

原子質量に基づくキログラム再定義のためのレーザー干渉計開発

倉本 直樹・藤井 賢一

Development of a Laser Interferometer for the Redefinition of the Kilogram Based on an Atomic Mass

Naoki KURAMOTO and Kenichi FUJII

Many of the units of physical quantities, such as frequency, length, voltage and time are defined using physical laws or quantum effects which are considered to be universal and immutable. In contrast, the kilogram, the unit of mass, has continued to be based on a material artifact. The Avogadro constant is a fundamental physical constant that expresses the number of atoms or molecules contained in 1 mol of a substance. Therefore, an accurate determination of this constant would enable the kilogram to be defined based on an atomic mass. At present, an international project for the precise determination of the Avogadro constant to redefine the kilogram is going-on. In this project, the Avogadro constant is determined using an isotopically enriched silicon crystal, and an interferometer equipped with a direct laser frequency tuning system has been developed to determine the volume of silicon spheres. Details of the interferometer are described.

Key words: Avogadro constant determination, kilogram redefinition, enriched silicon, volume measurements, density measurements, X-ray, optical interferometry

現行の国際単位系¹⁾ (SI: Le Système International d'Unités) における質量の単位はキログラム (kg) であり、7つの基本単位の1つである。より高い普遍性と再現性を追求した結果、基本単位の定義は、人工物ではなく、普遍的な自然現象あるいは物理法則に基づいた定義へと変遷してきている。しかし、キログラムは唯一、依然として人工物である国際キログラム原器の質量に等しいと定義されている。

最近、人工物に頼らない普遍的な基礎物理定数の精密測定を利用した、高精度なキログラム再定義の議論が活発化している²⁻⁷⁾。2つの有力な方法が各国の計量標準機関で検討されている。一方はX線結晶密度法によりアボガドロ定数を決定し、原子1個あたりの質量を基準にしてキログラムを再定義する方法である。もう一方は、ワットバランス法によりプランク定数を決定し、ある周波数の光子と等価

なエネルギーとしてキログラムを再定義する方法である。本解説では、前者の方法について概説し、アボガドロ定数決定における光技術の応用、特にレーザー干渉計による球体体積測定について詳説する。

1. 現在の定義

国際キログラム原器は高さ 39 mm、直径 39 mm のシリンダー型白金イリジウム合金分銅であり、フランスの国際度量衡局 (BIPM: Bureau International des Poids et Mesures) に保管されている。1889年に開催された国際度量衡総会で質量の単位として承認されて以来、120年近く経過した現在でも、当時と同一の分銅が使用されている。この国際キログラム原器と同材料でつくられた同形状の分銅がメートル条約参加国に配布されている。

人工物である国際キログラム原器による定義は、事故等

により一度失われると二度と再現できない。また、表面吸着ガス等の影響でその質量は徐々に増加するため、定期的に洗浄する必要がある。1988年に行われた42年ぶりの洗浄により、その質量が約60 μg減少したことが報告された⁸⁾。この相対変動幅は 6×10^{-8} に相当する。これらの理由から、人工物に頼らない普遍的な方法により 10^{-8} の相対不確かさで質量を再現する方法を開発し、より正確なキログラムの定義を実現することが切望されている。

2. アボガドロ定数によるキログラムの再定義方法

アボガドロ定数は巨視的世界の「物質」と微視的世界の「粒子」の物理量の橋渡しを行う基礎物理定数であり、物質1モル中の要素粒子(分子、原子など)の数を示す。モル(mol)は物質の単位であり、「0.012 kgの核種¹²Cの中に存在する原子の数と等しい数の要素粒子を含む系の物質」と定義される。したがって、核種¹²Cのモル質量 $M(^{12}\text{C})$ は厳密に0.012 kg/molであり、この系に含まれる原子の数はアボガドロ定数

$$N_A = \frac{M(^{12}\text{C})}{m(^{12}\text{C})} = 6.022 \cdots \times 10^{23} \text{ mol}^{-1} \quad (1)$$

に等しい。ここで $m(^{12}\text{C})$ は¹²Cの単原子あたりの質量である。原子や素粒子の質量を記述する場合、一般に統一原子質量単位 u が用いられる。定義により $u = m(^{12}\text{C})/12$ なので、式(1)より次式が得られる。

$$u = \frac{M(^{12}\text{C})}{N_A} \times \frac{1}{12} = 1.660 \cdots \times 10^{-27} \text{ kg} \quad (2)$$

任意の核種 X の相対原子質量 $A_r(X) = m(X)/u$ は、イオントラップなどによる質量比測定と量子電気力学による補正から十分に小さな不確かさですでに求められている。相対原子質量を用いると、任意の核種 X の1原子あたりの質量 $m(X)$ は次式で表される。

$$\begin{aligned} m(X) &= A_r(X) \times u = A_r(X) \times \frac{M(^{12}\text{C})}{N_A} \times \frac{1}{12} \\ &= A_r(X) \times m(^{12}\text{C}) \times \frac{1}{12} \end{aligned} \quad (3)$$

