

NMIJ国際計量標準シンポジウム、2018年1月24日、TKP大手町カンファレンスセンター

# プランク定数にもとづくキログラムの新しい定義

産業技術総合研究所(AIST)

計量標準総合センター(NMIJ)

工学計測標準研究部門

藤井 賢一

- 物理量の基準: SI基本単位の定義
- 2018年: キログラム、アンペア、ケルビン、モルの定義改定  
キログラムについては130年ぶりの改定
- キログラムの定義改定に至った経緯
- アボガドロ定数・プランク定数の測定結果
- 新しい定義がもたらすもの

# 現在の定義：国際キログラム原器 International Prototype of the Kilogram (IPK)

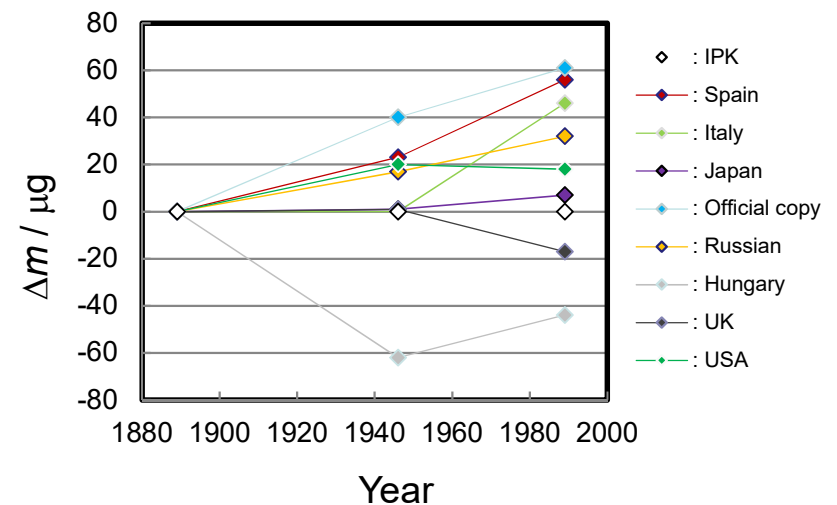
- 1790年代: ラボアジェによる純水1リットルの質量測定  
確定キログラム原器(白金100%)
- 1889: 第1回国際度量衡総会 (CGPM)  
質量の単位: IPK(白金90%、イリジウム10%)
- 1988: 第3回定期校正 (IPKの表面洗浄)  
60  $\mu\text{g}$ の質量減少、相対変化:  $6 \times 10^{-8}$   
IPKの質量の長期安定性:  $5 \times 10^{-8}$



国立公文書館に保管されている確定キログラム原器



BIPMが保管するIPK



過去100年間に渡るIPKと各国原器との質量比較

# キログラムの定義改定案

## ➤ 再定義例(1)

キログラムは基底状態にある静止した自由な $5.018 \dots \times 10^{25}$  個の炭素原子 $^{12}\text{C}$ の質量に等しい

$$\text{アボガドロ定数 } N_A = 6.022 \dots \times 10^{23} \text{ mol}^{-1}$$

## ➤ 再定義例(2)

アインシュタインの関係式

$$E = mc^2 = h\nu$$

$$\nu = mc^2/h$$

キログラムは周波数が $[(299\,792\,458)^2/6.626 \dots] \times 10^{34}$  ヘルツの光子のエネルギーと等価な物体の質量である

$$\text{光速度 } c = 299\,792\,458 \text{ m/s (定義)}$$

$$\text{プランク定数 } h = 6.626 \dots \times 10^{-34} \text{ J s}$$

# アボガドロ定数とプランク定数との関係

基礎物理定数の関係式  $m_e = 2hR_\infty/(\alpha^2 c)$



$$N_A = \frac{M_e}{m_e} = \frac{cM_e \alpha^2}{2R_\infty h}$$



$M_e$  電子1モルの質量

$m_e$  電子1個あたりの質量

$c$  光速度

$\alpha$  微細構造定数

$R_\infty$  リュードベリ定数

$cM_e \alpha^2/(2R_\infty)$  の相対標準不確かさ:  $4.5 \times 10^{-10}$

# アボガドロ定数の測定方法

## X線結晶密度法

格子定数:  $a$

密度:  $\rho$

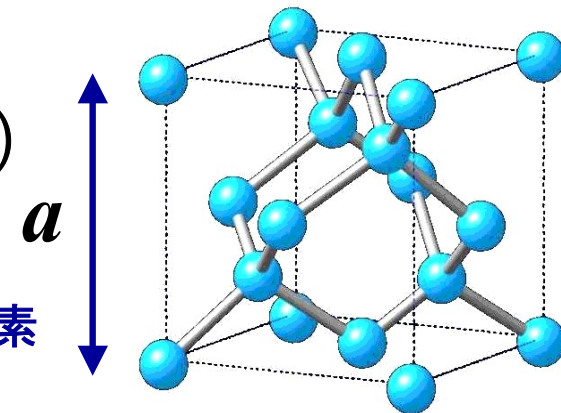
モル質量:  $M$  ( $^{28}\text{Si}$ ,  $^{29}\text{Si}$ ,  $^{30}\text{Si}$ の割合)

