

令和 3 年 6 月 14 日現在

機関番号：82626

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18K04189

研究課題名(和文) 異種単原子分子を用いた音響気体温度計による熱力学温度の高精度測定

研究課題名(英文) Accurate Measurements of Thermodynamic Temperature using Acoustic Gas Thermometer based on Different Monoatomic Gases

研究代表者

Widiatmo Januari (Widiatmo, Januarius)

国立研究開発法人産業技術総合研究所・計量標準総合センター・主任研究員

研究者番号：30371024

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、気体の音響共鳴周波数の温度依存性を利用した音響気体温度計(AGT)システムを開発し、熱力学温度 T を高精度に測定した。異種の単原子分子気体であるアルゴンおよびネオンをAGTの試料気体とした際の実測値は、測定不確かさ内で一致し、AGTの普遍性を実証するとともに、AGTによる熱力学温度測定技術の信頼性を一段と向上させることができた。さらに、AGTにより得られた熱力学温度 T と、1990年国際温度目盛(ITS-90)に基づいて校正された標準白金抵抗温度計によって実現した温度 T_{90} を高精度に比較することで、熱力学温度とITS-90の温度との差($T-T_{90}$)を明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

科学や産業の現場では、熱力学温度の最良近似であるITS-90が温度の標準として使用されている。物性の温度依存性等に代表されるように、温度測定はあらゆる科学技術の根底を支える基盤技術であるため、熱力学温度とITS-90の差を精密に評価することは、学術的にも意義がある。また、本研究で得られた測定結果は、ITS-90の高精度化を目指す次期国際温度目盛の開発における信頼性の高い基礎データとして利用可能である。次期国際温度目盛が制定された際には、科学や産業の現場に信頼性の高い温度標準が供給可能となることから、社会に与える技術的意義は大きい。

研究成果の概要(英文)：In this research, acoustic gas thermometer (AGT) systems that employed the dependence of the resonance frequency within a gas on temperature has been developed, using which the thermodynamic temperature T has been accurately measured. The thermodynamic temperatures were measured on the basis of different monoatomic gases, namely argon and neon, both values of which were in agreement within the estimated uncertainties. Such the result has shown the consistency and high reliability in thermodynamic temperature measurement by the AGT systems developed. Furthermore, from comparison between the thermodynamic temperature T and the temperature T_{90} , which was measured using standard platinum resistance thermometers following the International Temperature Standard of 1990 (ITS-90), the difference ($T-T_{90}$) between the thermodynamic temperature and the temperature of ITS-90 has also been derived.

研究分野：温度標準

キーワード：熱力学温度測定

1. 研究開始当初の背景

熱力学温度の単位ケルビン¹は、メートル条約²の下の国際単位系 (SI) の中の基本単位の1つであり、本研究を開始した当時は、水の三重点 (TPW) を 273.16 K とすることで定められていた。この定義は、2019年5月に改定され、ボルツマン定数 k_B を単位 $J K^{-1}$ で表したときに、その数値を $1.380\,649 \times 10^{-23}$ と定めることによって、熱力学温度の単位ケルビンが新たに定義されることとなった。このボルツマン定数に基づく定義改定において、それ以前の水の三重点に基づいた定義と矛盾しないように、各国の標準研究機関では k_B の高精度な測定を実施するための熱力学温度計の開発を行い、中でも、単原子分子を試料気体として音速を測定することを原理とする音響気体温度計 (AGT) の測定精度は、1 ppm 程度まで向上し、 k_B の値の決定に大きく貢献している。