式(3)は質量の単位を再定義する上で重要な概念を表す。すなわち、アボガドロ定数 N_A を定義してしまえば炭素原子¹²Cの質量を基準として、任意の原子1個あたりの質量を相対原子質量から精度よく導くことができる。したがって、¹²Cの質量を基準とすれば、質量の単位を例えば「基底状態にある静止した $5.018 \cdots \times 10^{25}$ 個の自由な¹²Cの質量に等しい」と再定義できる。

3. X線結晶密度法によるアボガドロ定数決定

X線結晶密度法は、他の基礎物理定数を用いることなく、アボガドロ定数を実験的に直接決定できる方法である⁹⁾。この方法において、アボガドロ定数は結晶の格子定数 a 、密度 ρ 、モル質量 M のそれぞれを絶対測定することにより求められる。結晶の材料としては、高純度、無転移で、しかも大寸法の単結晶が得られるシリコンが用いられる。シリコン結晶は立方晶であり、単位格子には8つの原子が含まれ、その体積は a^3 である。微視的な密度 $8M/(N_A a^3)$ が巨視的な密度 ρ に等しいものと仮定すると、シリコン単原子の質量 m は、 $\rho a^3/8$ に等しい。したがって、アボガドロ定数は $8M/(\rho a^3)$ となる。

天然のシリコンには安定同位体²⁸Si, ²⁹Si, ³⁰Siが存在する。同位体組成は結晶ごとに異なるため、実際にX線結晶密度法に用いた結晶をマススペクトロメーターにより分析し、平均モル質量を決定する。格子定数はX線光波干渉計¹⁰⁾により決定される。巨視的密度 ρ の絶対測定は次節で詳細に述べる。

4. シリコン単結晶密度絶対測定

4.1 レーザー干渉計による球体体積絶対測定

SIにおける密度の単位は kg m^{-3} であり、その絶対測定は試料の体積および質量を独立な絶対測定、すなわち、長さ標準である光の速さ、および質量標準である国際キログラム原器に照らし合わせて測定することにほかならない。通常、体積絶対測定の不確かさが密度測定の主たる不確かさの要因であり、いかに体積を小さな不確かさで決定するかが密度絶対測定高精度化の大きな問題である。体積測定に好都合な試料形状としては、立方体あるいは球体が考えられる。しかし、試料形状として立方体を選択した場合、角やエッジの部分の欠落が体積に及ぼす影響を小さな不確かさで測定することは容易でない。さらに、真球度の高い球体の体積はさまざまな方位からの直径測定平均値より小さな不確かさで決定できる¹¹⁾。この理由で、現在では球体を密度絶対測定の試料形状として使い、その体積は光波干渉法により決定されている。

最初のアボガドロ定数決定を目的とする球体密度絶対測定は、1972年に米国国立標準局(NBS: National Bureau of Standards, 現在の米国標準技術研究所(NIST: National Institute of Standard and Technology))のSaundersにより行われた¹²⁾。当時はシリコン単結晶を高い真球度で研磨する技術が確立されていなかったため、鋼球の体積が光波干渉計により絶対測定された。シリコン単結晶の密度は、その鋼球の密度を基準として液中秤量法と呼ばれる密度比

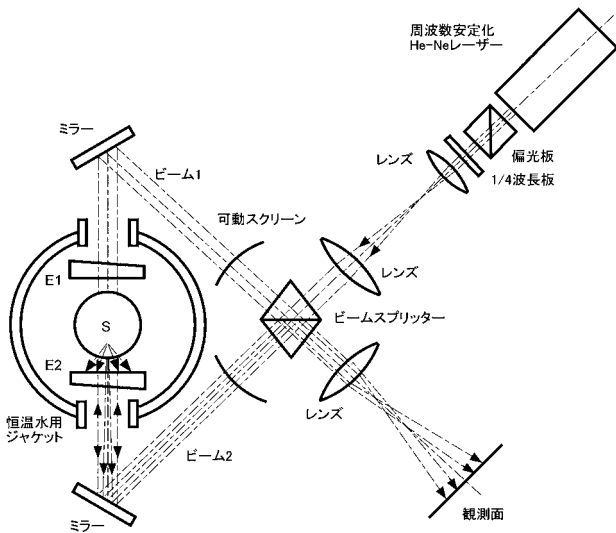


図1 Saunders が考案した球体の直径を測る光波干渉計¹²⁾. E1: エタロン1, E2: エタロン2, S: 鋼球.

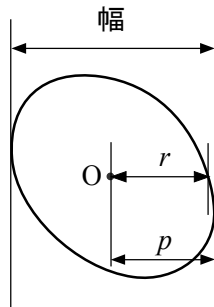


図2 不完全な球体の体積を決定するための幾何学的検討¹¹⁾.