同位体: 陽子の数(原子番号)は同じでも  
陽子と中性子の和(質量数)が異なる元素

単位格子の密度:  $(8M/N_A)/a^3 = \rho$

$$N_A = 8M/(\rho a^3)$$
$$= 6.022 \cdots \times 10^{23} \text{ mol}^{-1}$$

従来はモル質量の測定精度がボトルネック



立方晶の単位格子  
Unit cell of a cubic crystal

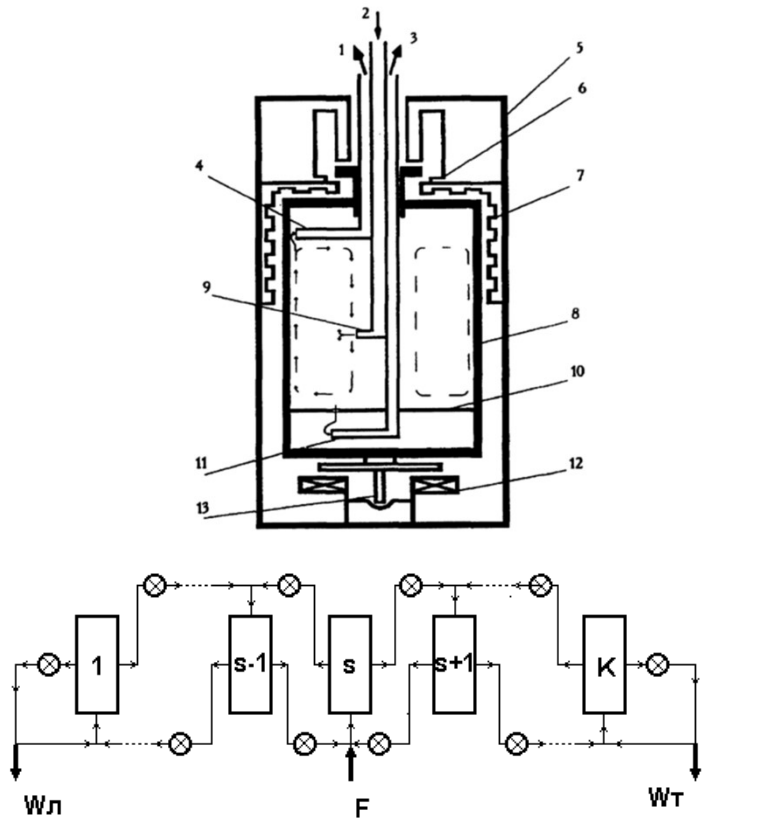
# アボガドロ国際プロジェクト

- 共同研究期間：2004-2017
- シリコン同位体濃縮

	自然界の Si	同位体濃縮 Si
$^{28}\text{Si}$	92 %	99.994 %
$^{29}\text{Si}$	5 %	0.005 %
$^{30}\text{Si}$	3 %	0.001 %
$\Delta M/M$	$1 \times 10^{-7}$	$1 \times 10^{-8}$

- BIPM (国際度量衡局), INRIM (伊), IRMM (EU), NIST (米), NMIA (豪), NMIJ (日), NPL (英), and PTB (独)
- 目標:  $\Delta N_A/N_A = 2 \times 10^{-8}$

# ロシアの研究機関によるシリコン同位体濃縮



Denominations:

WЛ - outlet of light fraction of cascade

WT - outlet of heavy fraction of cascade

F - feed flow (inlet point "S")

⊗ - devices for regulation and control of the flow system

1 / K - "accumulator" of light / heavy impurities of cascade

stage number "S"

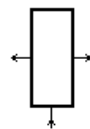
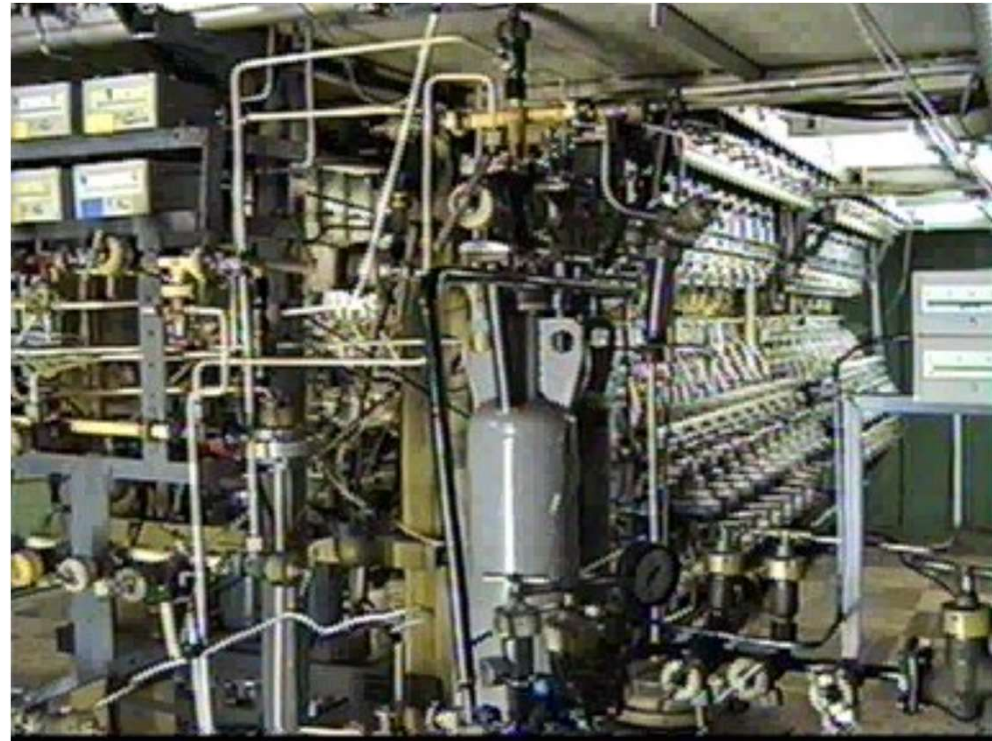


Fig.2 Cascad of Gas Centrifuges



カスケード型の遠心分離システム

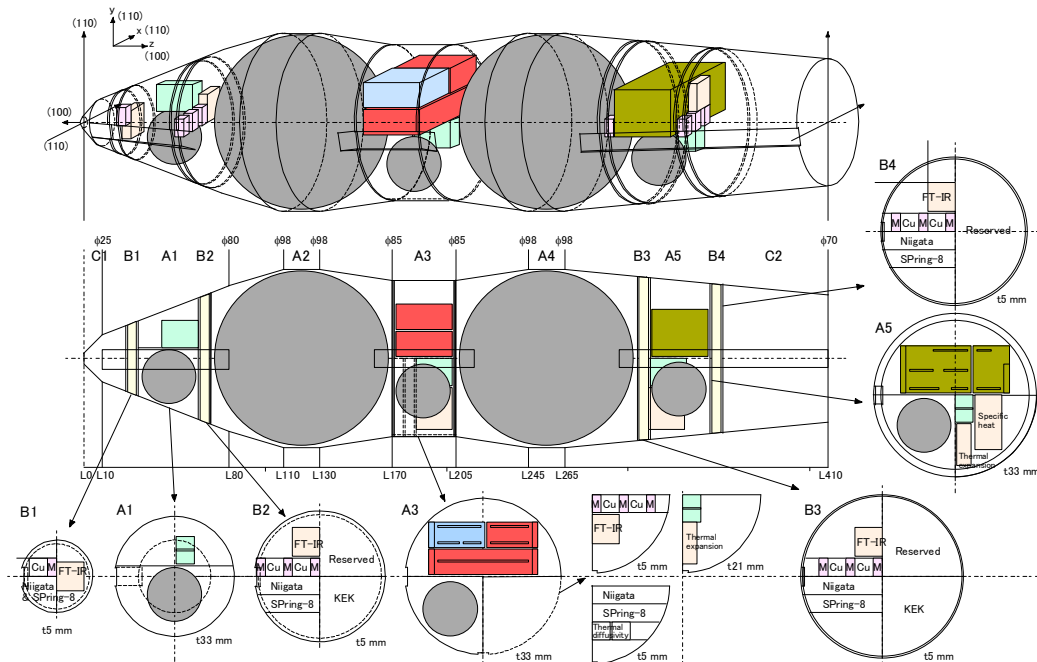
$^{28}\text{SiF}_4$ ガス: 28 kg

# 5 kgの<sup>28</sup>Si同位体濃縮結晶



ドイツIKZで引き上げられた<sup>28</sup>Si同位体濃縮結晶Avo28  
(FZ法、2007年5月)

