

# 「機能材料の熱物性計測技術と標準物質に関する研究」

研究代表者：小野 晃（産業技術総合研究所）

(平成9年度～13年度)

研究体制：産業技術総合研究所 外10機関

## 研究の概要・目標

### 1. 何を目指しているのか

機器の熱設計や材料特性の評価を行ったり、計測の高度化を図るとき、機能材料の熱物性値（比熱、熱伝導率等）を高い信頼性で効率よく入手できるような測定技術と標準物質を整備する。

#### 5年目の目標

- ①熱物性値の精密計測技術の開発と高度化を図り、国の一次標準を確立する。
- ②標準物質の開発、標準データの整備を行い、研究・生産現場に供給する。
- ③熱物性データベースを開発して標準データの体系的な管理を実現し、広く提供する体制を整備する。

### 2. 何を研究しているのか

機能性材料の特性を表す物性値を計測する技術および標準物質の作製について研究する。

### 3. 何が新しいのか

これまでの熱物性データには無い、機能性材料についての計測法の研究などについても行う。

## 諸外国の現状等

### 1. 現状

現在でも1972年米国パデュー大学発行のデータブックが最も権威ある熱物性データとしている。標準物質については米国標準技術研究所の標準物質が唯一で枯渇しつつある。

現在における実用的な熱物性データ・標準物質は世界的に未整備な状態にある。

### 2. 我が国の水準

我が国においてもこの分野の研究については、なおざりにされていた感があり、遅れている。

これまで、アメリカからの標準物質の供給を受けていたが、本整備により、広範囲な温度領域、高分子材料を含むデータや物質の供給が可能になる。

#### 標準物質とは：

材料の特性が正確に決定された物質。この物質とデータを配布することで、国家標準とのトレーサビリティー確保および国際比較を行うことができる。

## 研究進展・成果がもたらす利点

### 1. 世界との水準の関係

過去には研究が進展して時期もあったが、現在は世界的に研究が下火になっており、熱物性データの入手も困難になっている。

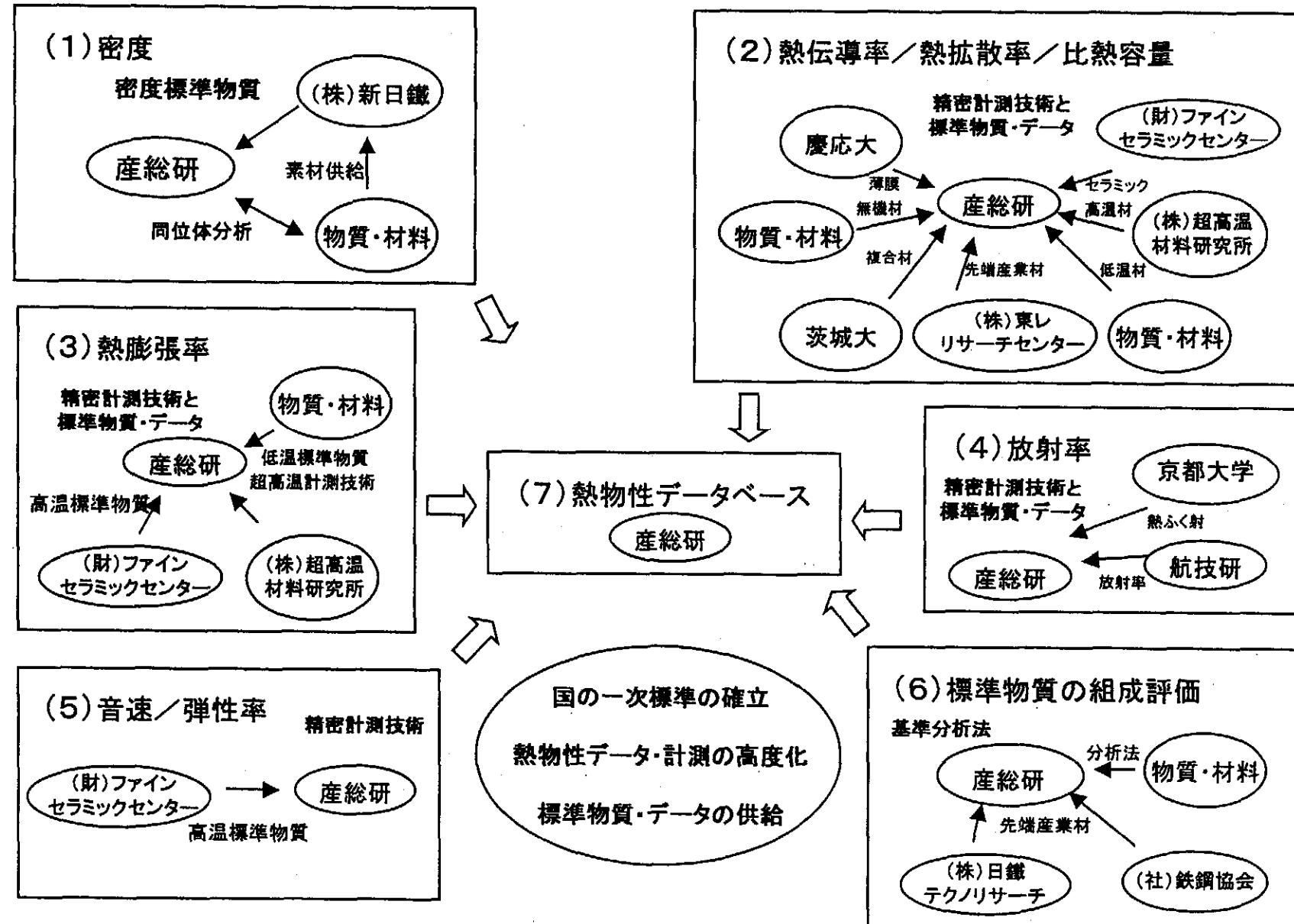
本整備により日本の一次標準が確立され、国際的な整合性を獲得することができる。

### 2. 波及効果

測定のための標準物質の開発、実用的な計測技術の標準化およびデータベースの構築により、先端科学技術分野や産業分野で開発される多くの新しい材料が迅速に社会に普及することが期待される。