較法により決定された。図1に Saunders が考案した光波干渉計を示す。間隔 L が校正されたエタロンの間に球体をおき、周波数安定化レーザーからのビームをビームスプリッターで2つに分け、ビーム1をエタロン板E1に垂直入射させる。球体とE1からの反射光の干渉により、観測面では同心円状の干渉縞が観測される。干渉縞を写真撮影し、中央付近の数本の干渉縞の直径を測定して、干渉縞中央の干渉次数の端数部分を求め、球体とE1の間隔 d_1 が光波干渉測長される。同様にビーム2を用いて、球体とエタロン板E2の間隔 d_2 が光波干渉測長される。球体の直径 D は $D=L-(d_1+d_2)$ により求められる。

4.2 幾何学的形状が不完全な球体の体積の求め方

図2に示すように、厳密には、光波干渉計によって得られるのは球体に接した2枚の平行平板の間隔、すなわち幅である。この幅は原点 O を通過する球体の直径より大きいので、幅の測定から求められる体積は実際の体積よりも大きい。NBSのJohnsonはこの幅から計算される球体体積と実際の球体体積との関係について幾何学的解析を行っ

ている¹¹⁾。原点 O から平面までの距離を p 、 p の球体の全表面にわたる平均値を p_0 とし、それらの差 $p-p_0$ が $\sum_n Y_n$ で表されるとする。ここで Y_n は次式で示される次数 n の球面調和関数である。

$$Y_n = \sum_{m=0}^n [(A_{nm} \cos m\phi + B_{nm} \sin m\phi) \cdot P_n^m(\cos\theta)] \quad (4)$$

ここで、 P_n^m は第1種ルジャンドル陪球関数、 ϕ と θ はそれぞれ球座標系における方位角と極角、 A_{nm} 、 B_{nm} はそれぞれの球面調和関数の振幅を表す。上式を用いると不完全な球体の体積は

$$V = \frac{3}{4}\pi p_0^3 - \frac{1}{2} p_0 \times \sum_{n=2}^{\infty} \left[(n-1)(n+2) \int_0^{2\pi} \int_0^{\pi} Y_n^2 \sin\theta \cdot d\theta \cdot d\phi \right] \quad (5)$$

となる。右辺第1項は平均直径から求められる体積であり、右辺第2項は、右辺第1項から求められる体積の補正項を表す。例として直径約 93.6 mm、 p_0 からの最大偏差 100 nm の4階対称の球体について計算すると、右辺第2項の影響は 1×10^{-11} である。したがって、多方位から球体の直径を光波干渉して幅の平均値が求められれば、球体が完全に真球でなくともその体積を十分小さな不確かさで導くことができる。

4.3 シリコン単結晶球体体積絶対測定

シリコン単結晶球体の精密研磨技術は、オーストラリア連邦科学産業研究機構 (CSIRO) の Leistner らにより 1987 年に開発された¹³⁾。現在の研磨技術では、50 nm 以下の真球度をもつ、直径 93.6 mm のシリコン単結晶球体を得ることが可能となっている。この球体の質量はほぼ 1 kg であり、きわめて小さな不確かさで質量測定を行うことができる。したがって、球体体積測定技術を改良することにより、その密度の不確かさを極限まで減少させることが期待できる。

CSIRO でのシリコン球体研磨技術確立をうけて、幾種類かの球体体積測定用光波干渉計が各国の標準研究機関で開発された¹⁴⁾。図3は使用された原理の比較を示す。図3(a)は Saunders の干渉計で用いられた原理であり、平面エタロンと平面波が使用されている。平面波が球体表面で反射され、球面波として観測面へ到達する。球面波の発散は比較的大きく、球面波の外周部分は介在する光学部品により回折される。これは干渉縞中心の深刻な位相シフトを引き起こす。この回折の問題を克服するために、産業技術総合研究所計量標準総合センター (NMIJ: National Metrology Institute of Japan, 以前の工業技術院計量研究所) では

