位体濃縮された 5 kg 5 に同位体濃縮単結晶が 5 に得られた。このような大規模なシリコンの同位体濃縮を行ったのはこのプロジェクトが世界で最初である。

この結晶の同位体測定には誘導結合プラズマ質量分析計 (ICP-MS) を用いた同位体希釈分析法が用いられた。その測定に当初は気体質量分析法 26 が用いられたが、濃縮度が高いため、質量分析計で検出されるイオン電流の比 $I(^{29}SiF_3^+)/I(^{28}SiF_3^+)$ と $I(^{30}SiF_3^+)/I(^{28}SiF_3^+)$ は 1×10^{-5} 程度であり、この小さな比を高精度に測定することは極めて困難だった。

このため、PTB の Pramann ら 30 は 28 Si 同位体濃縮結晶の測定のための同位体希釈分析法を開発した。この方法は、 28 Si とのイオン電流比を直接測定するのではなく、微量成分である 29 Si と 30 Si についての測定の他に、 29 Si 同位体濃縮試料と 30 Si 同位体濃縮試料についての測定も実施し、連立方程式を解くことによって、 $x(^{28}$ Si) = $1-x(^{29}$ Si) $-x(^{30}$ Si) の関係から 28 Si 同位体濃縮結晶のモル質量を求めることを特徴とする。これによって、極めて小さなイオン電流の比の測定を避けることができるようになった。その結果、モル質量の測定精度を飛躍的に向上させることが可能になった。

その後、この測定には様々な改良が施され、NMIJの成川ら $^{31)}$ は、シリコン結晶の溶媒として、従来よく用いられてきた水酸化ナトリウム(NaOH)に代わり、水酸化テトラメチルアンモニウム(TMAH)を用いた。これによって、ICP-MS によるイオン電流測定のノイズ(background)を減らすことができるようになり、 28 Si 同位体濃縮結晶のモル質量測定の相対標準不確かさを 5.2×10^{-9} まで低減させることが可能になった。

3.2 球体を用いた結晶密度の測定

従来、シリコン単結晶の密度測定にはアルキメデスの原理を用いた浮力測定が用いられてきたが、シリコン単結晶球体を用いれば、浮力測定を介すことなく、その質量と形状計測からシリコン単結晶の密度を直接求め、密度測定の精度を極限まで向上させることができる。このため、アボガドロ国際プロジェクトでは28Si同位体濃縮単結晶から質量約1kg、直径約94mmの球体2個を切り出して研磨した。

アボガドロ国際プロジェクトを開始した当初、球体はオーストラリア連邦科学産業研究機構 (CSIRO) ³²⁾ で研磨されていたが、その後、金属による表面汚染が少ない研磨技術が PTB で開発され、直径の凹凸の最大値が約 70 nm、標準偏差が約 7 nm の球体が得られるようになった。凹凸の小さい球体の体積はその平均直径から小さい不確かさで求めることができるという幾何学的な解析結果 ³³⁾ があるので、NMIJでは球体の表面にほぼ均一に分布した 2320 方位からその直径を測定した。直径測定のために倉本ら ^{34),35)} 開発したレーザー干渉計を図 7 に示した。

直径測定においては球体の温度測定も重要な要素である。X線結晶密度法において結晶試料の熱力学温度の絶対値は必要ではないが、シリコン結晶の線

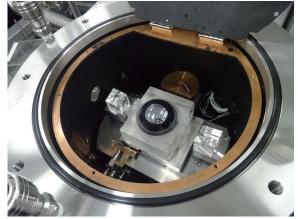


図7 中央にみえるシリコン球体の直径(約94mm)を サブナノメートルの精度で測るレーザー干渉計^{34),35)}。

膨張係数は室温において約 $2.56 \times 10^6 \, \mathrm{K}^{-1}$ なので、 X 線干渉計によって格子定数を測ったときの温度と球体の直径を測った時の温度が高い精度で整合している必要がある。このため、図 7 に示す真空容器の側面と上下面に恒温水を循環させて真空槽そのものの温度を一定に保ち、さらに真空容器の内部に銅の放射シールドを設け、放射シールドの外側に面状に貼りつけたヒーターによって、放射シールドの温度を制御する。放射シールドの内面には黒体塗装が施してあるので、黒体放射によって球体の温度を一定に保つ。このようにして得られる球体の温度の安定性は約 $0.3 \, \mathrm{mK}$ であり、ITS-90 にもとづく温度測定の標準不確かさは $0.6 \, \mathrm{mK}$ である 340。