特に、航空宇宙、原子力、電子精密機器、物性物理学などでは基礎的情報として不可欠である。

# 「機能材料の熱物性計測技術と標準物質に関する研究」の研究体制



科学技術振興調整費「機能材料の熱物性計測技術と標準物質に関する研究」の実施体制および所要経費

研究項目	担当機関	担当者	(千円)					
			平成9年度 所用経費	平成10年度 所用経費	平成11年度 所用経費	平成12年度 所用経費	平成13年度 所用経費	
1. 密度に関する研究	経済産業省 産業技術環境局 独立行政法人産業技術総合研究所(委託)	薗井賀一	22,106	33,741	22,420	28,051	17,226	
(1) 精密計測技術開発と標準物質の供給	経済産業省 産業技術環境局 独立行政法人産業技術総合研究所(委託)	森下祐一	8,126	9,973	8,698	8,215	8,395	
(2) 固体のモル質量の精密測定の研究	文部科学省 研究振興局 独立行政法人物質・材料研究機構(委託)	野田哲二	5,000	9,377	12,211	8,006	9,141	
① モル質量計測法の研究	経済産業省 産業技術環境局 独立行政法人産業技術総合研究所(委託)	裕敦	3,570	8,052	8,797	7,033	6,507	
② モル質量標準作製技術	新日本製鐵(株)先端技術研究所(再委託)							
(3) 半導体結晶の微視的構造評価の研究								
2. 热伝導率／熱拡散率／比熱容量に関する研究	経済産業省 産業技術環境局 独立行政法人産業技術総合研究所(委託)	馬場哲也	29,730	35,772	55,378	35,550	23,781	
(1) 精密測定技術と標準試料・標準データの研究	経済産業省 産業技術環境局 独立行政法人産業技術総合研究所(委託)	長坂雄次	14,243	11,239	10,778	10,176	8,868	
(2) 薄膜／傾斜機能材料の熱物性の研究	慶應義塾大学理工学部(再委託)							
(3) 先端無機材料の熱物性に関する研究	文部科学省研究振興局 独立行政法人物質・材料研究機構(委託)	三橋武文	10,712	10,230	9,281	8,297	7,600	
(4) 複合材料／微小領域／高温融体の熱物性の研究	茨城大学工学部	太田弘道	21,225	5,707	3,330	9,931	5,463	
(5) 热拡散率標準物質とファインセラミックスの熱物性の研究	経済産業省 産業技術環境局 独立行政法人産業技術総合研究所(委託)	内藤牧男(松井実)	21,567	10,044	15,618	12,532	14,280	
(6) 高温材料の熱物性の研究	(財)ファインセラミックスセンター(再委託)	樹本弘毅	19,298	2,836	12,241	5,984	8,353	
(7) 先端産業用材料の熱物性の研究	経済産業省 産業技術環境局 独立行政法人産業技術総合研究所(委託)	十時穂	15,435	19,947	14,136	11,814	15,563	
(8) 低温材料の熱物性の研究	(株)東レリサーチセンター(再委託)	文部科学省研究振興局 独立行政法人物質・材料研究機構(委託)	沼澤健則(佐藤明男)	8,758	9,988	8,242	8,101	5,821
3. 热膨張率に関する研究	経済産業省 産業技術環境局 独立行政法人産業技術総合研究所(委託)	山田修史(岡路正博)	26,815	26,630	21,878	26,622	19,191	
(1) 精密計測技術・標準物質および標準データの研究	文部科学省研究振興局 独立行政法人物質・材料研究機構(委託)	沼澤健則(佐藤明男)	7,558	5,998	6,488	5,125	6,378	