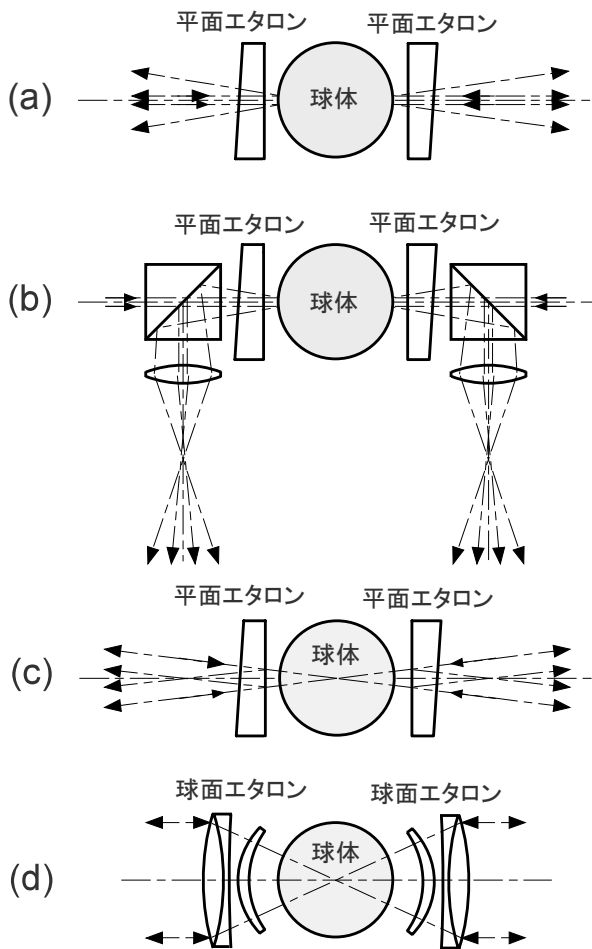


図3 球体直径測定用光波干渉計の比較¹⁴⁾。

図3 (b) に示す光波干渉計を開発した¹⁵⁾。この干渉計では球体からの球面波をすぐにレンズにより集光するので、回折効果は生じない。また、この干渉計では、エタロンを球体に対し相対的に走査させ干渉縞に変調をかけることにより、2つのギャップ d_1 と d_2 を同時に決定する。これにより球体とエタロンの相対的位置関係の不安定性の球体直径測定への影響が完全にキャンセルされる。イタリア・コロネッティ研究所 (Istituto di Metrologia “Gustavo Colonnetti”, 現在のイタリア国立計量研究所 (INRIM: Istituto Nazionale di Ricerca Metrologica)) では平面エタロンと球面波を用いた干渉計が開発された (図3 (c))¹⁶⁾。この干渉計においても回折効果は除去される。ドイツ物理工学研究所 (PTB: Physikalisch-Technische Bundesanstalt) では球面エタロンと球面波を用いた球面フィゾー干渉計が開発された (図3 (d))¹⁷⁾。参照球面の曲率中心と試料球体の中心を一致させれば、理想的には球面各点からの反射光とエタロンからの反射光は同じ経路を通りながら干渉し合う。結果として生じる干渉縞は CCD で撮像され、後述する位相シフト法により d_1 と d_2 の位相が決定される。原理

的には CCD の画素数分の方位の直径を決定できる。この干渉計は球体を数回転させるだけで球体表面全体にわたる直径測定が可能である。

5. 光周波数制御技術によるシリコン球体体積測定

5.1 光周波数制御型レーザー干渉計

筆者らは干渉計 (図3 (b)) を用い 7×10^{-8} の相対不確かさでシリコン単結晶球体体積を決定した。球体の質量、格子定数、欧州連合 (EU) の標準物質研究所 (IRMM: Institute for Reference Materials and Measurements) でのモル質量の測定結果などと合わせ、2003年にアボガドロ定数を 2×10^{-7} の相対不確かさで決定している¹⁸⁾。これは X 線結晶密度法によるアボガドロ定数としては最も小さな不確かさである。このデータは基礎物理定数の推奨値を決める国際委員会である科学技術データ委員会 (CODATA) で採用され、基礎物理定数の全面改訂に貢献した¹⁹⁾。しかしながらキログラム再定義のためには、アボガドロ定数を少なくともさらに1桁小さな相対不確かさ、 2×10^{-8} で決定する必要がある。この目的のためにはシリコン球体体積を 1×10^{-8} の相対不確かさで決定する必要がある。これは 0.3 nm の直径測定の不確かさに相当する。直径測定の不確かさを極限まで減少させるために、NMIJ では光周波数制御型干渉計を開発している²⁰⁻²³⁾。図4はそのブロック図である。基本的な光学配置は図3 (b) と同じである。同心円状の干渉縞は CCD カメラで撮像される。大きな改良点は光源として外部共振器型レーザーダイオードを用い、光周波数の制御により間隔 L , d_1 および d_2 を決定することである。干渉縞の解析には位相シフト法を用いる。位相シフト法は干渉縞の位相を一定間隔で1フリッジ変化させた場合の干渉強度の一連の測定から位相を決定する干渉縞解析法である²⁴⁾。必要な位相シフトはレーザーダイオードの光周波数を制御することにより発生させる。また、干渉計は球体方位制御機構を備えており、数百方向からの直径測定より体積を決定する。

5.2 光周波数制御機構

球体とエタロンとの間隔は約 13 mm であり、位相シフト法を行うためには少なくとも 10 GHz の光周波数掃引が必要である。この目的のためにリットマン型外部共振器レーザーダイオードを用いた光周波数チューニングシステムを開発した²⁰⁾。図4の下部はそのブロック図を示す。このシステムによりレーザーダイオード光周波数を 20 GHz の範囲で 30 kHz の不確かさでチューニングできる。これは長さに換算すると 6×10^{-11} の相対不確かさに相当する。精密光波干渉技術はこのようなきわめて高い精度での光周