その一方で、SI に従い熱力学の法則に基づいて行われる熱力学温度の測定は、時間と労力がかかり、その実現は容易でないことから、科学分野や産業界における温度測定では、通常、熱力学温度の最良近似として国際的に採択されている 1990 年国際温度目盛 (ITS-90) が引き続き用いられている。ITS-90 は物質の三重点や金属の凝固点などを利用した温度定点 (定義定点) の温度値を国際協約として定義し、所定の方法で温度定点の間を補間することで実現されている。しかし、近年、その実用的な ITS-90 (T_{90}) と熱力学温度 (T) との差異 ($T - T_{90}$) が T の測定精度を超えて存在していることが明らかになってきた。例えば、アルゴンを試料気体とした AGT により TPW の温度 273.16 K から離れるにしたがい、($T - T_{90}$) は大きくなっていき、室温付近の 300 K で既に 10 ppm を超え、450 K ではその差が 20 ppm に到達していることが指摘されている。単位の定義と実用される目盛との乖離は科学として不自然であるため、基礎データを蓄積した上でこれらが一致する方向へ国際温度目盛を改訂すべきと考えられ、($T - T_{90}$) を高精度に再評価する機運が高まっている。また、AGT により測定された熱力学温度は、本来、異なる単原子分子を用いても一致すべきであるが、未だその検証は充分ではない。そのため、($T - T_{90}$) の広い温度域での評価に加え、AGT の熱力学温度測定がガス種に異存しない、普遍的なものであることの検証も強く求められている。

2. 研究の目的

国際単位系の温度の単位ケルビン (K) は、熱力学の法則に基づいて定義されている。近年、単原子分子であるアルゴンの音速測定に基づいた熱力学温度計 (音響気体温度計、AGT) の精度が 1 ppm 程度まで向上し、より精度の高い熱力学温度の測定が可能となった。一方で、AGT を用いて測定された熱力学温度は、原理的に異なる単原子分子を用いても一致すべきであるが、その検証は充分になされておらず、AGT によって実現された熱力学温度の普遍性の検証が必要となっている。

また、熱力学温度の測定は時間・労力がかかり容易ではないことから、科学や産業の現場での温度計測では、1990 年国際温度目盛 (ITS-90) が利用されている。一方で、AGT に代表される熱力学温度計の精度向上により、水の三重点温度 (273.16 K) から離れた温度域では、ITS-90 と熱力学温度の差異は大きくなり、その差が 300 K で 10 ppm を超え、450 K では 20 ppm にまで到達していることが明らかになってきた。

本研究では、アルゴンとは異なる、ネオンやヘリウム等の単原子分子を用いて AGT の測定を行うことで AGT の普遍性を検証するとともに、熱力学温度と ITS-90 との差異を精密に測定することを目的とする。

3. 研究の方法

熱力学温度 T および ITS-90 により実現された温度 T_{90} の測定を、音響気体温度計および標準白金抵抗温度計を用いて同時に行った。音響気体温度計 AGT は、温度に依存する気体の音速の測定を利用して、気体の熱力学温度を決定する温度計である。実在気体において、音速 w は式 (1) で示される。 R はガス定数、 M は気体のモル質量、 γ は気体の等圧比熱と等積比熱の比 (比熱比) である。 γ は、ヘリウム、アルゴン、ネオンなどの単原子気体の場合はその値が $5/3$ となる。 β_a 、 γ_a をそれぞれ第 2 音響ビリアル係数、第 3 音響ビリアル係数と呼ぶ。

$$w^2 = \frac{\gamma RT}{M} (1 + \beta_a P + \gamma_a P^2 + \dots) \quad (1)$$

AGT を利用する際は、等温線上において単原子分子気体の圧力 P を変化させ、広範囲に音速を測定しておき、得られた音速の実測値より圧力 $P = 0$ Pa への外挿 w_0^2 を決定する。 w_0^2 と熱力学温度 T との間に、 $w_0^2 = \gamma RT/M$ が成立するので、熱力学温度 T が求まる。一方、半径 a の空洞中の気体において音場が誘起されると、特定の周波数で共鳴が発生する。そのときの共鳴周波

数 $f_{0,n}$ は式 (2) に示したように気体中の音速と比例する。ここで、共鳴を実現する場を共鳴器 (resonator) と呼ぶ。式 (2) 中の $Z_{0,n}$ は n 番目のラジアルモード (0, n) の固有値である。

$$f_{0,n} = \frac{wZ_{0,n}}{2\pi a} \quad (2) \quad f_{EM,l} = \frac{cZ_{EM,l}}{2\pi a} \quad (3)$$