(2) 低温標準物質および計測技術の研究	経済産業省 産業技術環境局 独立行政法人産業技術総合研究所(委託)	内藤牧男(松井実)	4,937	13,899	5,084	5,432	6,402	
(3) 高温標準物質及び計測技術の研究	(財)ファインセラミックスセンター(再委託)	樹本弘毅	3,495	15,417	3,463	2,743	4,349	
(4) 超高温での計測技術の研究	経済産業省 産業技術環境局 独立行政法人産業技術総合研究所(委託)							
4. 放射率に関する研究	経済産業省 産業技術環境局 独立行政法人産業技術総合研究所(委託)	小野亮	35,342	30,974	34,680	37,125	24,485	
(1) 放射率精密測定技術と標準試料・標準データに関する研究	京都大学大学院工学研究科	牧野俊郎	9,684	9,160	8,932	8,027	9,252	
(2) 実在表面の熱ふく射特性と熱ふく射診断の研究	科学技術庁航空宇宙技術研究所	(佐野政明)	7,114	5,521	422			
(3) 高温放射率の計測技術の研究								
5. 音速／弾性率に関する研究	経済産業省 産業技術環境局 独立行政法人産業技術総合研究所(委託)	中野英俊	19,408	17,883	9,224	11,369	13,593	
(1) 音速／弾性率の精密測定技術の研究	経済産業省 産業技術環境局 独立行政法人産業技術総合研究所(委託)	内藤牧男(松井実)	3,632	4,720	4,940	5,448	6,392	
(2) 高温標準物質と計測技術の研究	(財)ファインセラミックスセンター(再委託)							
6. 標準物質の組成評価に関する研究	経済産業省 産業技術環境局 独立行政法人産業技術総合研究所(委託)	倉橋正保	24,017	19,524	18,780	19,736	18,629	
(1) 基準分析法の開発に関する研究	文部科学省研究振興局 独立行政法人物質・材料研究機構(委託)	小林剛	5,000	6,875	5,720	2,822	3,790	
① 同位体希釈質量分析法の高度化に関する研究	経済産業省 産業技術環境局 独立行政法人産業技術総合研究所(委託)	富田幸夫(笠原茂樹)	13,243	13,708	16,380	13,547	11,417	
② ICP-MSにおける試料調製と分析法の高精度化に関する研究	(社)日本鉄鋼協会(再委託)	鈴木堅市	9,657	10,194	12,441	10,722	9,378	
(2) 先端産業用材料の組成評価に関する研究	経済産業省 独立行政法人産業技術総合研究所(委託)	馬場哲也	1,890	2,764	10,767	15,480	20,403	
① 鉄鋼材料の組成評価に関する研究	(株)日鋼テクノリサーチ(再委託)	小野亮	36	36	760	45	912	
② GDMSによる組成評価法に関する研究	経済産業省 産業技術環境局 独立行政法人産業技術総合研究所(委託)							
7. プロトタイプ熱物性データベースに関する研究	経済産業省 産業技術環境局 独立行政法人産業技術総合研究所(委託)							
8. 研究運営	所用経費(合計)		361,598	350,209	341,089	317,933	284,569	

( )は第Ⅰ期の担当者

## 研究成果の概要

課題名：(研究機関名、研究代表者) 機能材料の熱物性計測技術と標準物質に関する研究  
(独立行政法人 産業技術総合研究所 計測標準研究部門 部門長 小野 晃)