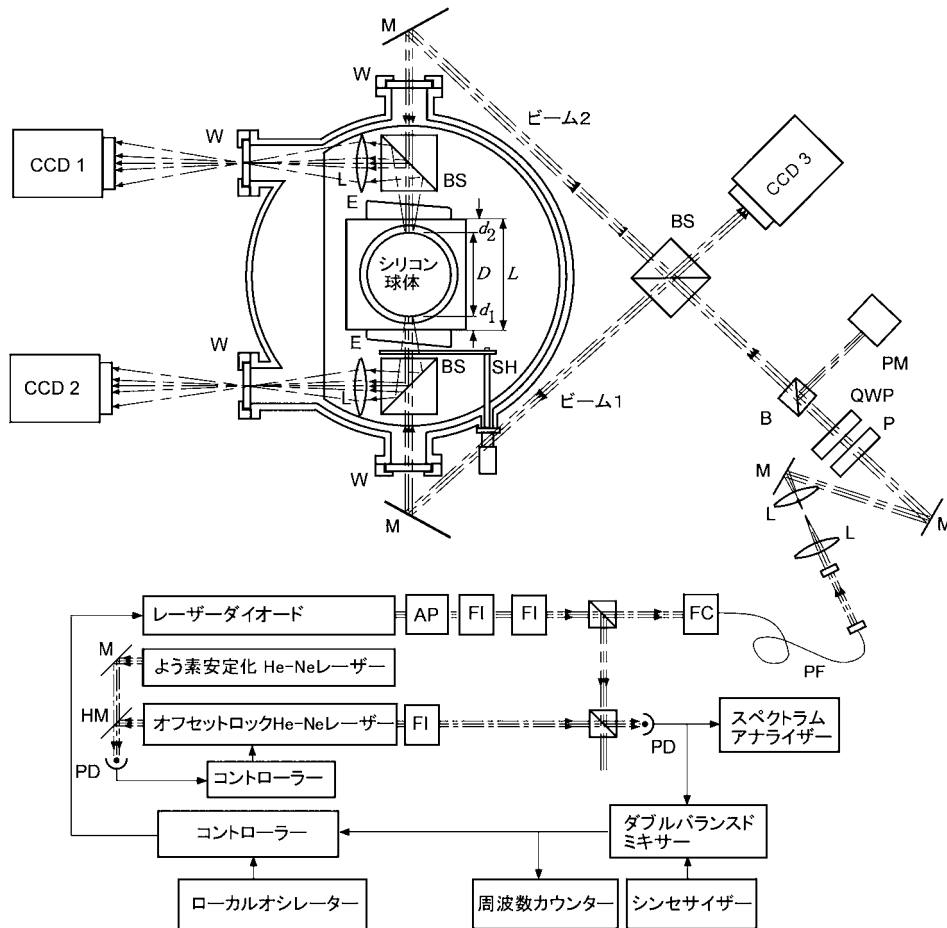


図4 NMIJで開発された光周波数掃引型干渉計²³⁾。外部共振器型ダイオードレーザーを光源とし、その光周波数の正確な計測・制御により球体直径の測定を行う。BS:ビームスプリッター、CL:コリメーターレンズ、SH:シャッター、E:エタロン、FC:ファイバーカップラー、FI:ファラデーアイソレーター、HF:ハーフミラー、M:ミラー、P:偏光板、PD:フォトディテクター、PF:偏波面保存ファイバー、PM:パワーメーター、QWP:1/4波長板、W:光学窓、L:レンズ、AP:アナモルフィックプリズムペア。

波数計測技術に支えられている。

位相シフト法は幾何形状評価等に広く用いられている手法である。通常、干渉計に可動部を設け、圧電素子を用いることで位相シフトを発生させる。しかしながら、圧電素子を用い正確な位相シフトを作りだすことは難しく、系統的小よびランダムな測長測定の不確かさの要因となる。光周波数の直接制御は正確な位相シフトを作り出し、正確な直径測定を可能とする。

5.3 位相シフト法

光周波数制御型干渉計では、位相を $\pi/3$ ずつ6回変化させながら取り込んだ合計7枚の干渉縞画像から決定する。取り込んだ干渉縞のCCDのある画素における強度をそれぞれ $I_1, I_2, I_3, I_4, I_5, I_6, I_7$ とすると、4番目の画像を取り込んだ際の光周波数における位相 ϕ は次式で表される²⁴⁾。

$$\phi = \tan^{-1} \left[\frac{\sqrt{3}(I_2 + I_3 - I_5 - I_6)}{-I_1 - I_2 + I_3 + 2I_4 + I_5 - I_6 - I_7} \right] \quad (6)$$

d_1 と d_2 を決定するためには約10GHzにわたる光周波数の掃引が必要であるが、1回の掃引で14の異なる光周波数にチューニングすることにより d_1 と d_2 を同時に決定できる。 L の決定の際にはビーム1はシャッターで遮られ、シリコン球体は球体下方に格納された球体回転機構により持ち上げられ光路から除かれる。ビーム2は球体機構に設けた穴を通過し、2枚のエタロンからの反射光の干渉により、CCD3において干渉縞が観測される。この干渉縞を位相シフト法による解析する。それぞれのCCDで決定した位相の三次元分布をツェルニケ関数で近似し、それらの極値より L, d_1 および d_2 が決定される。

