

# 熱物性データの生産と利用の社会システム

## — レーザフラッシュ法による熱拡散率の計測技術・計量標準・標準化・データベース —

馬場 哲也\*、阿子島 めぐみ

レーザフラッシュ法による熱拡散率の計測技術の開発、計量標準と標準物質の整備、計測技術の標準化に体系的に取り組み、信頼性の高い熱拡散率データを効率的かつ迅速に社会に供給するシステムを実現した。レーザフラッシュ法を精密化するために開発されたレーザビームの均一化技術、高速放射測温技術およびデータ解析技術により実用測定装置による熱拡散率計測の不確かさが低減され、新規に制定された複数のJIS規格およびISO規格に反映された。さらにJIS規格の最新の改定に際しては不確かさの評価法と標準物質による校正法が記載された。このようなシステムにより生み出される熱物性データはデータベースに収録されインターネット公開されている。

**キーワード:**熱物性データ、熱拡散率、レーザフラッシュ法、計量標準、標準物質、計測技術の標準化、データベース、トレーサビリティ、不確かさ、知的基盤

### Social system for production and utilization of thermophysical property data

– Measurement technology, metrological standard, standardization of measurement method, and database for thermal diffusivity by laser flash method –

Tetsuya BABA\* and Megumi AKOSHIMA

The National Metrology Institute of Japan implemented a system to supply reliable thermal diffusivity data efficiently and rapidly to society. The system was born out of R&D on technology for thermal diffusivity measurement by using a laser flash method, by establishing a metrological standard and reference materials, and by standardization of measurement technology. Uncertainty in measurement of thermal diffusivity with practical apparatus was reduced using technology to homogenize the laser beam, a fast response infrared thermometer, and a curve fitting method to analyze temperature response curves. JIS and ISO standards were established based on the advanced laser flash method. In addition, methods to evaluate uncertainty in measurement of thermal diffusivity and laser flash device calibration by reference materials are described in the latest update of the JIS standard. Traceable thermophysical property data produced by this system are stored in a database system developed and operated by the National Metrology Institute of Japan (NMIJ), which can be accessed from the web.

**Keywords:** Thermophysical property data, thermal diffusivity, laser flash method, metrological standard, reference material, standardization of measurement method, database, traceability, uncertainty, intellectual infrastructure

#### 1 はじめに

先進的なデバイスや機器、構造体においては、それらの熱的な特性が機能や安全性の限界を決めることがしばしば起こる。例えば高集積化した電子デバイスに機能を発揮させるためには、微小な空間に集中配置した多数の素子が発生する大量の熱を効果的に取り去る冷却機構が必要である。大気圏へ再突入する宇宙往還機が過酷な空力加熱に耐えるためには、その外壁に超高温下で断熱性能を発揮する特別の材料が必要である。原子力発電所の過酷事故を解析するときには、核燃料とそれを取り巻く炉心の温度挙動を超高温に至るまで正確にシミュレーションする必要がある。化石燃料の消費と炭酸ガスの排出を減らすには社会全

体で熱エネルギーの利用効率の改善が必要であるが、そのためには優れた断熱性能、伝熱性能、蓄熱性能を持った材料を適切に使い分けていく必要がある。

このようにデバイスや機器、構造体に安全で優れた機能を発揮させるためには、あらかじめ信頼性の高い熱設計を行っておくことが必要である。熱設計では関係するすべての材料と部材に関して正確な熱物性データが既知でなければならない。しかしながら材料の熱物性データを入手しようとする多くの困難に遭遇するのが現実であった<sup>[1]-[3]</sup>。

熱物性データが必要になった時、まずデータブックやデータベースで関心のある材料について熱物性データを探すことになる<sup>[4]</sup>。しかしながら当該材料に関する熱物性データ

産業技術総合研究所 計測標準研究部門 〒305-8563 つくば市梅園 1-1-1 中央第3  
National Metrology Institute of Japan, AIST Tsukuba Central 3, 1-1-1 Umezono, Tsukuba 305-8563, Japan \* E-mail: t.baba@aist.go.jp

Original manuscript received January 10, 2012, Revisions received August 16, 2013, Accepted August 22, 2013