Cutting plan of silicon-28 ingot



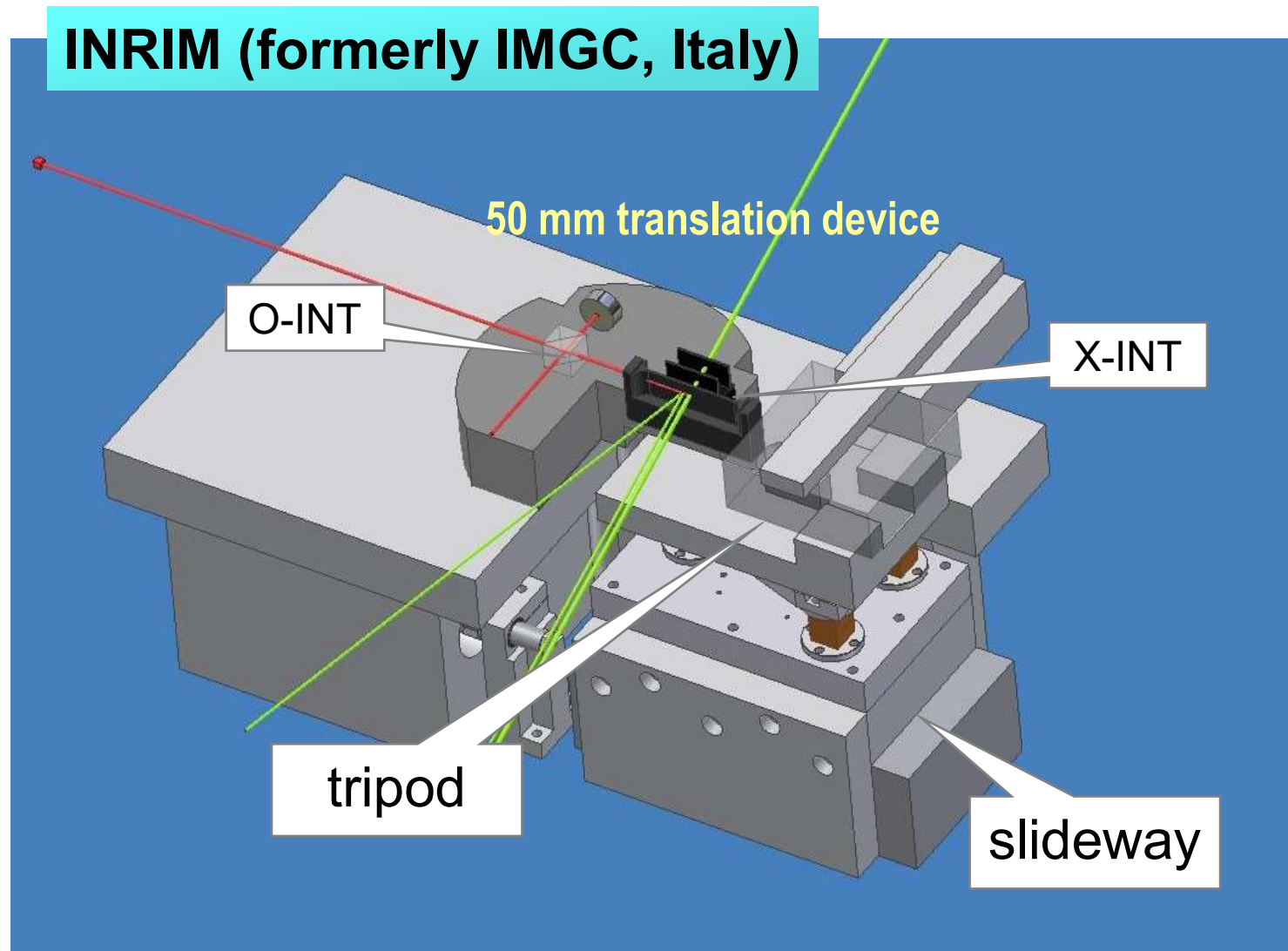
濃縮度: 99.99 %

炭素濃度 <math> < 1.0 \times 10^{15} / \text{cm}^3 </math>

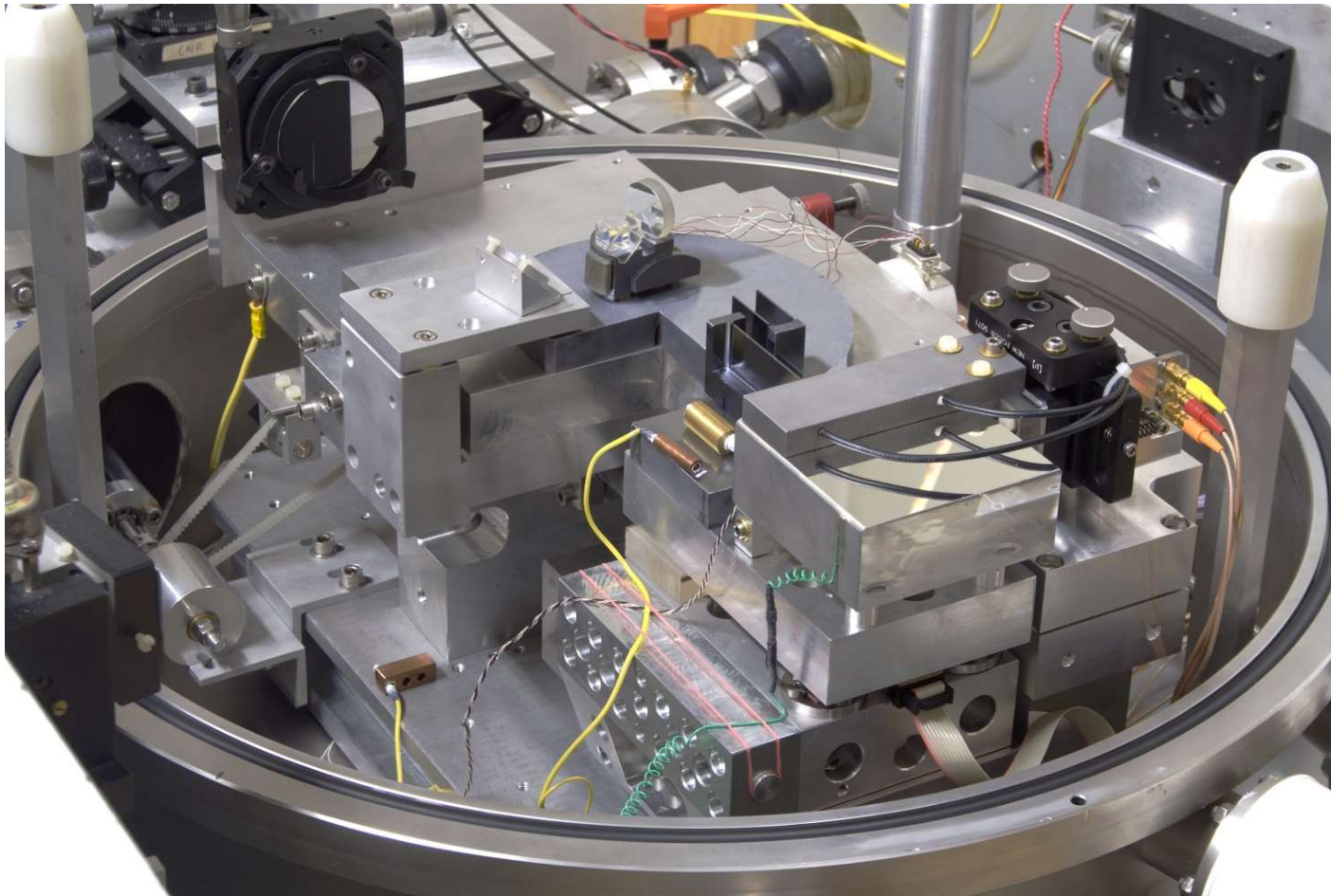
酸素濃度 <math> < 3.7 \times 10^{14} / \text{cm}^3 </math>