²⁸Si 同位体濃縮単結晶球体の表面は厚さ数ナノメー トルの酸化膜などの表面層で覆われている。このた め、NMIJでは精密な密度測定を行うために、藤田 ら³⁶⁾による分光エリプソメトリー(SE)と張ら³⁷⁾に よるX線光電子分光法(XPS)など複数の表面計測 技術によって、球体表面に存在する物質の種類、化 学組成、化学的結合状態、厚さなどを評価し、シリ コン単結晶の部分 (core) の体積と質量からその密度 を求める方法を開発した。これらの表面分析技術を 導入することによって、表面層が直径測定に与える 影響の標準不確かさを 0.2 nm 程度にまで低減させる ことに成功した 35)。温度測定や表面分析などの不確 かさを考慮した直径測定の標準不確かさは 0.6 nm で あり、水島ら38)による球体の質量測定や表面層の質 量測定 35)-37) の不確かさなど、全ての不確かさを含め ると、²⁸Si 同位体濃縮単結晶の密度測定の相対標準不 確かさは約 2.3×10^{-8} である。

3.3 格子定数の測定とその均一性の評価

X線干渉計によって X線の明滅を観測するためには、数ナノラジアン (nrad = 10^{-9} rad) の精度でアナライザーの角度を制御し、かつ、その移動距離を数ピコメートル (pm) の精度で測定する必要がある。このため、従来の X線干渉計では、精度の高い並行移動を実現するために金属の弾性変形を使ったヒンジメカニズム 10 を用いていた。しかし、その移動距離は最も大きい場合でも 0.1 mm 程度だったので、格子定数の測定精度を向上させることは困難だった。

この問題を解決するために、INRiM の Massa ら 39 は移動距離 50 mm の移動台の上に置かれた 30 個の圧電素子 (PZT) を利用し、アナライザーの動きを原子レベルの精度でセンシングして制御し、極めて高い精度での並行移動を実現しながら長い移動距離を得ることに成功した。これによって格子面間距離 220 の測定精度が大幅に向上し、 $^{1.7}$ × 10 の相対標準不確

かさで格子定数を測定することが可能になった。

結晶内の格子定数は必ずしも一様ではなく、不純物濃度などの影響によって格子定数は変化する。このため、X線干渉計の部分の測定だけから結晶全体の格子定数を評価することはできない。NMIJの早稲田ら 40 は高エネルギー加速器研究機構(KEK)で得られる放射光を利用し、自己参照型格子比較器を開発した。これによって、高い分解能で板状の結晶試料の格子定数の2次元分布を短時間で評価することが可能になった。その結果、格子定数の2次元分布の標準偏差は 5.5×10^{-9} であることが確かめられた。また、この評価技術は、異なる結晶試料間の格子比較にも利用されている。

4 プランク定数の測定方法

ワットバランス(watt balance)^{41),42)} は電流天びんとも呼ばれ、当初はアンペアの定義を実現するために考案された実験装置であるが、電圧は交流ジョセフソン効果、電気抵抗は量子ホール効果によって実現できるようになった現在では、電気標準の再現性が飛躍的に高まった。このため、電気標準を基準として、逆にキログラムの定義を実現することが試みられている。最近では原理発明者の名前に因んでキッブルバランス(Kibble balance)と呼ばれることも多い。

その測定原理を図8に示した。磁東密度Bの磁場中で長さLの導体に電流Iを流したときに導体に働く電磁力Fを測定し、次に、同一磁場中における同一導体を速度vで移動したときに生じる電圧(起電力)Uを測定する。このときの電気的仕事率UIは力学的仕事率Fvに厳密に等しくなる。この測定方法がワットバランス(仕事率天びん)法と呼ばれる由縁である。電圧Uは、ジョセフソン電圧 $U_{JI}=n_1f_1/K_J$ として測定することができる。ここで、 n_1 はシャピローステップの数を表す整数、 f_1 はジョセフソン接合素子に

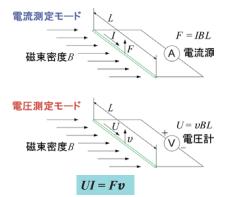


図8 キップルバランス法による仕事率の測定原理:電子力Fと速度vの積は電圧Uと電流Iの積に厳密に等しくなる。

照射するマイクロ波の周波数を表す。また、量子化ホール抵抗 $R_H(i) = R_K/i$ (i は整数) によって校正された標準抵抗の抵抗値を $R = bR_H$ (b は校正係数)として、この標準抵抗に電流 I を流し、この標準抵抗に生ずる電位差をジョセフソン電圧 $U_{12} = n_2 f_2/K_J$ として測定すれば、電気標準を基準として電流 I を計測することができる。このとき電気的仕事率は次式で表される。

$$UI = \frac{U_{\rm J1} U_{\rm J2}}{R} = \frac{i n_1 n_2 f_1 f_2}{b K_{\rm I}^2 R_{\rm K}} = h \frac{i n_1 n_2 f_1 f_2}{4b}$$
(4)

式 (4) において電気的仕事率 UI は力学的仕事率 Fv に 等しいので、重力加速度 g のもとで質量 m の物体に 加わる重力 mg と釣り合うように電磁力 F を制御すれば、プランク定数 h は次式から求められる。

$$h = \frac{4}{K_{\rm J}^2 R_{\rm K}} = \frac{4bFv}{i n_1 n_2 f_1 f_2} = mgv \frac{4b}{i n_1 n_2 f_1 f_2}$$
 (5)