が見当たらない場合も結構多い。あったとしても当該材料とちょうど同じものに関するデータかどうか明確でない場合も少なくない。目安としての熱物性データが欲しい場合にはそれでもよしとされるが、機能を限界まで発揮させたり安全性を確実に担保したりするには不十分であり、自ら熱物性を測定するか専門機関に測定を依頼する必要がある。一方測定を実際に行うにしても、適確な測定法の選択や得られた熱物性データの信頼性についての情報は十分ではなく、社会的に合意された指針が提示される状況には至っていない<sup>[12]</sup>。

電子技術、精密・光学技術、環境・エネルギー技術、航空宇宙・原子力技術等の分野で種々の先進的材料が開発されているが、それらについて信頼性の高い熱物性データを入手することは現在でもなお容易でない。このような背景のもと、産業技術総合研究所（以下、産総研）は過去30年近くにわたって熱物性計測と標準物質に関する研究を行ってきたが、研究シナリオを設定するに当たって最も重視したことは、産総研が社会の中でいかにして公的な役割を果たすかであった。すなわち高精度の熱物性データが、計量標準を担う産総研においてのみ生産されればそれでよしとするのではなく、日本および世界の多くの専門家が信頼性の高い熱物性データを効率的に生産でき、かつそれらが社会の中で効果的に利用されるような技術基盤、すなわち「熱物性データの効率的生産と効果的利用のための社会システム」とでもいうべきものを構想し構築することを研究の最終目標においた<sup>[3]</sup>。

目標達成のために産総研はさまざまな熱物性に関する研究活動を行ってきたが、この論文ではその中から固体材料の熱拡散率を取り上げ、その精密計測技術、計量標準、標準物質、実用計測方法の標準化に関する研究シナリオと研究結果を述べる。また広くユーザーの要請に応えるために、産総研が熱物性を測定し標準物質を頒布するというサービス体制を整えたことにも言及する。実用計測技術に関しては国際標準化機構（ISO）の規格と日本工業規格（JIS）を作成したことに触れる。産総研では熱物性のデータベースも合わせて研究開発してきたが、この論文では紙数の関係でこれには触れず文献を挙げるにとどめた。

## 2 熱物性の計測とデータ

### 2.1 熱物性とは

材料・物質の熱的特性を数値で表したものが熱物性値である。熱エネルギーの移動と蓄積に関わる断熱性能、伝熱性能、蓄熱性能等は熱伝導率、比熱容量、熱拡散率、熱浸透率等の熱物性値によって表される。それぞれの熱物性値は以下のように定義される<sup>[4]</sup>。

熱伝導率（ $\lambda$ ）：伝導による熱の伝わりやすさは熱伝導率で表され、物質中を流れる熱流密度の温度勾配に対する比率で定義される。単位は $\text{Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ である。

比熱容量（ $c$ ）：単位質量当たり物質の温度を1 K上昇させるのに必要な熱量である。単位は $\text{J kg}^{-1}\text{K}^{-1}$ である。

熱拡散率（ $a$ ）：熱伝導率 $\lambda$ 、比熱容量 $c$ 、密度 $\rho$ から以下の式により定義される。

$$a = \lambda / (c\rho) \quad (1)$$

熱拡散率の単位は $\text{m}^2\text{s}^{-1}$ である。断熱された物体の一部を短時間加熱して他の部分より温度を高くすると、時間の経過とともにその熱が物体全体に広がり最後に均一温度となるが、このような温度が均一になっていく速さは熱拡散率に比例する。

熱伝導率 $\lambda$ を直接測定することが難しい場合には、熱拡散率 $a$ 、比熱容量 $c$ 、密度 $\rho$ を別途測定することにより(1)式を使って計算で熱伝導率が求められる。

熱浸透率（ $b$ ）：熱伝導率 $\lambda$ 、比熱容量 $c$ 、密度 $\rho$ から以下の式により定義される。

$$b = \sqrt{\lambda c\rho} \quad (2)$$

熱浸透率の単位は $\text{Jm}^{-2}\text{s}^{-1/2}\text{K}^{-1}$ である。直感的には十分厚い物体の表面を一樣に加熱したときに物体が熱を吸収する能力として理解される。鉄のように熱伝導率と密度が大きい材料は熱浸透率が大きく、加熱面の温度が上昇しにくい。逆に熱伝導率が小さく密度も小さい断熱材は熱浸透率が小さく加熱面の温度が上昇しやすい。