# イタリアのグループが開発した新しいX線干渉計



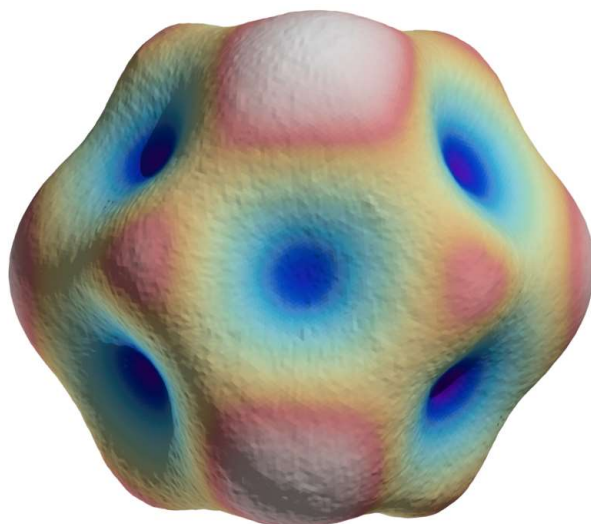
# INRIM(伊)のX線干渉計による $^{28}\text{Si}$ 格子定数の測定



格子定数の測定の不確かさ:  $1.8 \times 10^{-9}$

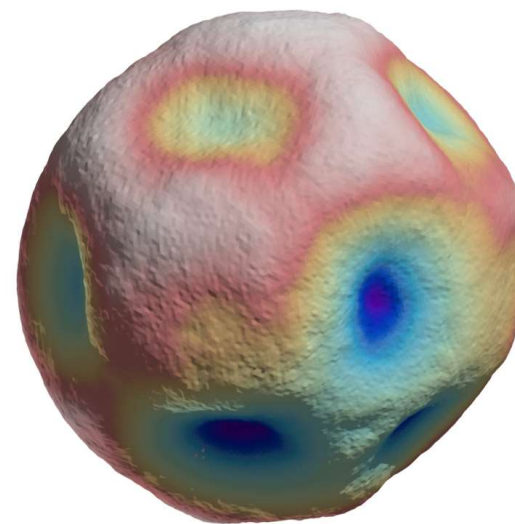
# 1 kgの $^{28}\text{Si}$ 濃縮シリコン球体の真球度

Avo28-S5



AVO28-S5c,  $(p-v)_{\text{diameter}} = 69 \text{ nm}$

Avo28-S8

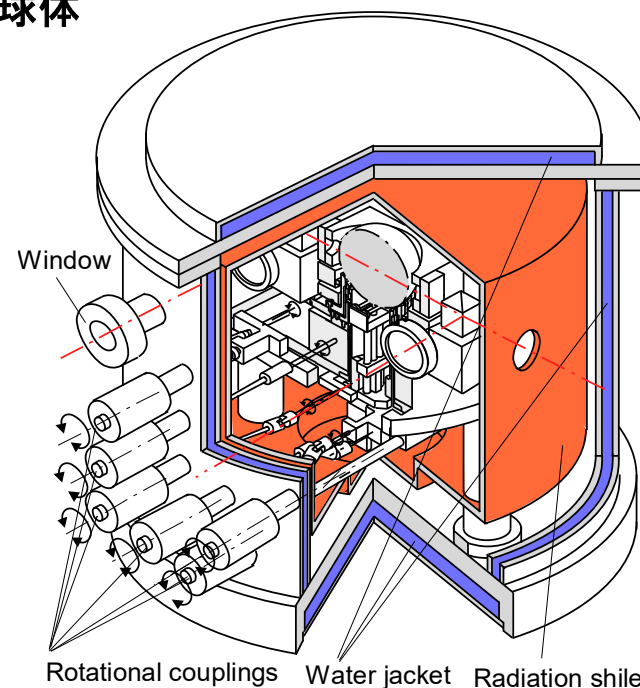
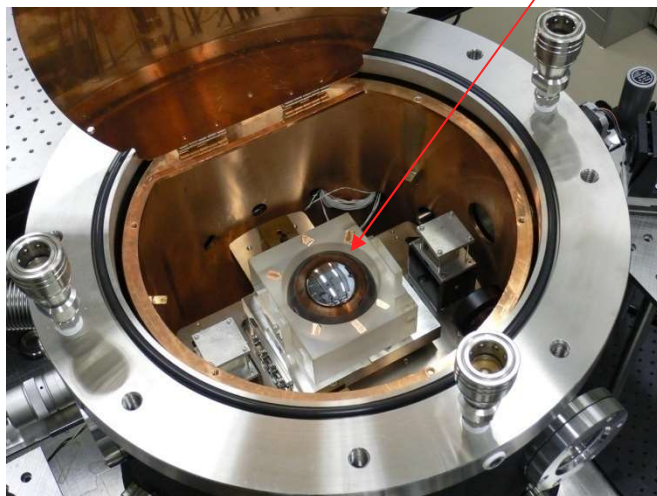