式 (5) において、電磁力 F と速度 v は、質量、長さ、時間の測定から求められる。したがって、交流ジョセフソン効果と量子ホール効果を用いることにより、キッブルバランス法から SI 単位の定義にしたがってプランク定数 h を絶対測定することができる。キログラムの定義改定後には、逆にプランク定数 h を基準として式 (5) から物体の質量 m を求め、キログラムの新しい定義を実現する。

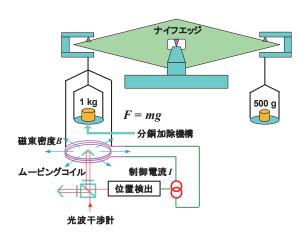
図9にラジアル磁場(中心から周囲に湧き出る磁 場)を用いた測定原理を示した。ラジアル磁場を用 いると、ムービングコイルの移動範囲にわたってほ ぼ均一な磁場が得られ、また、移動コイルを通過す る全磁束が、コイルの大きさや形によらずにほぼ一 定に保たれるので、安定性の高い測定が可能になる。 ムービングコイルとラジアル磁場を用いても UI = Fv という関係が保たれる。(a)の電流測定モードではコ イルに電流 I を流し、ムービングコイルが発生する電 磁力Fと重力mgが釣り合うように電流Iを制御する。 この時、ムービングコイル側(左)に1kgの分銅を 置き、補助コイル側(右)に500gの分銅を置いた状 態で、1 kg の分銅を加除すると、電流Iの向きを変え ることで1kgの質量差に相当する電磁力差を発生さ せることができるので、より少ない電流での測定が 可能になり、コイルでの発熱を抑えることができる。 また、電流1の向きを変えることで、電圧測定に伴う オフセットなどを相殺することができる。キッブル バランス法では絶対重力加速度計を用いたgの精密 測定も必要である。(b) の電圧測定モードでは、ムー ビングコイルが一定の速度 v で移動するように補助コ イルに流す電流を制御し、ムービングコイルの変位 を時間の関数としてレーザー干渉計で測定しながら、

ムービングコイルに生じる電圧Uを測定する。

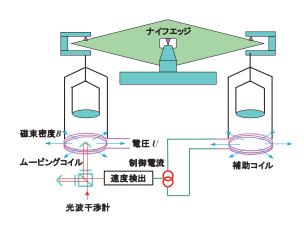
米国国立標準技術研究所(NIST)の Steiner ら 43 は この方法によって 3.6×10^{-8} の相対標準不確かさで h を測定し、IPK の質量安定性(5×10^{-8})超える精度 でh を測定することに世界で初めて成功した。その後、後述するように、カナダ国立研究機構(NRC)やフランス国立標準研究所(LNE)でもキッブルバランス法による高精度なデータが得られている。

5 プランク定数の決定

アボガドロ国際プロジェクトでは、 28 Si 同位体濃縮結晶の格子定数、密度、モル質量などの精密測定を行い、 2011 年から 2017 年かけて改良を施しながら、合計で 4 つの測定結果を発表した $^{28,44)-46}$ 。筆者ら 47



(a) 電流測定モード



(b) 電圧測定モード

図9 ラジアル磁場を用いたキッブルバランス法による仕事率の測定原理: (a) 磁束密度 B の磁場中にあるムービングコイルに流す電流 I を制御し、1 kg の物体に働く重力 mg と電磁力 F とを釣り合わせる。(b) このムービングコイルが同一の磁場中において一定速度 v で移動するよう補助コイルの電流を制御し、ムービングコイルに生じる電圧(誘導起電力) U を測定する。

はこれらのデータの共分散を評価し、アボガドロ国際プロジェクトで得られた $N_{\rm A}$ の値を最終的に以下のように評価した。

$$N_{\rm A} = 6.022\ 140\ 588(65) \times 10^{23}\ {\rm mol}^{-1}$$
 (6)

ここで、括弧内の数値は最後の桁における標準不確かさを表す。その相対標準不確かさは 1.1×10^{-8} である。

CODATA では 2017 年 7 月 1 日までに受理された論文に報告されているデータにもとづいて、h、e、k、 N_A の値を決定した。これを CODATA による 2017 年特別調整と呼んでいる。プランク定数 h については図 10 に示す 8 つのデータからキログラムの新しい定義に用いられる h の値が決定された $^{8),9}$ 。筆者もCODATA 基礎定数作業部会の委員の一人として今回のプランク定数の値と不確かさの評価を行った。これら 8 つのデータのうち、4 つはキッブルバランス法 $^{48),51}$ によって測定され、残りの 4 つはアボガドロ国際プロジェクト(IAC)において XRCD 法 $^{28),44),46}$ によって測定されたものあり、そのうちの 1 つは NMIJ単独 $^{46)}$ での測定結果である。CODATA では、これら8 つのデータの共分散を評価し、それらの重み付け平均から h の特別調整値を決定した。