熱伝導率 $\lambda$ 、体積熱容量 $c\rho$ （＝比熱容量×密度）、熱拡散率 $a$ 、熱浸透率 $b$ の4つは互いに独立でなく、それらのうちの任意の二つの量が定まれば、残りの二つの量も決定される。またこれらの熱物性値には温度依存性があるので、温度の関数として表す必要がある。

電気・電子物性や力学物性、光学物性は、それらの定義通りの条件で測定することが比較的容易であるのに対して、熱物性は前節に述べた定義通りに正確に測定することは容易でない。その理由は、真空中でさえ熱放射でエネルギーが伝達されてしまうように、完全な断熱が現実には容易でなく、その結果熱流を正確に制御することが難しいことにある。そのため熱物性の測定法は新しい技術を取り入れながら、現在でも研究が盛んに行われている。

### 2.2 計測のトレーサビリティと標準物質

1957年にソ連が世界発の人工衛星スプートニク1号の打ち上げに成功し、米国は宇宙開発においてソ連に先行されたこと（スプートニクショック）に刺激され、科学技術の競争力を基盤に遡って底上げすることに国策として取り組んだ。スプートニクショックは米国において品質管理と計測のトレーサビリティの重要性が認識される契機となった。

国立標準局 (National Bureau of Standards, NBS) では1960年代に国家的な計測のトレーサビリティの実現に対する要請に応えるために、熱物性を含む広範な分野において標準物質の開発<sup>[5]</sup>や標準データ<sup>[6]</sup>の整備に組織的に取り組んだ。

国立標準局は1988年に国立標準技術研究所 (National Institute of Standards and Technology, NIST) に改組されたが、今日では、国立標準技術研究所は熱物性分野において新規の標準物質を開発するポテンシャルを失い、在庫が切れた標準物質を補充できない状況になっている。

欧州においても熱物性標準物質の開発が行われ、固体材料については欧州標準物質計測研究所 (Institute for Reference Materials and Measurements, IRMM) が1990年代に3種類の熱伝導率または熱拡散率の標準物質を供給開始した<sup>[7]</sup>。

日本では、長さ、質量、時間、電気、温度等の基本量に関しては国家標準にトレーサブルな計測器で測定すれば、どの機関で測定しても計測結果は不確かさの範囲で一致するような社会システム (トレーサビリティ体系) がよく整備されている。一例をあげると計量法校正事業者登録制度 (Japan Calibration Service System, JCSS)<sup>[8]</sup>のもとで認定された事業者によって校正の行われた温度計を適切に使用した場合、測定した温度値は使った温度計の種類や測定者によらず、互いに整合した普遍的な値が期待できる。

組立量である物性量においても、密度や粘度については計量法に基づいて標準の整備と供給が実現されている。一方、熱伝導率や熱拡散率についてはトレーサビリティ体系は未整備であったが<sup>[2][3]</sup>、産総研の取り組みにより現在では緻密な材料の熱拡散率標準物質および熱伝導率標準物質を頒布できる状態になった<sup>[9]</sup>。

熱物性のトレーサビリティと計測に関する学会、国際度量衡委員会、旧通商産業省工業技術院計量研究所の取り組みは当論文末尾の付録を参照されたい。

### 2.3 熱物性データ整備の歴史

材料・物質の熱物性データを収集し、広範なユーザーに体系的に提供していくことに関して、欧州と米国は長い歴史を有している。ドイツでは19世紀末から熱物性を含む物性データの収集と評価に組織的かつ継続的に取り組み、その成果を編集しデータ集としてランドルト・ベルンシュタイン物理化学データブックを刊行した。今日ではそのデータはデジタル化され、SpringerMaterials (Landolt-Börnstein Database) という名称のオンラインデータベースとなっている<sup>[10]</sup>。

米国では1920年代に国立標準局の主導により International Critical Tables が編集された<sup>[11]</sup>。米国議

会は1968年に“Standard Reference Data Act”を成立させ、米国政府は世界初のデータ評価プログラムの開始を決定し、国家標準データシステム (National Standard Reference Data System, NSRDS) が発足した<sup>[12]</sup>。その一環として熱物性分野においてはパデュー大学熱物性研究センター (Thermophysical Property Research Center, TPRC) が膨大な熱物性データの収集と評価を行い、全14巻に及ぶ熱物性データブック (TPRC データシリーズ) を発刊した<sup>[13]</sup>。