AVO28-S8c,  $(p-v)_{\text{diameter}} = 38 \text{ nm}$

質量1 kg、直径94 mm、凹凸の標準偏差: 5 nm

# NMIJ (産総研) のレーザ干渉計によるシリコン球体の直径測定

## 単結晶シリコン球体



温度の均一性と安定性 < 1 mK

約1000方位からの直径測定

直径測定の不確かさ: 0.5 nm

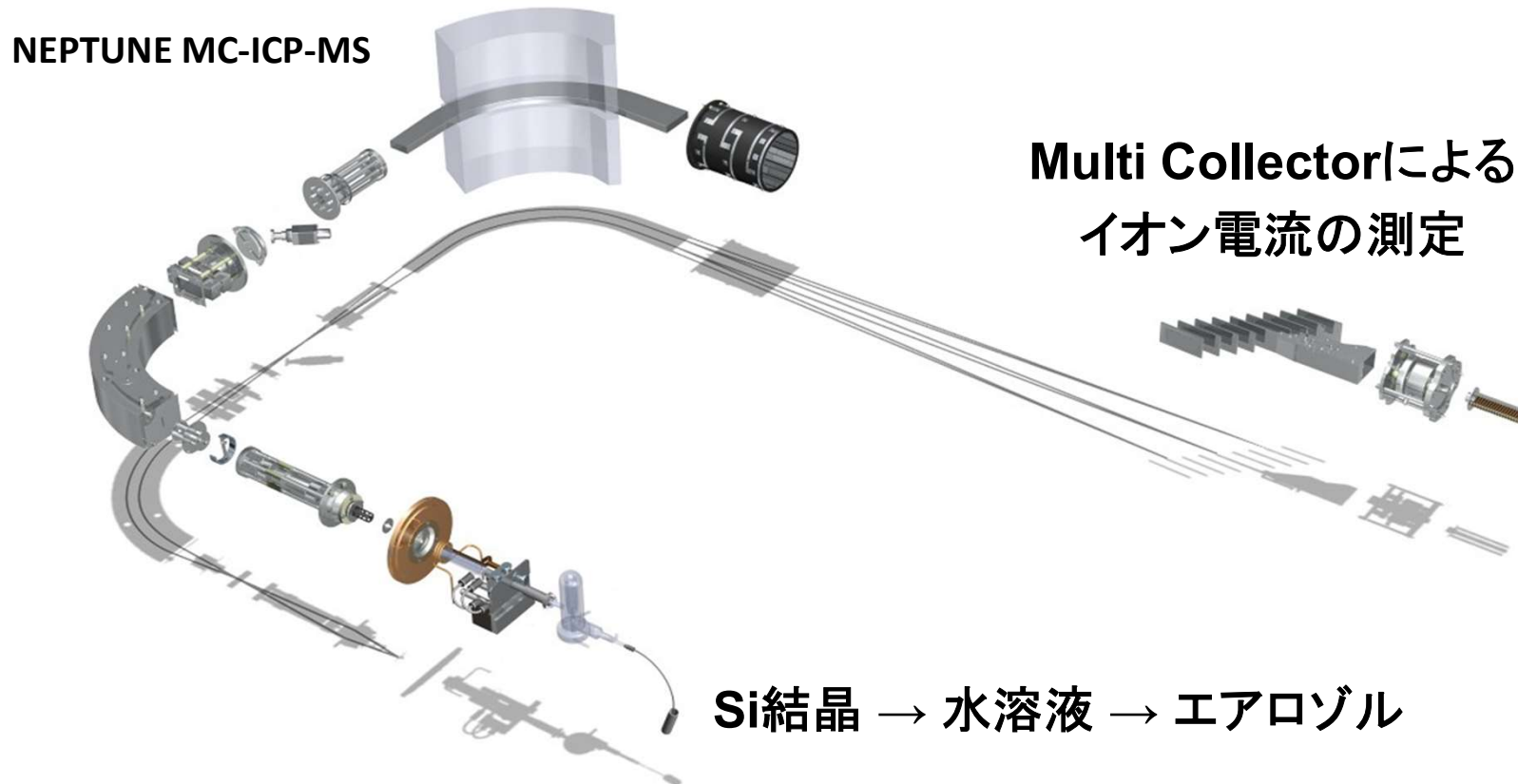
表面酸化膜の評価: SE, XRR, XPS, XRF

体積の測定の不確かさ:  $2.0 \times 10^{-8}$



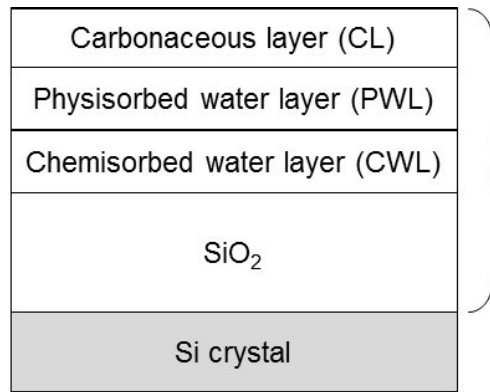
# 同位体希釈分析法による $^{28}\text{Si}$ のモル質量の測定

Inductively Coupled Plasma (ICP): 誘導結合プラズマ



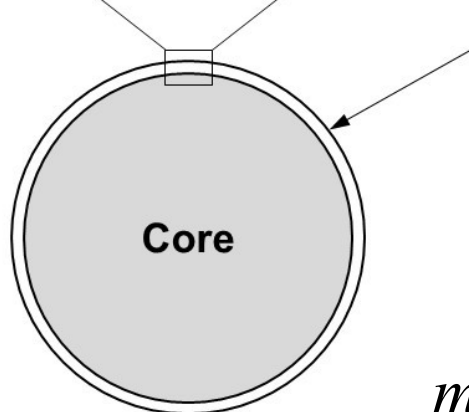
モル質量の測定の不確かさ:  $5.6 \times 10^{-9}$

# 新しい定義にもとづくキログラムの実現方法



Surface layers

シリコン球の質量:  $m_{\text{sphere}} = m_{\text{core}} + m_{\text{SL}}$



Silicon sphere

電子の質量

質量比

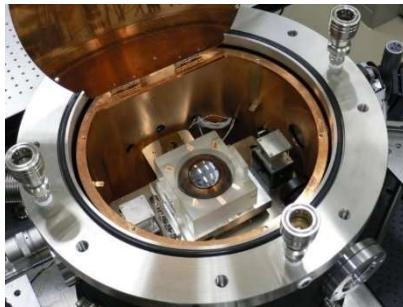
シリコン原子の数

不純物と点欠陥の影響

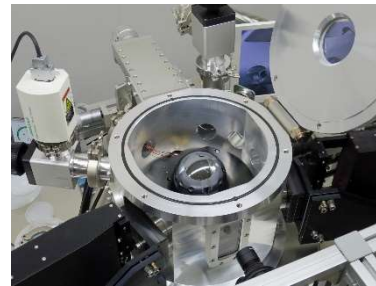
$$m_{\text{core}} = \frac{2hR_{\infty}}{c\alpha^2} \cdot \frac{\sum_i f_i A_r(^i\text{Si})}{A_r(\text{e})} \cdot \frac{8V_{\text{core}}}{a^3} - m_{\text{deficit}}$$

# 産総研におけるキログラムの実現方法

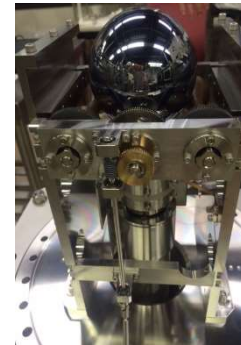
シリコン球の直径及び体積の測定



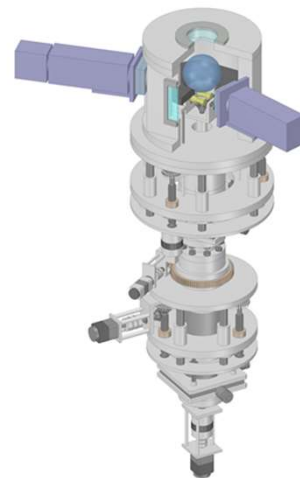
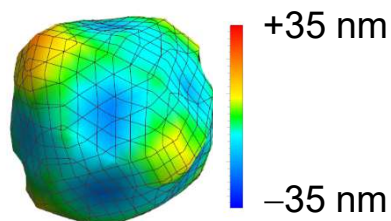
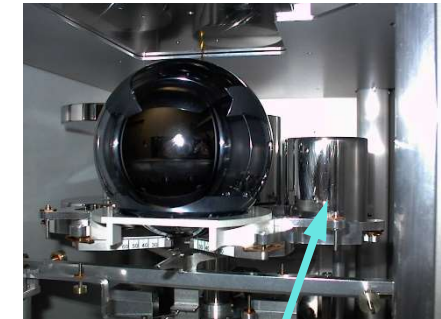
空気中と真空中におけるエリプソメトリー