### ① 热物性の計測体系の構想

最高精度の一次標準を頂点として、その計測精度をできるだけ低下させることなくかつ経済合理性のもとに、多くの熱物性データ利用者に信頼性の高いデータを提供できるような計測技術体系の構想を打ち出した。そこでは精密計測技術、一次標準、標準物質、実用計測技術の標準化、先端計測技術、及びデータベースに関して、それぞれの役割と関連が明確化され、本研究プロジェクトを一貫した方針のもとに体系的に遂行することを可能とした。

提示した計測体系の構想により、社会のなかで行われる熱物性に関するさまざまな活動に役割と意味づけを与えることができ、一貫した方針のもとで体系的な研究開発を可能にした点は評価できる。このように社会全体の活動を視野に入れて体系化した研究開発のアプローチは世界的に見ても初めてのものである。

### ② 精密計測技術と一次標準の開発

密度に関しては、単結晶シリコン球体の直径を精密に絶対測定する技術を開発し、およそ  $10^{-7}$  の標準不確かさで密度を決定した。熱拡散率に関しては、レーザフラッシュ法で 1~2% の標準不確かさで熱拡散率を測定する技術を確立した。この研究功績で研究担当者は米国で開かれた国際熱伝導率会議において、日本人で初めて熱伝導率賞を受賞するとともに、第 32 回市村学術賞功績賞を受賞している。熱膨張率に関してはヘテロダイン光干渉法により精密絶対測定技術を開発し、 $1\text{nm}$  程度の不確かさで試料長変化の測定を可能とした。精密な温度測定と組み合わせることにより、およそ  $10^{-8}/\text{K}$  の標準不確かさでの熱膨張率の測定を実現した。音速に関しては、室温から  $1000^\circ\text{C}$  を越える範囲で適用可能なレーザ超音波励起技術を用いた完全非接触測定技術を開発し、縦波の音速を  $10^{-4}$  の標準不確かさでの測定を実現した。

以上の技術はいずれも現在のところ世界最高の測定精度を達成している。

密度、熱拡散率、熱膨張率、音速に関してはいずれも一次標準器の基本部分の製作を終えており、現在いずれも世界最高の測定精度を達成している。

### ③ 標準物質の開発

標準物質を開発するためにそれぞれの物性値に対応して候補材料を選択し、熱サイクル安定性、ロット内均一性等、標準物質としての適格性評価を進めた。

密度に関しては、計量法校正事業者認定制度（JCSS）の特定標準器に本研究で開発した単結晶シリコン球体を指定し、校正事業者に対して液中ひょう量法によるシリコン結晶の密度校正を実施した。これにより、我が国の密度標準トレーサビリティ制度が確立した。

熱拡散率・熱伝導率に関しては、非結晶質の炭素材料の一種であるガラス状炭素を標準物質候補材料に選定し、2002年度の供給開始に向けて供給用ロットの均質性、安定性の評価と、熱拡散率標準値の決定ならびに標準値の不確かさの評価を行った。熱膨張率に関しては、ガラス状炭素を標準物質候補材料に選定し、供給用ロットの均質性、安定性の評価を行い、2002年度の供給開始に向けて、熱拡散率標準値の決定ならびに標準値の不確かさの評価を行った。音速・弾性率の標準物質に関してはアルミナを候補に選定し、評価を進めた。組成の標準物質に関しては、鉄鋼標準物質に含まれるいくつかの元素について値付けを行い、従来からの共同分析法によって得られた認証値の正しさを証明することができた。

#### ④ 実用計測技術の標準化

実用計測技術に関しては、計測の不確かさの評価方法を標準化するという新しい考え方を打ち出した。それにもとづいて種々の実用測定法の不確かさ評価技術の開発を進めた。

密度に関しては、液中秤量法による実用密度測定技術を開発した。熱拡散率に関しては、本研究の成果を踏まえて、レーザフラッシュ法による、セラミックスの熱拡散率計測技術のISO規格、金属の熱拡散率計測技術のJIS規格、およびによるセラミック複合材の熱拡散率計測技術のJIS規格の草案を作成した。熱伝導率に関しては、定常法とスリーオメガ法（3倍周波数法）の開発を進めた。比熱容量に関しては内部熱補償型の示差走査熱量測定法(DSC)により室温から600°Cまで、誤差0.5%以内で測定するための条件を明らかにした。また示差方式レーザフラッシュ法による比熱容量測定装置を開発し、熱拡散率と比熱容量の同時測定を実現した。熱膨張率に関しては、押し棒式膨張計の高精度化および計測器の評価法・校正法の標準化についての基礎データの取得を完了した。弾性率に関しては、レーザ励起法との比較測定により、共振法が、再現性が良く、不確かさが小さく、室温から高温まで測定可能な実用的弾性率計測法であることが確認された。