このデータブックは、単体元素等の基礎的な物質に加えて実用材料を中心とした広範な材料・物質に関する熱物性のデータを文献から収集するとともに、一部のデータについてはそれらの信頼性を評価して推奨値を提供した体系的かつ継続的な取り組みの成果である。ただ収集されたデータには十分に確立されていない測定法によるデータが含まれていること、測定装置が適切に校正されていない場合があること、測定した材料・物質を同定する情報 (キャラクターゼーション情報) が十分でないことなどの理由から、データの信頼性の評価が課題となっていた。

パデュー大学熱物性研究センターは米国における材料開発が頭打ちになった1980年代に、情報数値データ解析合成センター (Center for Information and Numerical Data Analysis and Synthesis, CINDAS) として再編され活動を継続したが、データの収集や評価に対する取り組みは限定的となった。現在は、そのデータは Limited Liability Company である CINDAS LLC に引き継がれ、データベース化されている<sup>[14]</sup>。

その後、エレクトロニクス材料、環境・エネルギー材料、ライフサイエンス関連材料に対する熱物性データのニーズが増してきたが、今日に至るまで TPRC データシリーズに匹敵する包括的なデータブックの編集・出版は行われていない。

固体材料に関する熱物性分野では国立標準局の熱物性標準物質とパデュー大学情報数値データ解析合成センターのデータ集とが NSRDS の大きな成果であったが、その間の連携は必ずしも十分ではなかった。市販されている多数の熱物性測定機器が熱物性標準物質により校正・検証され、その結果信頼性の高い熱物性データが広く生産されてデータ集に反映されると言う状況までには至らなかった。

### 2.4 熱物性データの信頼性と計測技術の課題

熱物性データを取得するためによく使用される測定方法であっても、測定装置の取り扱いが複雑であったり、測定の信頼性 (精度) が低かったり、あるいは信頼性の確認が容易でなかったりすることがある。同じ試料に対して同一の測定方法で取得した熱物性データであっても相当なばら

つきを示したり、測定方法が異なればばらつきは一層大きくなったりする状況が生じていた<sup>[3][15][16]</sup>。

熱物性データが個々の測定装置や測定機関を超えて普遍的な情報となるためには、標準化された仕様を満たし、標準化された手順に従って測定を行う必要がある。さらに測定装置を国家標準器によって値づけられた標準物質により校正するか妥当性検証を行うことによって計測のトレーサビリティが確保される。このような状況を実現するためには国家標準器と標準物質の整備、測定法の標準化(JIS規格、ISO規格等の整備)および規格に対応した実用計測器の開発の三位一体の取り組みが求められる<sup>[17]</sup>。

### 3 シナリオの設定

研究の初期段階において我々は、多くの技術者・研究者が必要ときに十分小さな不確かさで迅速に熱物性データを入手できるような社会システムを構想し、図1に示す研究のシナリオを設定した<sup>[3][15]</sup>。

図1のシナリオにおいて、第1に、該当する熱物性の計測技術の精密化と、それに基づく国家標準器と標準物質の整備を掲げた。第2に、標準物質には均質であること、長期にわたって性質が変化しないことなどを要件として定めた。また要件を満たした材料について熱物性を計測してその標準値を付与するとともに、標準値の不確かさを評価して社会に供給することとした。

第3に、計測技術の標準化すなわち規格整備を掲げた。熱物性の計測方法や手順がJISやISO等の規格に規定されていれば、上記の標準物質を用いて計測器を校正・検証

することにより、計測の不確かさの評価と国家標準にトレーサブルな熱物性計測を実現できるからである。

第4に、材料キャラクタリゼーション技術を取り上げた。物性データが温度、圧力等状態変数の測定データと本質的に違う点は、測定結果が個々の測定対象だけでなく、同一のキャラクタ(組成、構造等)を持ち同一の状態(温度、圧力等)にある材料に対しては一義的に決まることである。しかしながら流体の物性が組成によって定まると異なり、固体の場合にはたとえ同じ組成の材料であっても結晶構造等の材料キャラクタが異なれば熱物性値が大きく変化することがある。特に熱伝導率、熱拡散率等の輸送性質に関しては結晶構造や粒径等に敏感に依存して変化するので高度のキャラクタリゼーションが必要となる。