X線光電子分光分析(XPS)



空気中と真空中における質量比較

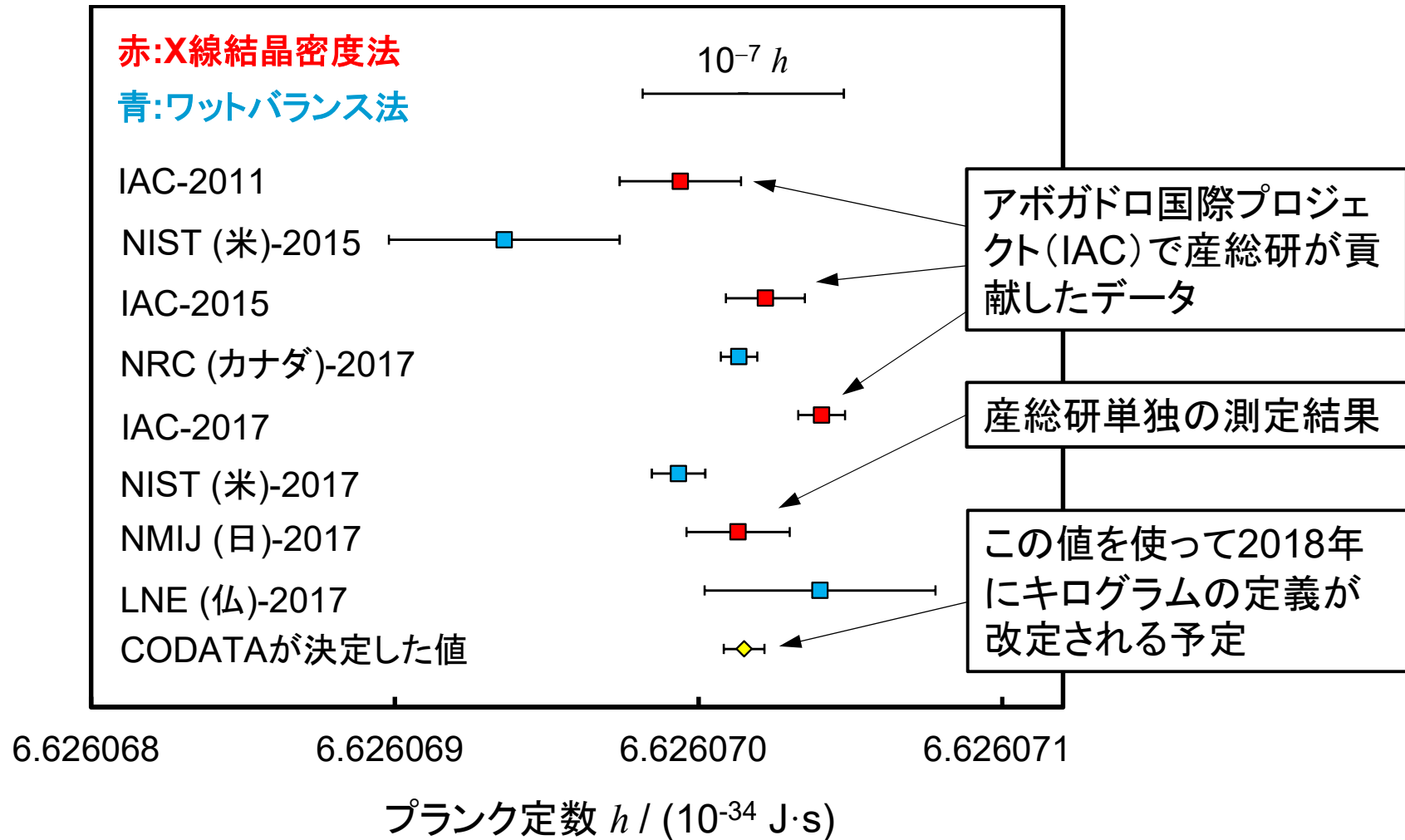


キログラム実現の標準不確かさ: 24  $\mu\text{g}$

国際キログラム原器 (IPK) の質量の長期安定性: 50  $\mu\text{g}$

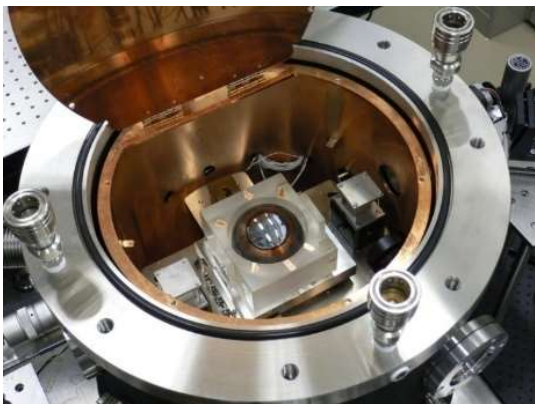
IPKの質量の長期安定性よりも良い精度でキログラムを実現できているのは今のところ**カナダ**、**ドイツ**、**日本**、**米国**の4カ国のみ

# CODATAによるプランク定数の特別調整(2017年)

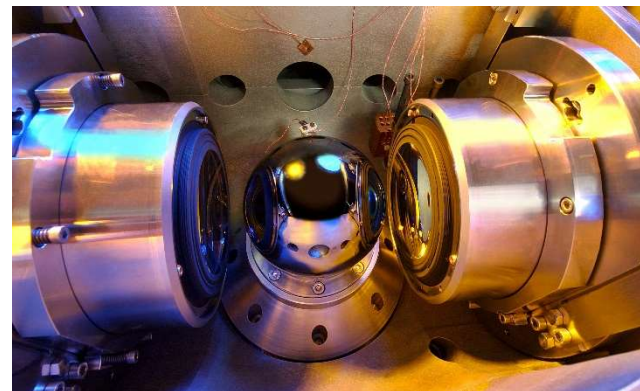




# キログラムの定義改定に貢献した研究機関の測定装置



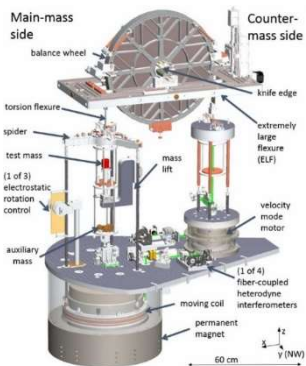
NMIJ(日)の球体干渉計



PTB(独)の球体干渉計

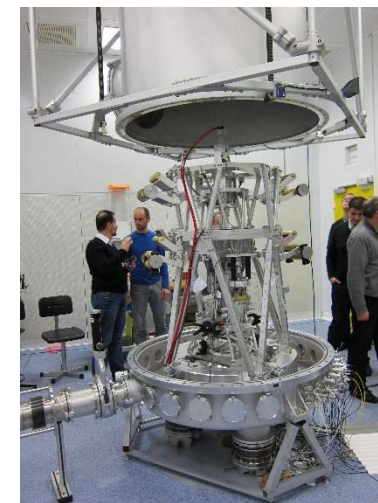
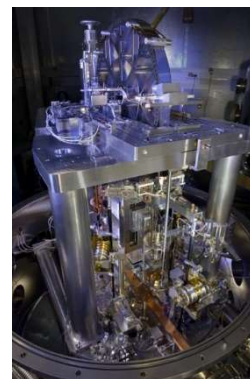