共鳴器に電磁場が誘起されると電磁波共鳴が発生し、そのときの共鳴周波数 $f_{EM,l}$ は式 (3) で示したように、共鳴器の半径 a 、光速 c および l 番目の電磁波モードの固有値 $Z_{EM,l}$ の関数として表される。ある温度において、音響共鳴周波数および電磁波共鳴周波数を、高圧から低圧までの圧力範囲で測定すれば、式 (1) から式 (3) を用いることによって、熱力学温度 T を求めることができる。共鳴器内の単原子分子ガスの温度は、共鳴周波数の測定と同時に、ITS-90 に従って校正された標準白金抵抗温度計で測定されるので、このときの T_{90} も分かることから、 $(T-T_{90})$ を算出することができる。これが AGT による熱力学温度の測定原理である。本研究で使用した共鳴器は無酸素銅の材質で、電磁波測定により有効半径 a の測定を容易にするために、真球形からわずかにずれた楕円体の形状 (quasi-spherical resonator, QSR) を持っており、式 (4) に表される。式 (4) 中の ϵ は真球からのずれを表しており、 $a = 0.062$ m、 $\epsilon_1 = 0.001$ 、 $\epsilon_2 = 0.0005$ となるように設計されている^①。

$$\frac{x^2}{a^2(1+\epsilon_1)^2} + \frac{y^2}{a^2} + \frac{z^2}{a^2(1+\epsilon_2)^2} = 1 \quad (4)$$

単原子分子ガスとして、アルゴンおよびネオンを選定し、それぞれのガスのための共鳴器は図 1(a) および図 1(b) に概念的に示す。アルゴンガス用の共鳴器を QSR-Ar、ネオンガス用の共鳴器を QSR-Ne と呼ぶ。それぞれの共鳴器には、音響共鳴周波数測定に使う送信用マイクロフォンおよび受信用マイクロフォン (microphones)、電磁波共鳴周波数測定に使う送信用アンテナおよび受信用アンテナ (antennas)、ガスの温度測定に使うカプセル型標準白金抵抗温度計 (cSPRTs)、そしてガスの流れを実現するためにガス流入口 (gas inlet) およびガス流出口 (gas outlet) が設置されている。

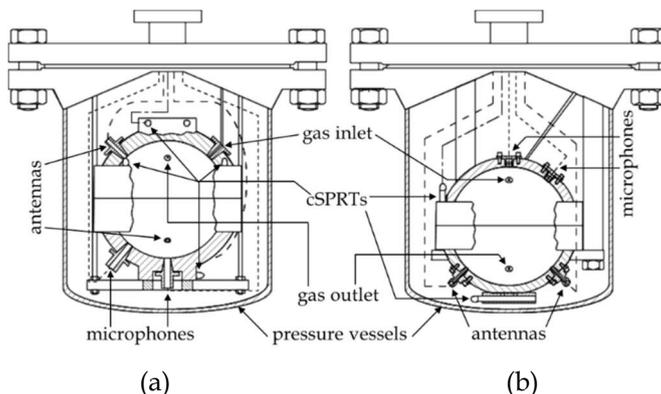


図 1 共鳴器の概念図：(a)アルゴンガス用 (QSR-Ar)^①、(b)ネオンガス用 (QSR-Ne)^②

図 1 に示したように、各共鳴器は圧力容器 (pressure vessels) の中に設置されている。この圧力容器は、恒温槽の中に温度が安定化される。音響・電磁波関連の測定の際、単原子分子ガスは、ガスボンベから供給され、安定した流量および圧力で共鳴器を通り、真空ポンプにより共鳴器の外へ排気される。温度の測定は、2 本以上のカプセル型標準白金抵抗温度計の抵抗値を使用しており、温度の測定に使用する前に ITS-90 に従い、国家標準にトレーサブルな校正システムを用いて、水の三重点、水銀の三重点およびガリウムの融解点において校正された^③。

4. 研究成果

(1) 電磁波共鳴による共鳴器の形状測定

本研究で使用した共鳴器 QSR-Ar および QSR-Ne の有効半径および a 、 ϵ_1 および ϵ_2 の測定を電磁波共鳴により行った。QSR-Ar に関しては、図 1(a) の場合 (Sit) と図 1(b) の場合 (Hung)^④、^⑤ の 2 通りの機構で測定を行った。図 2(a) に示した黒塗りのプロットは Sit の状態、白塗りのプロットは Hung の状態に対応しており、それぞれの平均値は破線および点線で表されている。QSR-Ne の場合は図 1(b) に示した Hung の機構のみで測定を行った。