本プロジェクトで打ち出した標準化の新しい考え方により、測定技術の進歩を阻害することなく、機器製造者、機器購入者・使用者、データ利用者が測定データの信頼性を共通のベースのもとで評価できるという新しい技術環境が生まれた。物性分野でこのような規格を目指すことは世界的に見ても初めての試みであり評価される。

#### ⑤ 先端計測技術の開発

先端産業上また科学技術上重要でありながらこれまで熱物性値が測定できなかった材料に対して、

測定を可能とするような各種計測技術の開発を進めた。単結晶シリコンの密度測定に関しては圧力浮遊法を開発し、相対合成標準不確かさ $(0.05\sim0.12)\times10^{-6}$ での密度差測定を実現した。薄膜の熱拡散率測定では厚さ100 nm程度の金属薄膜に対して、ピコ秒レーザを加熱源と温度検出に用いた測定法を考案し、これまで測定が不可能であった厚さ1 μm以下の薄膜に対して、熱拡散率を精度良く測定する技術を開発し、測定される熱拡散率の不確かさを評価した。表面の熱拡散率測定に関しては、厚さ数十 nmから数百 μmの固体表面層の熱拡散率を測定するために、フェムト秒レーザ格子加熱法、メガヘルツ変調熱反射法、動的格子加熱法、フォトサーマル赤外検知法、光音響法を開発した。

最近の新しいニーズであるエレクトロニクスや精密機械・光学分野に対して、極短時間加熱、高速変調・検出などの高度な技術によって従来は全く計測できなかった薄膜や表面に対してデータが初めて得られるようになったことは大きな前進である。産業界からも測定の依頼があり、測定の技術移転も行われていることは評価できる。

#### ⑥ プロトタイプデータベースの構築

材料・物質の熱物性データベースに関して、従来の集中型データベースの欠点を克服するために、分散型データベースの新しい考え方を打ち出した。分散型データベースにおいては、データを生産し評価する拠点（データステーション）がそれぞれ小規模なデータベースを構築し、それらをキーステーションに統合する。データユーザはインターネットを通して統合されたデータベースにアクセスする。

分散型データベースでは、データの管理権（維持・更新）と知的所有権を各データステーションに分散配置することにより、競争的環境のもとでデータベースの自立的・継続的発展を実現できる。インターネットを介した効率的なデータ入力のためのグラフ対応のソフトウェア（マネージメントビューア）と、効率的なデータ検索のためのグラフ対応のソフトウェア（グラフィックビューア）を開発した。さらに、データへのアクセス権の設定プロジェクト管理およびデータ登録を行うための権限の設定を行う機能を備えることにより、安全、柔軟かつ効率的なデータベース管理を実現し、データベースをインターネットを介して公開するとともに、インターネットによるデータの入力と更新も可能とした。

本プロジェクトで提示した「分散型データベース」の構想により、データの生産・評価拠点にはそれぞれのデータベースを最新のものに維持・更新する動機が生まれ、また競争的環境のもとにデータベースが自立的・持続的に発展できるメカニズムがビルトインされた。このような分散型データベースの構想は日本独自のアイデアであり、今後世界的に広めていくことが期待され大いに評価される。

## 研究成果公表等の状況

課題名：(研究機関名、研究代表者) 機能材料の熱物性計測技術と標準物質に関する研究  
(独立行政法人 産業技術総合研究所 計測標準研究部門 部門長 小野 晃)

### 【研究成果発表等】(第Ⅰ期、第Ⅱ期総計)

	原著論文による発表	左記以外の誌上発表	口頭発表	合計
国内	35件	74件	362件	471件
国際	146件	15件	135件	296件
合計	181件	89件	497件	767件

【特許等出願等】 25件 (国内21件、国外 4件)

【受賞等】 20件 (国内19件、国外 1件)