NRC(カナダ)のワットバランス



D. Haddad et al: A precise instrument to determine the Planck constant, and the future kilogram, Rev. Sci. Instrum., 87, 061301 (2016)より

NIST(米)のワットバランス



LNE(仏)のワットバランス

## 2017年10月20日：国際度量衡委員会（CIPM）の決議

<https://www.bipm.org/en/committees/cipm/meeting/106.html>

- SI基本単位の定義改定に関する条件が全て満足されたことを認識し、そのための草案を2018年11月に開催される第26回国際度量衡総会（CGPM）に提出することを決定した。
- キログラム、アンペア、ケルビン、モルの定義改定を進めるための全ての必要な措置を講じる。
- CODATA基礎定数作業部会（TGFC）が決定したプランク定数 $h$ 、電気素量 $e$ 、ボルツマン定数 $k$ 、アボガドロ定数 $N_A$ の値を、SIの新しい定義に用いる値として公表することを承認する。

# SIの新しい定義で用いられる基礎物理定数 CODATA 2017 Special Adjustment

## CODATAによる2017年特別調整結果

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

## SIの新しい定義で用いられる値

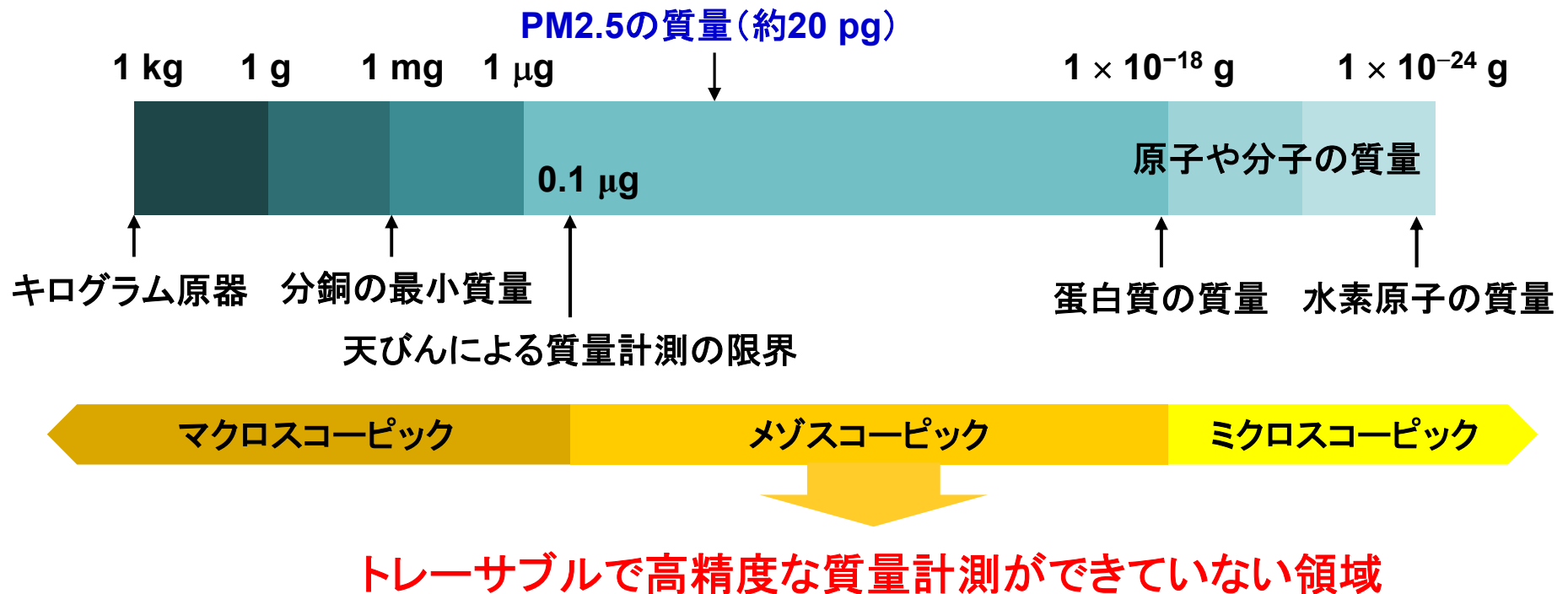
基礎物理定数	値
プランク定数 $h$	$6.626\ 070\ 15 \times 10^{-34} \text{ J s}$
電気素量 $e$	$1.602\ 176\ 634 \times 10^{-19} \text{ C}$
ボルツマン定数 $k$	$1.380\ 649 \times 10^{-23} \text{ J K}^{-1}$
アボガドロ定数 $N_A$	$6.022\ 140\ 76 \times 10^{23} \text{ mol}^{-1}$

David Newell, Franco Cabiati, Joachim Fischer, **Kenichi Fujii**, Saveley Karshenboim, Helen Margolis, Estefania de Mirandes, Peter Mohr, Francois Nez, Krzysztof Pachucki, Terry Quinn, Barry Taylor, Meng Wang, Barry Wood, Zhonghua Zhang: The CODATA 2017 Values of  $h$ ,  $e$ ,  $k$ , and  $N_A$  for the Revision of the SI, *Metrologia*, accepted for publication, October 20, 2017.