5.4 表面酸化膜の影響

シリコン球体の表面は厚さ数ナノメートルの酸化膜で覆

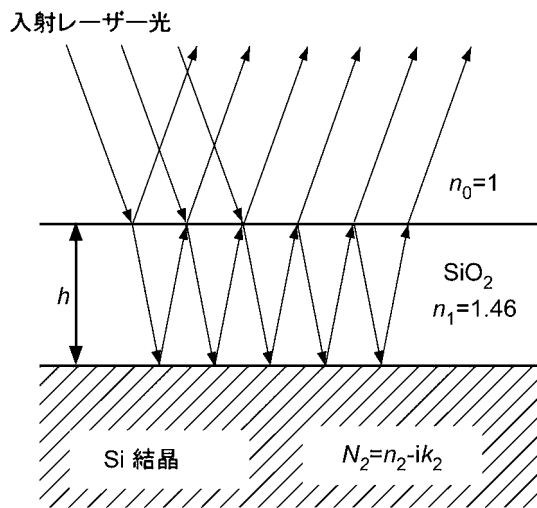


図5 シリコン結晶の表面²⁵⁾。サブナノメートルの精度で球体直径測定を行う場合には、表面酸化膜での位相遅れを正確に評価する必要がある。

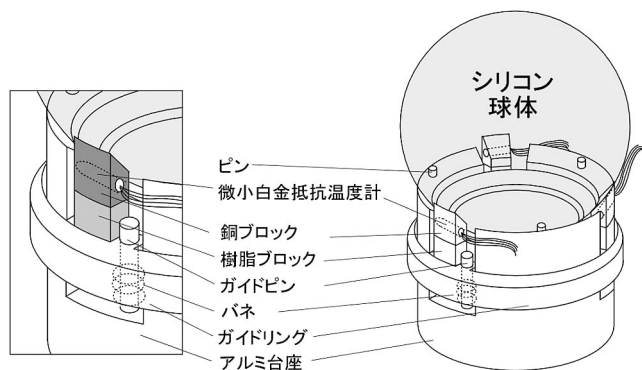


図6 精密球体測温システム²³⁾。微小白金抵抗温度計が銅ブロックに挿入されている。球体直径測定時に、この銅ブロックが球体に弱く押しつけられる。

われている。直径をサブナノメートルの不確かさで計測するためには、光学的に観測される直径と実際の直径との差を正しく評価することが重要となる。図5に、シリコン結晶基盤上に形成された厚さ h の酸化膜を模式的に示した。真空の屈折率を n_0 、酸化膜の屈折率を n_1 、シリコン結晶の複素屈折率を $N_2 = n_2 - ik_2$ とすると、垂直入射の場合、真空と酸化膜の界面での振幅反射率 r_{01} 、および、酸化膜とシリコン結晶の界面での振幅反射率 r_{12} はそれぞれ次式で表される²⁵⁾。

$$r_{01} = (n_0 - n_1) / (n_0 + n_1) \quad (7)$$

$$r_{12} = (n_1 - N_2) / (n_1 + N_2) = |r_{12}| e^{i\phi_{12}} \quad (8)$$

真空中の波長を λ_0 、 $\beta = 2\pi h n_1 / \lambda_0$ とおき、酸化膜内での多重反射の効果を考慮に入れると、図5に示した系全体の振幅反射率 R は次式で表される。

$$R = \frac{r_{01} + r_{12} e^{i2\beta}}{1 + r_{01} r_{12} e^{i2\beta}} = \frac{r_{01} + |r_{12}| e^{i(\phi_{12} - 2\beta)}}{1 + r_{01} |r_{12}| e^{i(\phi_{12} - 2\beta)}} = |R| e^{i\delta} \quad (9)$$

図5に示した光学モデルを仮定し、分光エリプソメーターによって球体の全表面にほぼ均一に分布した20か所の酸化膜の厚さを測定した。膜厚は球体全体にわたってほぼ均一であり、約5 nmであった。この値を式(9)に代入して δ を計算すると、酸化膜が直径測定に与える影響は約10 nmとなる。干渉計で光学的に観測された直径にこの値を加えれば、酸化膜の厚さを含む正しい直径が求められる。

エリプソメトリーは薄膜の膜厚測定に広く用いられている手法であるが、不確かさの評価が困難であり、また、他の分析方法と測定値にずれが存在することが大きな問題となっている²⁶⁾。NMIJではX線反射率法(XRR: X-ray reflectometry)、X線光電子分光法(XPS: X-ray photoelectron spectroscopy)およびエリプソメトリーを用い、膜厚標準開発を目的とする薄膜特性評価を行っている^{27, 28)}。それらの研究で得られた成果に基づき、シリコン球体上酸化膜の厚さを0.3 nmの不確かさで決定した²²⁾。

5.5 球体測温システム

光周波数制御型干渉計による体積絶対測定における主要な不確かさ要因は、1) シリコン球体温度測定、2) 酸化膜厚さ測定である²²⁾。これらの不確かさを低減すべく、精密球体測温システムの開発およびXPSによるシリコン球体表面直接分析を行った²³⁾。

図6は新たに開発した精密球体測温システムを示す。シリコン球体は3本の樹脂製のピンによって支持され、微小白金抵抗温度計(直径1.2 mm、長さ10 mm)を挿入した銅ブロックが非常に弱い力で球体に押しつけられている。微小白金抵抗温度計は国際温度目盛り(ITS-90)²⁹⁾に規定された温度定点により直接校正されており、その性能がNMIJ高温温度標準研究室で評価されている³⁰⁾。さらに、温度制御された放射シールドを備えた真空チャンバー(図7)に干渉計をインストールし、球体の温度を制御している。これらの改良により1 mK以下の不確かさでの球体温度測定を可能とした²³⁾。

一方、酸化膜厚さ測定の主要な不確かさ要因は酸化膜の化学組成の不確かさである²²⁾。現時点で直径94 mmのシリコン球体を直接分析可能なXPSシステムはスイス連邦度量衡局(METAS)にのみ存在する。シリコン球体表面酸化膜の化学組成のXPSによる直接評価をMETASと協力して実施中であり、膜厚測定の不確かさは0.2 nm程度に減少する見込みである。