さらに CODATA では音響気体温度計(acoustic gas thermometer: AGT) $^{52)}$ によるモル気体定数 R の測定結果など合計で 11 のデータからボルツマン定数 k の特別調整値を決定した。電気素量 e の特別調整値は以下の式

$$e = \sqrt{\frac{2\alpha h}{\mu_0 c}} \tag{7}$$

を用いて、アボガドロ定数 $N_{\rm A}$ の特別調整値は式 (1) を用いて h の特別調整値から決定された。

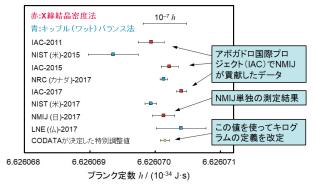


図 10 2017 年 7 月 1 日までに報告されたプランク定数 の測定結果と CODATA が決定したプランク定数の特別 調整値: エラーバーは標準不確かさを表す。

表 1 に CODATA による h、 e、 k、 N_A についての 2017 年特別調整の結果を示した。プランク定数の特別調整値の相対標準不確かさは 1.0×10^{-8} (1 億分の 1.0) である。これはプランク定数の測定の不確かさが IPK の質量の安定性である 5×10^{-8} (1 億分の 5) よりも十分に小さいことを表す。SI の新しい定義ではこれらの値は表 2 に示す通り、不確かさのない定数として定義された。今回のプランク定数の決定において、NMIJ は半数である 4 つのデータに貢献した。1889 年に IPK によって質量の単位が定義されて以来 130 年ぶりとなるキログラムの定義改定に、日本が大きく貢献する成果を残すことができた。

6 キログラムの新しい定義の実現方法

キッブルバランス法によってキログラムの新しい定義の実現する方法については4章で既に解説した。X線結晶密度法によってキログラムの新しい定義を実現する場合、²⁸Si同位体濃縮結晶の格子定数とモル質量は一度測定してしまえば、その結晶については、それらの値は変化しないので、NMIJでは²⁸Si同位体濃縮結晶球体の直径、体積、表面の測定からキログラムの定義を精度よく実現するための研究を行っている。

図 11 に示すように、球体の表面には酸化物(SiO₂)などの幾つかの層が存在する。これらの層の厚さは数ナノメートル、質量は約 100 μ g に及ぶので、キログラムの定義を実現する上では無視できない。このため SE³⁶⁾ や XPS³⁷⁾ などによって表面層の厚さと質量を評価することが必要である。表面層の質量を $m_{\rm SL}$ 、結晶部分の質量を $m_{\rm core}$ とすると、球全体の質量 $m_{\rm sphere}$ は式 (1) と (2) から次のように表される 171,191,241 。

表1 CODATA による 2017 年特別調整

基礎物理定数	値	相対標準 不確かさ
プランク定数 <i>h</i> 電気素量 <i>e</i>	6.626 070 150(69) × 10 ⁻³⁴ J s 1.602 176 6341(83) × 10 ⁻¹⁹ C	1.0×10^{-8} 5.2×10^{-9}
ボルツマン定数 k アボガドロ定数 N_{A}	$1.380 649 03(51) \times 10^{-23} \text{ J K}^{-1}$ $6.022 140 758(62) \times 10^{23} \text{ mol}^{-1}$	3.7×10^{-7} 1.0×10^{-8}

括弧内の数値は最後の標準不確かさを表す。

表2 SIの新しい定義で用いられる基礎物理定数

単位	記号	基礎物理定数	值
キログラム アンペア ケルビン モル	kg A K		6.626 070 15 × 10 ⁻³⁴ J s 1.602 176 634 × 10 ⁻¹⁹ C 1.380 649 × 10 ⁻²³ J K ⁻¹ 6.022 140 76 × 10 ²³ mol ⁻¹

 $m_{\rm sphere} = m_{\rm core} + m_{\rm SL}$

$$= \frac{2hR_{\infty}}{c\alpha^2} \frac{\sum_{i=28}^{30} x^{(i} \text{Si}) M^{(i} \text{Si})}{A_r(e)} \frac{8V_{\text{core}}}{a^3} - m_{\text{deficit}} + m_{\text{SL}} (8)$$

ここで、 $V_{\rm core}$ は光波干渉測定と表面分析から得られる 28 Si 同位体濃縮結晶球体の結晶部分の体積、 $A_{\rm r}(e)$ は電子の相対原子質量、 $m_{\rm deficit}$ は不純物や原子空孔などの 点欠陥の影響を表す。式 (8) において $2hR_{\infty}/(c\alpha^2)$ は電子の質量 $m_{\rm e}$ を表すので、この方法がプランク定数にトレーサブルであることを示す。今のところ、NMIJでは $24~\mu g$ の標準不確かさでプランク定数からキログラムの新しい定義を実現することに成功している 35 。