- ・平成9年度科学技術庁長官賞「低誘導放射化材料に関する研究」(平成9年5月19日) 野田哲二
- ・平成10年度科学技術長官賞研究功績者「レーザ干渉計による固体の熱膨張率の絶対測定技術の研究」(平成10年4月15日) 岡路正博
- ・平成10年度日本材料試験技術協会賞「非接触超音波による材料評価」(平成10年4月22日) 中野英俊, 松田洋一
- ・平成10年度計量研究所論文賞「Thermophysical properties of Hg-1223 under magnetic fields」(平成10年5月26日) 加藤英幸
- ・平成10年度計量研究所論文賞「Accurate and simultaneous measurement of the thermal conductivity and thermal diffusivity of liquids using the transient hot-wire method」(平成10年5月26日) 渡辺英雄
- ・平成10年度計量研究所奨励賞「ピコ秒サーモリフレクタンス法を用いた薄膜熱拡散率計測技術の開発」(平成10年5月26日) 竹歳尚之
- ・日本金属学会論文賞(平成10年9月28日)「赤外レーザ照射によるS i同位体の

濃縮」鈴木裕 荒木弘 野田哲二

- ・平成 10 年度日本熱物性学会奨励賞「熱拡散率標準物質の開発」(平成 10 年 10 月 22 日) 小川光
- ・熱伝導率賞「光パルス加熱法による熱物性測定技術の進歩への寄与」第 25 回国際熱伝導率会議 (Michigan 州 Ann Arbor 市, 平成 11 年 6 月) 馬場哲也
- ・平成 11 年度計測自動制御学会著述賞「超精密計測がひらく世界」(講談社ブルーバックス) (平成 11 年 7 月) 小野晃 (代表編集)
- ・平成 11 年度日本熱物性学会 奨励賞「金属・半導体の融点における分光放射率の測定」(平成 11 年 10 月 21 日) 渡辺博道
- ・平成 11 年度日本鉄鋼協会学術記念賞西山記念賞「鉄鋼製鍊に関する熱物性の研究」(平成 12 年 3 月 29 日) 太田弘道
- ・第 32 回市村学術賞功績賞「レーザフラッシュ法による熱拡散率計測技術と標準に関する研究」(平成 12 年 4 月 28 日) 馬場哲也
- ・平成 12 年度計量研究所奨励賞「常温域放射温度標準開発及び熱物性計測技術への応用に関する研究」(平成 12 年 5 月 26 日) 石井順太郎
- ・日本低温工学協会 優良発表賞「レーザスポット加熱式 ac 法における異方的熱拡散率解析」(平成 12 年 5 月 30 日) 加藤英幸
- ・計測自動制御学会 2000 年度学術奨励賞技術奨励賞「サーモリフレクタンス法を用いた薄膜・微小領域の熱物性計測技術」(平成 13 年 2 月 22 日) 竹歳尚之
- ・文部科学大臣賞 (旧科学技術庁長官賞)、「固体密度標準の開発とアボガドロ定数の決定」(平成 13 年 4 月 5 日) 藤井賢一
- ・低温工学優良発表賞「酸化物蓄冷材料の特性」(平成 13 年 5 月) 沼澤健則
- ・日本熱物性学会 奨励賞、「ピコ秒サーモリフレクタンス法による薄膜熱拡散率測定技術の開発」(平成 13 年 11 月 21 日) 竹歳尚之
- ・日本分析化学会第 50 年会ポスター賞「鉄鋼標準物質 JSS001-4 中サブ ppm レベルの金属不純物の一次標準測定法による高精確定量」(平成 13 年 11 月 25 日) 野々瀬菜穂子

【主要雑誌への研究成果発表】

Journal	Impact Factor	サブ'テ -71	サブ'テ -72	サブ'テ -73	サブ'テ -74	サブ'テ -75	サブ'テ -76	サブ'テ -77	合計
Measurement Science and Technology	0.859	3	5	3	3	1	0	1	16
Review of Scientific Instruments	1.352		1			1			2
Japanese Journal of Applied Physics	1.249	1	1	1		1			4
Journal of Applied Physics	2.128	1	1						2
International Journal of Thermophysics	0.773			6	2				8
High-Temperatures High-Pressures	0.438			4					4
IEEE Trans. Instrum. Meas.	0.900	2							2
Cryogenics	0.697			2	2				4
Applied Physics Letter	3.849					1			1
Applied Surface Science	1.068	1	1						2
主要雑誌小計		8	21	8	3	4	0	1	45
発表論文合計		44	67	19	30	11	9	1	181