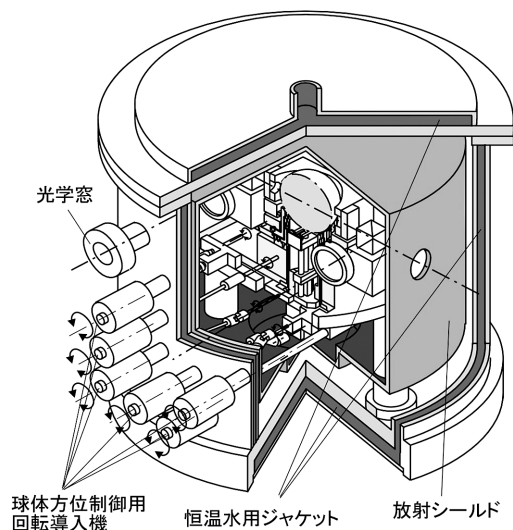


図7 球体温度を制御するための放射シールドを備えた真空チャンバー²³⁾。レーザー干渉計は放射シールド中にインストールされている。放射シールド外壁には薄膜ヒーターが取り付けられ、ヒーターに印加する電圧の制御により、シールド温度が一定に保たれる。シールド内壁は放射シールドと球体との熱交換促進のために黒く塗装されている。

これらの主要な不確かさ要因の低減により、現時点では、 1.7×10^{-8} の相対不確かさでのシリコン球体体積測定が可能であると考えている²³⁾。

6. ^{28}Si 濃縮シリコン結晶を用いたアボガドロ定数決定

現在、シリコン単結晶からアボガドロ定数を測定する上で最も大きな不確かさの要因となっているのは、シリコンの平均モル質量の評価である。天然のシリコンでは ^{28}Si 、 ^{29}Si 、 ^{30}Si の3種類の同位体のうち、 ^{28}Si が約92%の比率を占める。これを99.99%以上に濃縮したシリコン単結晶を用いることで、平均モル質量の不確かさはこれまでより約1桁小さくなる。そこでNMIJ, INRIM, PTB, NIST, NPL (National Physical Laboratory, 英国物理学研究所), NMIA (National Measurement Institute, オーストラリア計量研究所), IRMM, BIPM の8研究機関が協力して、 ^{28}Si 濃縮結晶の各パラメーターを測定し、アボガドロ定数を決定する国際プロジェクトを2004年から開始した^{9,31)}。原料となる四フッ化水素ガスの ^{28}Si 存在比をロシアの遠心分離技術により99.99%まで濃縮するのに2年を要し、2007年には5kgの ^{28}Si 単結晶が完成した。この結晶から直径94mm、質量1kgの球がCSIROで研磨され、その密度測定がNMIJ, PTB, NMIAで現在行われている。格子定数とモル質量についても複数の研究機関で測定が行われており、アボガドロ定数が2011年に決定できる予定である。現在、キログラムを再定義するのに十分な精度の測定結果が得られつつあり、2011年に開催される国際度

量衡総会で再定義を行うかどうかの審議が行われる予定である。

X線結晶密度法によるアボガドロ定数決定はキログラム再定義の有力な候補のひとつである。本解説ではX線結晶密度法における光技術の利用、特にシリコン球体体積絶対測定について概説した。NMIJでは光周波数制御技術に加え、X線および光を用いた薄膜評価技術を利用し、シリコン球体体積を精密測定している。現在、 ^{28}Si 濃縮シリコン結晶を用いアボガドロ定数を精密決定する国際プロジェクトが進行中であり、各要素技術の高精度化が進んでいる。2011年には現在より1桁よい精度でアボガドロ定数の決定が可能となる見込みである。一方、ワットバランス法によるプランク定数決定の精度はすでに 4×10^{-8} に達している^{32,33)}。各国の計量標準機関で進められつつあるこれらの精力的な研究の結果に基づき、いよいよキログラムの再定義が現実のものとなりつつある。

文 献

- 1) Le Système International d'Unités (SI), 8th ed., Sèvres, Bureau International des Poids et Mesures (2006). (日本語訳は産業技術総合研究所計量標準総合センターホームページよりダウンロード可能, <http://www.nmij.library/units/si/R8/SI8J.pdf>)
- 2) P. Becker, P. De Bièvre, K. Fujii, M. Glaeser, B. Inglis, H. Luebbig and G. Mana: "Consideration on future redefinitions of the kilogram, the mole and of the units," *Metrologia*, **44** (2007) 1-14.
- 3) 藤井賢一: "質量標準と基礎物理定数", *応用物理*, **68** (1999) 656-662.
- 4) トニー・フェダー (藤井賢一訳): "キログラム再定義をめぐる実験を検証する", *パリティ*, **21** (2006) 41-44.
- 5) B. Taylor: "The possible role of the fundamental constants in replacing the kilogram," *IEEE Trans. Instrum. Meas.*, **40** (1991) 86-91.
- 6) I. Mills, P. Mohr, T. Quinn, B. Taylor and E. Williams: "Redefinition of the kilogram: A decision whose time has come," *Metrologia*, **42** (2005) 71-80.
- 7) 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** (2006) 227-246.
- 8) T. Quinn: "The kilogram: The present state of our knowledge," *IEEE Trans. Instrum. Meas.*, **40** (1991) 81-85.
- 9) P. Becker, H. Friedrich, K. Fujii, W. Giardini, G. Mana, A. Picard, H.-J. Pohl, H. Riemann and S. Valkiers: "The Avogadro constant determination via enriched silicon-28," *Meas. Sci. Technol.*, **20** (2009) 092002.
- 10) U. Bonse and M. Hart: "An X-ray Interferometer," *Appl. Phys. Lett.*, **6** (1965) 155-156.
- 11) D. Johnson: "Geometrical consideration in the measurement of the volume of an approximate sphere," *J. Res. Natl. Bur. Stand. Sect. A*, **78** (1974) 41-48.
- 12) J. Saunders, Sr.: "Ball and cylinder interferometer," *J. Res. Nat. Bur. Stand. Sect. C*, **76** (1972) 11-20.