<http://iopscience.iop.org/article/10.1088/1681-7575/aa950a>

# キログラムの定義改定がもたらすもの

- メートルが光速度 $c$ で定義され、光周波数さえ測れば誰もが長さの単位を実現できるようになったように、プランク定数 $h$ やアボガドロ定数 $N_A$ を基準として誰もがキログラムを実現することができるようになる。
- 新しい質量の定義 ⇒ **微小質量計測技術**への応用



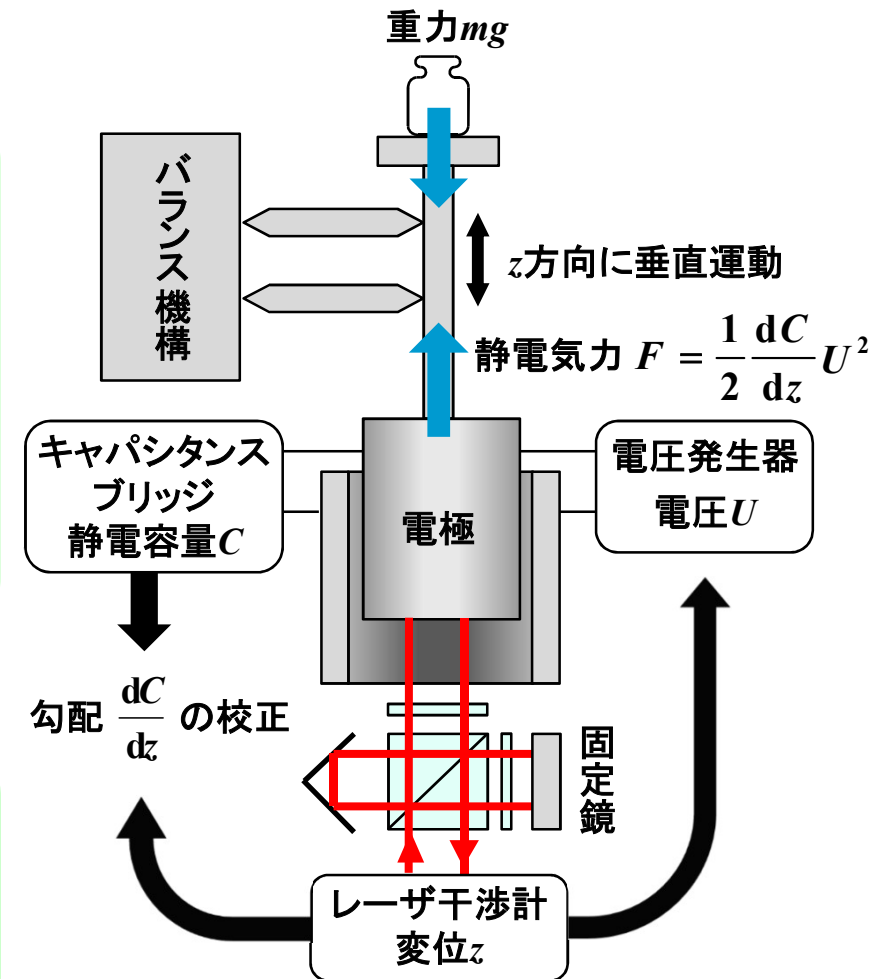
# 電圧天びんによる微小質量計測技術の開発

## 測定原理

- 静電容量勾配の測定  
電極が直線運動をするキャパシタの、運動方向における静電容量変化率 $dC/dz$ を測定
- 質量(荷重)の測定  
荷重と静電気力が釣り合うように電圧 $U$ を制御。そのときの静電気力 $F$ と荷重 $mg$ を釣り合わせる。

$$mg = F = \frac{1}{2} \frac{dC}{dz} U^2$$

- 電圧の調整によって任意の質量を実現
- 電気、長さ、時間という不確かさの小さい量の測定から微小質量を直接的に実現
- 分銅に頼らない新しい微小質量標準



電圧天びんの概要

## キログラム、アンペア、ケルビン、モルの定義の同時改定(案)

SI基本単位	単位記号	現行の定義	定義改定案
キログラム	kg	国際キログラム原器の質量	プランク定数 $h$ を定義
アンペア	A	間隔1メートルの二本の導体を通り、長さ1メートルにつき $2 \times 10^{-7}$ ニュートンの力を及ぼし合う電流 真空の透磁率： $\mu_0 = 4\pi \times 10^{-7} \text{ N A}^{-2}$	電荷素量 $e$ を定義 電流 $I = ef$ ( $f$ : 周波数) $\mu_0$ は実験で決まる測定量 $\mu_0 = 2\alpha h/(ce^2)$
ケルビン	K	水の三重点における熱力学温度の1/273.16	ボルツマン定数 $k$ を定義 例) 理想気体中の音速を $w$ 、モル質量を $M$ 、比熱比を $\gamma$ とすれば $T = w^2 M / (\gamma N_A k)$
モル	mol	結合していない静止した0.012キログラムの炭素原子 $^{12}\text{C}$ 中に存在する原子の数に等しい要素粒子を含む系の物質質量 炭素 $^{12}\text{C}$ のモル質量： $M(^{12}\text{C}) = 12 \text{ g/mol}$	アボガドロ定数 $N_A$ を定義 $M(^{12}\text{C})$ は実験で決まる測定量 $N_A h = c\alpha^2 M(^{12}\text{C}) / \{2R_\infty [m(^{12}\text{C})/m_e]\}$
秒	s	セシウムの超微細準位間の放射の周期の9 192 631 770倍	変更なし。将来(2026年頃)にはマイクロ波(約10 GHz)から光周波数(約500 THz)へ
メートル	m	1/299 792 458秒間に光が真空中を伝わる行程の長さ 真空中の光の速さ： $c = 299 792 458 \text{ m/s}$	変更なし。
カンデラ	cd	$540 \times 10^{12}$ ヘルツの単色放射の強度が1/683ワット毎ステラジアンとなる光度	変更なし。ただし、基本単位である必要はないとの認識は広まっている。

# キログラムの将来

- 1889年に国際キログラム原器 (IPK) が質量の単位として定義されて以来、ようやくアボガドロ定数やプランク定数の測定精度のほうがIPKの質量安定性よりもよくなってきた。

メトロジスト (metrologist) の永年の夢

- キログラム、アンペア、ケルビン、モルの定義を改定するかどうか**2018年**に開催されるメートル条約の総会で審議される。**可決されればキログラムについては130年ぶりの大改定**
- 歴史上初めてキログラムの定義が人工物から切り離されて、普遍的な定数と結びつくことになる。
- キログラムの新しい定義は、今までトレーサブルに測れなかった**微小質量**の計測を可能にするだろう。

## アボガドロ定数の決定に貢献したNMIJの主な関係者

藤井 賢一 (K. Fujii): Coordinator of the IAC Project, Leader of the Mass Standard Group, Members of CODATA TGFC, CCM and CCU

水島 茂喜 (S. Mizushima): Mass measurement of Si spheres and prototype kilograms

早稲田 篤 (A. Waseda): X-ray analysis for lattice uniformity evaluation and density measurement of Si crystals

藤本 弘之 (H. Fujimoto): Lattice uniformity evaluation

稲場 肇 (H. Inaba)、大久保 章 (A. Ookubo): Optical Frequency Standard

倉本 直樹 (N. Kuramoto): Sphere diameter measurement and ellipsometry

張麓ルウ: XPS and surface analysis

東 康史 (Y. Azuma)、黒河 明 (A. Kurokawa): Surface standard

藤田一慧 (K. Fujita): Ellipsometry, diameter measurement and small mass measurement

成川 知弘 (T. Narukawa)、日置 昭治 (A. Hioki): Mass spectrometry

山本 泰之 (Y. Yamamoto): Small mass measurement

山澤 一彰 (K. Yamazawa): Thermometry