7 キログラムの新しい定義がもたらす もの

キログラムの新しい定義がもたらす恩恵として最も大きなものは、BIPM に保管されている IPK に頼ることなく、技術さえあれば誰もがプランク定数を基準として質量の基準をもつことができるようになるこということである。これは 1983 年に長さの定義が光速度に移行し、光周波数さえ測れれば誰もが長さの基準をもつことができるようになったのと同じである。

キログラム、アンペア、ケルビン、モルの定義が 改定されると、h、e、k、N_A は不確かさのない定数に

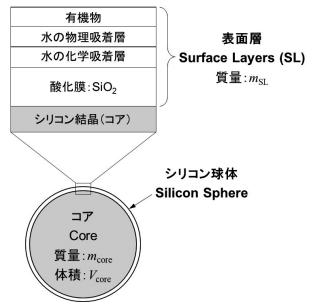


図 11 シリコン単結晶球体の表面には酸化膜(SiO2)など厚さの合計が $1 \text{ nm} \sim 2 \text{ nm}$ の層(surface layer: SL)が存在する:表面分析によってこれらの厚さと質量を評価し、結晶部分(core)の体積 V_{core} から X 線結晶密度法によって core の部分の質量 m_{core} を求め、それに表面層の質量 m_{SL} を加えて、シリコン結晶球体全体の質量 m_{sobere} が求められる。

なり、これに応じて他の多くの基礎物理定数の値と不確かさも変化する。表 3 に代表的な基礎物理定数の不確かさをまとめた。今回の SI 定義改定によって K_J や R_K のように不確かさがゼロになるものや、電子質量 m_e のように不確かさが大幅に小さくなるものもあるが、磁気定数(真空の透磁率) μ_0 や炭素 12 C のモル質量 $M(^{12}$ C) のように、これまで不確かさのない定数として扱われてきたものが測定量(measurand)になり、微細構造定数 α やリュードベリ定数 R_{∞} などの値に応じて変化する変数になるものもある $^{16-19}$ 。

従来のキログラムの定義では1kgという特定の基 準に縛られていたので、そこからの拡張として質量 の測定範囲を広げる必要があったが、その基準がプ ランク定数に移行したので、任意の質量を実現する ことが可能になる。現在の質量標準で実用化されて いる最も小さい分銅は 50 μg であり、質量が小さくな るほど分銅の質量校正の相対不確かさは増大するの で、この分銅を使って校正される天びんの目盛りの 最小不確かさは100 ng程度である。新しい定義では 分銅に頼る必要がないので、プランク定数にトレー サブルな計測技術さえ開発すれば、さらに小さい領域 の質量を測ることも可能になる。このような研究事 例としては、電圧天びん(voltage balance)を使った ナノグラム領域での質量計測 17,53)-55) や微小トルク計 測⁵⁶⁾などが挙げられる。これらの測定方法は h と e を頂点とする電気標準にトレーサブルなので、プラ ンク定数にもとづく微小量の計測技術として用いる ことができる。このような計測技術は例えば新薬の 開発や環境中の微粒子の質量計測、インクジェット 技術、半導体デバイスなどの薄膜の質量評価などを

通じてナノテクノジーなどに広く貢献するものと期 待されている⁵⁷⁾。

参考文献

- T. Quinn: The Kilogram: The Present State of Our Knowledge, IEEE Trans. Instrum. Meas., 40, 81/85 (1991)
- G. Girard: The Third Periodic Verification of National Prototypes of the Kilogram (1988-1992), *Metrologia*, 31, 317/336 (1994)
- 3) Michael Stock, Pauline Barat, Richard S. Davis, Alain Picard and Martin J. T. Milton: Calibration campaign against the international prototype of the kilogram in anticipation of the redefinition of the kilogram part I: comparison of the international prototype with its official copies, *Metrologia*, **52**, 310/316 (2015)
- 4) P. J. Mohr, B. N. Taylor and D. B. Newell: CODATA recommended values of the fundamental physical constants: 2014, Rev. Mod. Phys., **88**, 035009 (2016)
- 5) N. Jones: Five experiments as hard as finding the Higgs, *Nature*, **481**, 14/17 (2012)
- 6) I. Mills, P. Mohr, T. Quinn, B. Taylor and E. Williams: Redefinition of the kilogram, ampere, kelvin and mole: a proposed approach to implementing CIPM recommendation 1 (CI-2005), *Metrologia*, **43**, 227/246 (2006)
- P. Becker, P. De Bièvre, K. Fujii, M. Gläser, B. Inglis, H. Luebbig and G. Mana: Considerations on future redefinitions of the kilogram, the mole and of other units, *Metrologia*, 44, 1/14 (2007)
- 8) D. Newell, F. Cabiati, J. Fischer, K. Fujii, S. Karshenboim, H. S. Margolis, E. de Mirandes, P. J. Mohr, F. Nez, K. Pachucki, T. J. Quinn, B. N. Taylor, M. Wang, B. M. Wood and Z. Zhang: The CODATA 2017 Values of h, e, k, and NA for the Revision of the SI, *Metrologia*, 55, L13/ L16 (2018)
- 9) P. Mohr, D. Newell, B. Taylor and E. Tiesinga: Data and analysis for the CODATA 2017 special fundamental