- 13) A. Leistner and G. Zosi: "Polishing a 1-kg silicon sphere for a density standard," *Appl. Opt.*, **26** (1987) 600–601.
- 14) K. Fujii: "Present state of the solid and liquid density standards," *Metrologia*, **41** (2004) S1–S15.
- 15) K. Fujii, M. Tanaka, Y. Nezu, K. Nakayama, R. Masui and G. Zosi: "Interferometric measurements of the diameter of a single-crystal silicon sphere," *Rev. Sci. Instrum.*, **63** (1992) 5320–5325.
- 16) A. Sacconi, A. Peuto, W. Pasin, R. Pancira, G. Lenaers, S. Valkiers, M. Berg and P. DeBièvre: "Toward the Avogadro constant—Preliminary results on the molar volume of silicon," *IEEE Trans. Instrum. Meas.*, **38** (1989) 200–205.
- 17) A. Nicolaus and G. Bönsch: "Absolute volume determination of a silicon sphere with the spherical interferometer of PTB," *Metrologia*, **42** (2005) 24–31.
- 18) K. Fujii, A. Waseda, N. Kuramoto, S. Mizushima, M. Tanaka, S. Valkiers, P. Taylor, R. Kessel and P. De Bièvre: "Evaluation of the molar volume of silicon crystals for a determination of the Avogadro constant," *IEEE Trans. Instrum. Meas.*, **52** (2003) 646–651.
- 19) P. Mohr and B. Taylor: "CODATA recommended values of the fundamental constants: 2002," *Rev. Mod. Phys.*, **77** (2005) 1–107.
- 20) N. Kuramoto and K. Fujii: "Interferometric determination of the diameter of a silicon sphere using a direct optical frequency tuning system," *IEEE Trans. Instrum. Meas.*, **52** (2003) 631–635.
- 21) N. Kuramoto and K. Fujii: "Volume determination of a silicon sphere using an improved interferometer with optical frequency tuning," *IEEE Trans. Instrum. Meas.*, **54** (2005) 868–871.
- 22) N. Kuramoto, K. Fujii, Y. Azuma, S. Mizushima and Y. Toyoshima: "Density determination of silicon spheres using an interferometer with optical frequency tuning," *IEEE Trans. Instrum. Meas.*, **56** (2007) 476–480.
- 23) N. Kuramoto and K. Fujii: "Improvement in the volume determination for Si spheres with an optical interferometer," *IEEE Trans. Instrum. Meas.*, **58** (2009) 915–918.
- 24) K. Creath: "Phase measurement interferometry techniques," *Progress in Optics*, vol. 26, ed. E. Wolf (Elsevier, 1988) pp. 349–393.
- 25) K. Fujii, M. Tanaka, Y. Nezu, K. Nakayama, H. Fujimoto, P. De Bièvre and S. Valkiers: "Determination of the Avogadro constant by accurate determination of the molar volume of a silicon crystal," *Metrologia*, **36** (1999) 455–464.
- 26) M. Seah *et al.*: "Critical review of the current status of thickness measurements for ultrathin SiO₂ on Si Part V: Results of a CCQM pilot study," *Surf. Interface Anal.*, **36** (2004) 1269–1303.
- 27) Y. Azuma, J. Fan, I. Kojima and S. Wei: "Physical structure of SiO₂ ultrathin films probed by grazing incidence X-ray reflectivity," *J. Appl. Phys.*, **97** (2005) 123522.
- 28) Y. Azuma, T. Fujimoto and I. Kojima: "Cleaning method for thickness metrology of SiO₂ thin films on Si substrates by heating in atmosphere," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **44** (2005) 8256–8258.
- 29) H. Preston-Thomas: "The international temperature scale of 1990 (ITS-90)," *Metrologia*, **27** (1990) 3–10.
- 30) 山澤一彰, 安曾 清, 丹波 純, 新井 優: "標準白金抵抗温度計に準じる温度計特性評価手法の開発", 計測自動制御学会論文集, 投稿中.
- 31) P. Becker, D. Schiel, 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-Seiffer, H. Riemann, S. Valkiers, P. Taylor, P. De Bièvre and E. M. Dianov: "Large-scale production of highly enriched ²⁸Si for the precise determination of the Avogadro constant," *Meas. Sic. Technol.*, **17** (2006) 1854–1860.
- 32) R. Steiner, E. R. Williams, R. Liu and D. Newell: "Uncertainty improvements of the NIST electronic kilogram," *IEEE Trans. Instrum. Meas.*, **56** (2007) 592–596.
- 33) I. A. Robinson: "Toward the redefinition of the kilogram: Measurements of Planck's constant using watt balances," *IEEE Trans. Instrum. Meas.*, **58** (2009) 942–948.

(2009年11月9日受理)