有効半径の圧力依存性により、QSR-Ar^① および QSR-Ne の等温圧縮率 K_p を決定し、水の三重点においてその値はそれぞれ 1.05×10^{-11} Pa⁻¹ および 7.66×10^{-12} Pa⁻¹ であった。有効半径の温度依存性から、QSR-Ar^① および QSR-Ne の線膨張係数 K_T を決定し、水の三重点において、その値はそれぞれ 1.66×10^{-5} K⁻¹ および 1.66×10^{-5} K⁻¹ であった。

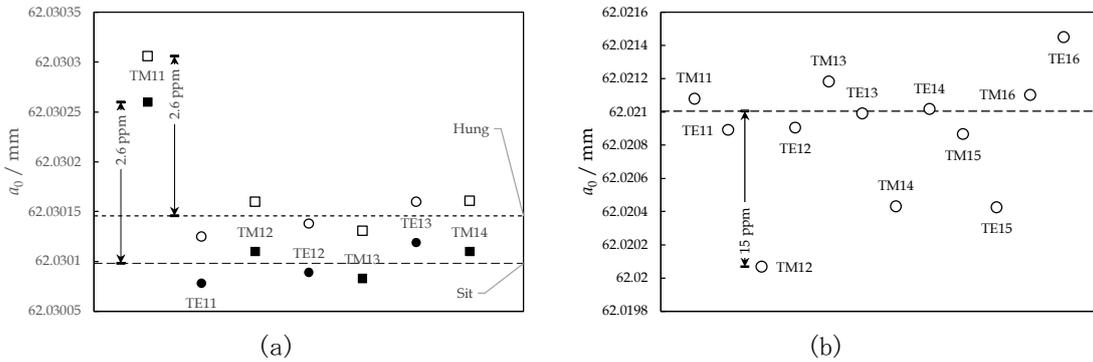


図2 電磁波測定で得られた共鳴器の有効半径、(a) QSR-Ar^①、(b) QSR-Ne

(2) 音響共鳴による熱力学温度測定

電磁波共鳴周波数の測定と同じ範囲で音響共鳴周波数の測定を行い、各温度での $w_{0,T}$ を決定した。水の三重点温度が 273.16 K と定義されていることから、 $w_{0,TPW}$ を基準として各温度での $w_{0,T}$ から、 $T = 273.16 \text{ K } w_{0,T}^2 / w_{0,TPW}^2$ の関係式で熱力学温度を相対的に決定することができる。図3は、本研究で測定した $w_{0,TPW}$ および $w_{0,T}$ を用いて、283.15 K、293.15 K およびガリウムの融解点で決定した QSR-Ar (図3(a)) および QSR-Ne (図3(b)) の場合の熱力学温度の音響モード依存性を示している。図3中の実線は、表示した音響モードでの熱力学温度から得られた平均値を示しており、その値を表1にまとめた。