表3 SIの定義改定が基礎物理定数の不確かさに与える影響

基礎物理定数	記号	(a) 従来の定義	(b) $u_{\rm r} \times 10^9$	(c) 新しい定義	(b) $u_{\rm r} \times 10^9$
ジョセフソン定数	K_{J}	2e/h	5.2		0
フォンクリッツィング定数	$R_{ m K}$	h/e^2	0.23		0
モル気体定数	R	$N_{ m A} k$	370		0
ファラデー定数	F	$N_{\mathrm{A}}e$	370		0
シュテファン - ボルツマン定数	σ	$2\pi^5 k^4/(15 h^3 c^2)$	1500		0
電子質量	$m_{ m e}$	$2hR_{\infty}/(c\alpha^2)$	10		0.45
¹² C の原子質量	$m(^{12}C)$	$12m_{\rm u} = M(^{12}{\rm C})/N_{\rm A}$	10		0.45
統一原子質量定数	$m_{ m u}$	$m(^{12}C)/12$	10		0.45
微細構造定数	α	$\mu_0 c e^2 / (2h)$	0.23		0.23
国際キログラム原器の質量	m(K)	1 kg	0		10
磁気定数 (真空の透磁率)	μ_0	$4\pi \times 10^{-7} \text{ N A}^{-2}$	0	$2\alpha h/(ce^2)$	0.23
電気定数 (真空の誘電率)	ε_0	$1/(\mu_0 c^2)$	0		0.23
水の三重点における熱力学温度	$T_{ m TPW}$	273.16 K	0		370
¹² C のモル質量	$M(^{12}C)$	12 g/mol	0	$2N_{\rm A}hR_{\infty}[m(^{12}{\rm C})/m_{\rm e}]/(c\alpha^2)$	0.45

⁽a) CODATA が 2017 年特別調整を実施した時点での状態

⁽b) u_rは相対標準不確かさを表す。

⁽c) 2019年5月20日にSIの定義が改定された時点での状態。(a)に示した定義から変更のある場合のみ新しい定義を示した。

- constants adjustment, Metrologia, 55, 125/146 (2018).
- 10) 中山貫,藤井賢一:シリコン格子定数の絶対測定と アボガドロ定数の決定,応用物理,**62**,245/252 (1993)
- 11) 藤井賢一:質量標準と基礎物理定数一質量の単位の定義をめぐる最近の動き,応用物理,68,656/662 (1999)
- 12) 藤井賢一, 大苗敦: 基礎物理定数の新しい推奨値— アボガドロ定数とプランク定数の決定をめぐる最近 の動き, 日本物理学会誌, **57**, 239/246 (2002)
- 13) 藤井賢一: キログラムの再定義―単位の普遍性をめ ざして―、〈はかる〉 科学, 第2章, 中公新書, 坂上孝・ 後藤武編著 (2007)
- 14) 藤井賢一: 国際単位系 SI―普遍定数に基づく再定義 の動き,数理科学,**599**,16/21 (2013)
- 15)藤井賢一:質量標準の現状とキログラム (kg) の定義改定をめぐる最新動向,計測と制御,53,144/149 (2014)
- 16)藤井賢一:キログラムの定義改定に向けた質量標準の開発動向、日本物理学会誌、69、604/612 (2014)
- 17) 藤井賢一: プランク定数を決める! ―キログラムの 定義改定へ―, 応用物理, **87**, 774/779 (2018)
- 18) 藤井賢一、島岡一博: 進化する単位―物理定数にも とづくキログラムとモルの新しい定義―, 現代化学, **576**, 29/36 (2019)
- 19) 藤井賢一: プランク定数にもとづくキログラムの新 しい定義, 日本物理学会誌, 74, 700/708 (2019)
- 20) 遠藤忠: 新しい電気の量子基準-ジョセフソン効果 電圧標準と量子ホール効果抵抗標準-,応用物理, **59**,712/724 (1990)
- 21) 金子晋久:超伝導技術を用いた量子電気標準の進展, 応用物理,81,102/108 (2012)
- 22) The International System of Units, 8th edition, Bureau International des Poids et Mesures (2006)
- 23)「国際文書第8版(2006)/日本語版,国際単位系(SI)」, 安心・安全を支える世界共通のものさし,訳編者: 産業技術総合研究所計量標準総合センター,第1版, 日本規格協会(2007)
- 24) K. Fujii, H. Bettin, P. Becker, E. Massa, O. Rienitz, A. Pramann, A. Nicolaus, N. Kuramoto, I. Busch, M. Borys: Realization of the kilogram by the XRCD method, *Metrologia*, 53, A19/A45 (2016)
- 25) U. Bonse and M. Hart: Principles and Design of Laue-Case X-Ray Interferometers, *Z. Phys.*, **188**, 154/164 (1965)
- 26) S. Valkiers, G. Mana, K. Fujii and P. Becker: Si primary standards for the calibration of ion-current ratios in the molar-mass measurement of natural Si single crystals, *Metrologia*, 48, S26/S31 (2011)
- 27) B. Andreas, Y. Azuma, G. Bartl, P. Becker, H. Bettin, M. Borys, I. Busch, M. Gray, P. Fuchs, K. Fujii, H. Fujimoto, E. Kessler, M. Krumrey, U. Kuetgens, N. Kuramoto, G. Mana, P. Manson, E. Massa, S. Mizushima, A. Nicolaus, A. Picard, A. Pramann, O. Rienitz, D. Schiel, S. Valkiers and A. Waseda: Determination of the Avogadro Constant by Counting the Atoms in a ²⁸Si Crystal, *Phys. Rev. Lett.*, 106 030801 (2011)
- 28) B. Andreas, Y. Azuma, G. Bartl, P. Becker, H. Bettin, M. Borys, I. Busch, P. Fuchs, K. Fujii, H. Fujimoto, E. Kessler, M. Krumrey, U. Kuettgens, N. Kuramoto, G. Mana, E. Massa, S. Mizushima, A. Nicolaus, A. Picard,