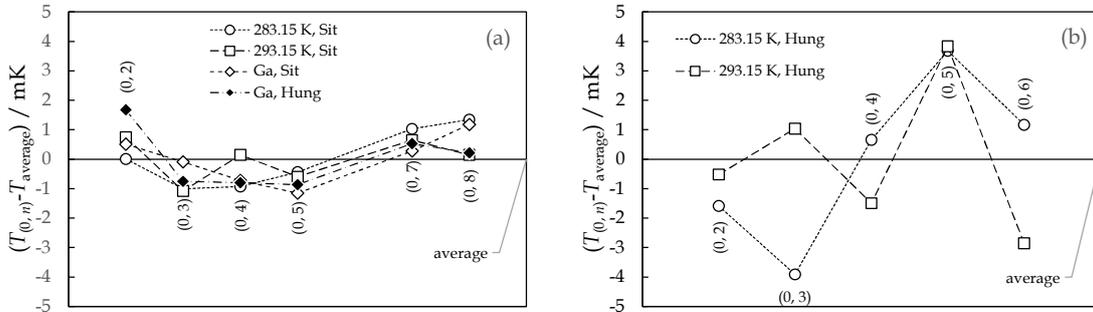


図3 熱力学温度の音響モード依存性 (a) QSR-Ar、(b) QSR-Ne

(3) T_{90} と熱力学温度との差異 ($T - T_{90}$) および不確かさ

本研究で使用した共鳴器 QSR-Ar および QSR-Ne の中のガスの温度を測定するために、ITS-90 に従い校正されたカプセル型標準白金抵抗温度計が使われたので、ITS-90 に準拠した温度 T_{90} が得られた。一方、上述したように、AGT により熱力学温度が得られたことから、 $(T - T_{90})$ を表1に示したように算出した。

表1 QSR-Ar および QSR-Ne による $(T - T_{90})$ およびその不確かさ $u(T - T_{90})$

T_{90}/K	QSR-Ar ^①			QSR-Ne		
	T/K	$(T - T_{90})/\text{mK}$	$u(T - T_{90})/\text{mK}$	T/K	$(T - T_{90})/\text{mK}$	$u(T - T_{90})/\text{mK}$
283.15	283.1513	1.3	0.7	283.1537	3.7	2.7
293.15	293.1527	2.7	0.8	293.1535	3.5	2.8
302.9146	302.9187	4.1	0.8			
302.9146	302.9185	3.9	0.9			

表1に示した $(T - T_{90})$ 不確かさは、温度測定による不確かさ、電磁波測定による不確かさおよび音響測定による不確かさからなる。温度測定不確かさは、温度測定に使用したカプセル型標準白金抵抗温度計の安定性および校正不確かさ、共鳴器の温度分布 (均一性) に起因する不確かさ、測定中の温度安定性、ITS-90 の関数に起因するノンユニークネスによる不確かさ、そして、水の三重点の決定の不確かさからなる。図1(a)で示した QSR-Ar の機構の導入により、共鳴器の温度の均一性が著しく改善できた^①。電磁波測定の不確かさは、モード間のばらつき (不一致、図2) および測定中のガスの圧力の変動に起因する不確かさとして見積もった。音響測定の不確かさは、音速の測定不確かかとして評価しており、水の三重点および任意の温度の各温度での等温線上の測定不確かさおよび音響モード間の不一致性 (図3) に加え、測定中の圧力変動の不確かさおよび熱適応係数の決定に起因する不確かさから推定した。

図4は、本研究で用いた QSR-Ar および QSR-Ne より得られた $(T-T_{90})$ と、その温度域が重なった既存の報告値との比較を示している。図4の横軸は ITS-90 に準拠する温度 T_{90} であり、縦軸は $(T-T_{90})$ を表している。各プロットには、その合成不確かさを表している縦バー（エラーバー）が付いている。本研究において QSR-Ar を用いて得られた熱力学温度は、既存の報告値と不確かさ以内で一致していることが図4から分かった。一方、QSR-Ne で測定したデータは、既存の報告値と比べて系統的に高い値を示しているが、この偏差はアロー付のエラーバーで表示した不確かさ以内であり、既存のデータと不確かさ以内で一致していると結論できた。

これまで述べたように、本研究を開始した当初の目的である、 $(T-T_{90})$ の高精度な評価、ならびに、AGTによる熱力学温度測定がガス種に異存しない、普遍なものであることの検証に関して、達成することができた。本研究のAGTで得られた $(T-T_{90})$ は国内では初めてであり、ITS-90の高精度化となる次期国際温度目盛の開発のための信頼性の高い基礎データとして、技術的意義を持つ。今後は、低温から高温まで測定範囲を拡大できるように、さらなる音響および電磁波共鳴の測定技術の向上を目指す。また、次期国際温度目盛が確立した際、これに基づき、科学や産業に信頼性の高い温度標準を供給できるシステム構築を目指す。

<引用文献>

- ① J. V. Widiatmo, T. Misawa, T. Nakano, I. Saito, Thermodynamic Temperature Measurements from the Triple Point of Water up to the Melting Point of Gallium, *Int. J. Thermophys.*, Vol. 41, 42, 2020 (成果雑誌論文)
- ② T. Misawa, J. Widiatmo, Y. Kano, T. Sasagawa, K. Yamazawa, Progress Report on NMIJ Acoustic Gas Thermometry at the Triple Point of Water, *Int. J. Thermophys.* Vol. 39, 4, 2018 (雑誌論文)
- ③ T. Nakano, I. Saito, Y. Kawamura, J. V. Widiatmo, Comparison of Two Systems of the Triple Point of Gallium for Calibration of Long Stem Type and Capsule Type Standard Resistance Thermometers in NMIJ/AIST, *Proc. SICE Annual Conference*, September 2018, Nara, Japan (成果学会発表論文)
- ④ J. V. Widiatmo, T. Misawa, Measurements of Speed of Sound in Argon for Thermodynamic Temperature Measurement, *Twentieth Symposium on Thermophysical Properties*, June 2018, Boulder, Colorado, USA (成果学会発表論文)
- ⑤ J. V. Widiatmo, T. Misawa, T. Nakano, I. Saito, Development of the Acoustic Gas Thermometry at NMIJ/AIST for the Measurement of $T-T_{90}$, *Proc. SICE Annual Conference 2020*, September 2020, Chiang Mai, Thailand (成果学会発表論文)

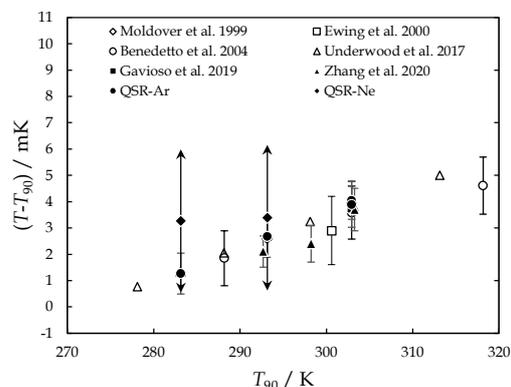


図4 QSR-Ar^①およびQSR-Neと音響気体温度計で得られた報告値との比較

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件／うち国際共著 1件／うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 J. V. Widiatmo, T. Misawa, T. Nakano, I. Saito	4. 巻 41
2. 論文標題 Thermodynamic Temperature Measurements from the Triple Point of Water up to the Melting Point of Gallium	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 International Journal of Thermophysics	6. 最初と最後の頁 Article 42
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1007/s10765-020-2618-x	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 0件／うち国際学会 3件）

1. 発表者名 J. V. Widiatmo, T. Misawa
2. 発表標題 Measurements of Speed of Sound in Argon for Thermodynamic Temperature Measurement
3. 学会等名 Twentieth Symposium on Thermophysical Properties, June 2018, Boulder, Colorado, USA (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 T. Nakano, I. Saito, Y. Kawamura, J. V. Widiatmo
2. 発表標題 Comparison of Two Systems of the Triple Point of Gallium for Calibration of Long Stem Type and Capsule Type Standard Resistance Thermometer in NMIJ/AIST
3. 学会等名 SICE Annual Conference 2018, September 2018, Nara, Japan
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Januaris V. Widiatmo, Tetsuro Misawa, Ikuhiko Saito, Tohru Nakano
2. 発表標題 Thermodynamic Temperature Measurements from the Triple Point of Water up to the Gallium Point
3. 学会等名 TEMPMEKO 2019, June 2019, Chengdu, China (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Januarius V. Widiatmo, Tetsuro Misawa, Tohru Nakano, Ikuhiko Saito
2. 発表標題 Development of the Acoustic Gas Thermometry at NMIJ/AIST for the Measurement of T-T90
3. 学会等名 SICE Annual Conference 2020, September 2020, Chiang Mai, Thailand (国際学会)
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	中野 享 (Nakano Tohru) (20357643)	国立研究開発法人産業技術総合研究所・計量標準総合センター・研究グループ長 (82626)	
研究分担者	三澤 哲郎 (Misawa Tetsuro) (40635819)	国立研究開発法人産業技術総合研究所・計量標準総合センター・研究員 (82626)	
研究分担者	斉藤 郁彦 (Saito Ikuhiko) (50710620)	国立研究開発法人産業技術総合研究所・計量標準総合センター・研究員 (82626)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------