- A. Pramann, O. Rienitz, D. Schiel, S. Valkiers, A. Waseda and S. Zakel: Counting the atoms in a ²⁸Si crystal for a new kilogram definition, *Metrologia*, **48**, S1/S13 (2011)
- 29) P. Becker, D. Shiel, H.-J. Pohl, A. K. Kaliteevski, O. N. Godisov, M. F. Churbanov, G. G. Devyatykh, A. V. Gusev, A. D. Bulanov, S. A. Adamchik, V. A. Gavva, I. D. Kovalev, N. V. Abrosimov, B. Hallmann-Seiffert, H. Riemann, S. Valkiers, P. Taylor, P. De Bièvre and E. Dianov: Large-scale production of highly enriched ²⁸Si for the precise determination of the Avogadro constant, *Meas. Sci. Technol.*, 17, 1854/1860 (2006)
- 30) A. Pramann, O. Rienitz, D. Shiel, J. Schlote, B. Güttler and S. Valkiers: Molar mass of silicon highly enriched in ²⁸Si determined by IDMS, *Metrologia*, **48**, S20/S25 (2011)
- 31) T. Narukawa, A. Hioki, N. Kuramoto and K. Fujii: Molarmass measurement of a ²⁸Si-enriched silicon crystal for determination of the Avogadro constant, *Metrologia*, **51**, 161/168 (2014)
- 32) A. Leistner and W. Giardini: Fabrication and sphericity measurements of single-crystal silicon spheres", *Metrologia*, **31**, 231/243 (1994)
- 33) D. Johnson: Geometrical considerations in the measurement of the volume of an approximate sphere," *J. Res. Natl. Bur. Stand. Sect. A*, **78**, 41/48 (1974).
- 34) N. Kuramoto, K. Fujii, and K. Yamazawa: Volume measurements of ²⁸Si spheres using an interferometer with a flat etalon to determine the Avogadro constant, *Metrologia*, **48**, S83/S95 (2011)
- 35) N. Kuramoto, L. Zhang, S. Mizushima, K. Fujita, Y. Azuma, A. Kurokawa and K. Fujii: Realization of the kilogram based on the Planck constant at NMIJ, *IEEE Trans. Instrum.* Meas. 66, 1267/1274 (2017)
- 36) K. Fujita, N. Kuramoto, Y. Azuma, S. Muzushima and K. Fujii: Surface layer analysis of a ²⁸Si-enriched sphere both in vacuum and in air by ellipsometry, *IEEE Trans. Instrum.* Meas. 66, 1283/1288 (2017)
- 37) L. Zhang, Y. Azuma, A. Kurokawa and K. Fujii: Thickness measurement of oxide and carbonaceous layers on a ²⁸Si sphere by XPS, *IEEE Trans. Instrum.* Meas. **66**, 1297/1303 (2017)
- 38) S. Mizushima, N. Kuramoto, L. Zhang and K. Fujii: Mass measurement of ²⁸Si-enriched spheres at NMIJ for the determination of the Avogadro constant, *IEEE Trans. Instrum.* Meas., **66**, 1275/1282 (2017)
- 39) E. Massa, G. Mana1, U. Kuetgens and L. Ferroglio: Measurement of the {2 2 0} lattice-plane spacing of a ²⁸Si x-ray interferometer, *Metrologia*, 48, S37/S43 (2011)
- 40) A. Waseda H. Fujimoto, X. Zhang, N. Kuramoto and K. Fujii: Uniformity evaluation of lattice spacing of ²⁸Si single crystals, *IEEE Trans. Instrum.* Meas., 66, 1304/1308 (2017)
- 41) M. Stock: Watt balance experiments for the determination of the Planck constant and the redefinition of the kilogram, *Metrologia*, **50**, R1/R6 (2013)
- 42) I. Robinson and S. Schlamminger: The watt or Kibble balance: a technique for implementing the new SI definition of the unit of mass, *Metrologia*, **53**, A46/A74 (2016)
- 43) R. L. Steiner, E. R. Williams, R. Liu and D. B. Newell: Uncertanity improvements of the NIST electronic

- kilogram, IEEE Trans. Instrum. Meas., 56, 592/596 (2007)
- 44) Y. Azuma, P. Barat, G. Bartl, H. Bettin, M. Borys, I. Busch, L. Cibik, G. Agostino, K. Fujii, H. Fujimoto, A. Hioki, M. Krumrey, U. Kuetgens, N. Kuramoto, G. Mana, E. Massa, R. Meess, S. Mizushima, T. Narukawa, A. Nicolaus, A. Parmann, S. Rabb, O. Rientiz, C. Sasso, M. Stock, R. Vocke, A. Waseda, S. Wundrack, S. Zakel: Improved measurement results for the Avogadro constant using a ²⁸Si-enriched crystal, *Metrologia*, 52, 360/375 (2015)
- 45) G. Bartl, P. Becker, B. Beckhoff, H. Bettin, E. Beyer, M. Borys, I. Busch, L. Cibik, G. D'Agostino, E. Darlatt, M. Di Luzio, K. Fujii, H. Fujimoto, K. Fujita, M. Kolbe, M. Krumrey, N. Kuramoto, E. Massa, M. Mecke, S. Mizushima, M. Muller, T. Narukawa, A. Nicolaus, A. Pramann, D. Rauch, O. Rienitz, C. P. Sasso, A. Stopic, R. Stosch, A. Waseda, S. Wundrack, L. Zhang, X. W. Zhang: A new ²⁸Si single crystal: counting the atoms for the new kilogram definition, *Metrologia*, 54, 693/715 (2017)
- 46) N. Kuramoto, S. Mizushima, L. Zhang, K. Fujita, Y. Azuma, A. Kurokawa, S. Okubo, H. Inaba, K. Fujii: Determination of the Avogadro constant by the XRCD method using a ²⁸Si-enriched sphere, *Metrologia*, 54, 716/729 (2017)
- 47) K. Fujii, E. Massa, H. Bettin, N. Kuramoto, G. Mana: Avogadro constant measurements using enriched ²⁸Si monocrystals, *Metrologia*, **55**, L1/L4 (2018)
- 48) S. Schlamminger, R. Steiner, D. Haddad, D. Newell, F. Seifert, L. Chao, R. Liu, E. Williams and J. Pratt1: A summary of the Planck constant measurements using a watt balance with a superconducting solenoid at NIST, *Metrologia*, 52, L5/L8 (2015)
- 49) B. Wood, C. Sanchez, R. Green and J. Liard: A summary of the Planck constant determinations using the NRC Kibble balance, *Metrologia*, 54, 399/409 (2017)
- 50) D. Haddad, F. Seifert, L. Chao1, A. Possolo, D. Newell, J. Pratt, C. Williams and S. Schlamminger: Measurement of the Planck constant at the National Institute of Standards and Technology from 2015 to 2017, *Metrologia*, 54, 633/641 (2017)
- 51) M. Thomas, D. Ziane, P. Pinot, R. Karcher, A. Imanaliev, F. Pereira Dos Santos, S. Merlet, F. Piquemal and P. Espel: A determination of the Planck constant using the LNE Kibble balance in air, *Metrologia*, 54, 468/480 (2017)
- 52) L. Pitre, F. Sparasci, L. Risegari, C. Guianvarc'h, C. Martin, M. Himbert, M. Plimmer, A. Allard, B. Marty, P. Giuliano Albo, B. Gao, M. Moldover and J. Mehl: New measurement of the Boltzmann constant k by acoustic thermometry of helium-4 gas, *Metrologia*, 54, 856/873 (2017)
- 53) J. R. Pratt, J. A. Kramar, D. B. Newell, D. T. Smith: Review of SI traceable force metrology for instrumented indentation and atomic force microscopy, *Meas. Sci. Technol.*, 16, 2005, 2129/2137 (2005)
- 54) G. Shaw, J. Stirling, J. Kramar, A. Moses, P. Abbott, R. Steiner, A. Koffman, J. Pratt, Z. Kubarych: Milligram mass metrology using an electrostatic force balance, *Metrologia*, **53**, A86/A94 (2016)
- 55) G. Shaw: Current state of the art in small mass and force metrology within the International System of Units, Meas.

- Sci. Technol., 29, 072001 (2018)
- 56) A. Nishino, K. Ueda and K. Fujii: Design of a new torque standard machine based on a torque generation method using electromagnetic force, *Meas. Sci. Technol.*, **29**, 025005 (2017)
- 57) 藤井賢一: プランク定数にもとづくキログラムの新しい定義がもたらすもの, 計測と制御, **58**, 336/340 (2019)