第5に、測定された熱物性データを材料の組成・構造の情報(キャラクタリゼーション情報)とをセットにして熱物性データベースに収録し、信頼性の高い熱物性データを大量にインターネット上に公開し広範なユーザーが速やかに利用できることを掲げた。

さらにこれらにデータ評価技術とデータマネジメントシステムを加え、図2に示したシナリオに基づいて信頼性の高い普遍的な価値を有する熱物性データを組織的かつ継続的に生み出すことを目標とした。また熱物性の測定値と材料のキャラクタをセットにして収録したものを「高水準データセット」と呼んだ。このデータセットが社会の中で広く利用されることを研究の最終目標とした。

長さ、質量、時間、電気、温度等の基本量の物理計測の分野では、標準器を移送して、より上位の標準器で校正することによって計測値のトレーサビリティを確保することが一般的である。化学計測の分野では標準物質を移送することによって計測値のトレーサビリティを確保する。それに対して熱物性標準を含む材料計測の分野においては、同様に標準器や標準物質といった器物を移送してトレーサビリティを確保することは可能であるが、それだけでなく、「標準データ」と「材料キャラクタ」の二つをセットにした情報を提示するだけで(すなわち、何らの器物を移送することなく)トレーサビリティを確保できる可能性がある<sup>[16][18]</sup>。

このシナリオにおいては不確かさ評価とトレーサビリティの概念を、計測から標準物質へ、次に標準データへ、さらに一般の物性データへと展開して順次適用範囲を広げていくことも目指した。こうして最終的に一般の熱物性データの信頼性が保証される。このプロセスを図2に示したが、その実現のためには、材料キャラクタと物性値の相関を定量的に表現する新規の研究開発が必要となる。

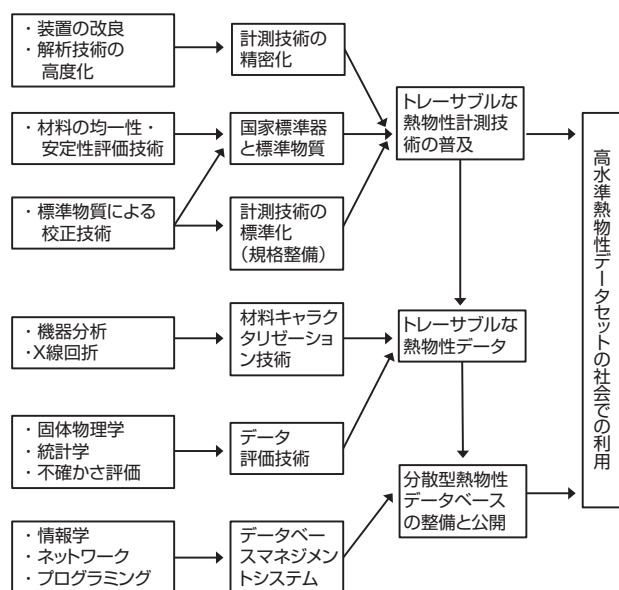


図1 熱物性データの生産と利用の社会システムを構築するためのシナリオ

## 4 レーザフラッシュ法による熱拡散率計測

### 4.1 レーザフラッシュ法の選択

熱伝導率と熱拡散率は式 (1) に示されるように比熱容量と密度を介して一定の比例関係にあるので、熱伝導率を測定することと熱拡散率を測定することは補完的であり、どちらを直接測定するかは状況によって選択することができる。

熱伝導率は一般に定常法で測定される。定常法においては時間的に変化しない一定の熱流を試料に流し、そのとき試料に生じる温度勾配を測定して熱伝導率を求める。一方熱拡散率は一般に非定常法により測定される。非定常法では、温度勾配を付けた試料の温度分布が時間とともに均一になっていく緩和時間を測定して熱拡散率を求める。

定常法による熱伝導率測定では試料に温度計を設置して温度の絶対値を測定する必要があるため、試料の設置操作が煩雑なことが多い。このため大きなサイズの試料が得られる材料に適しており、均質でない複合材料等にも適用可能である。また熱源、ヒートシンク、温度計が試料に接触するので、高温で測定を行うためには、熱源やヒートシンクの材料の選定、温度計の選定、熱放射の増加の寄与の補正等種々の課題がある。

非定常法による熱拡散率の計測技術に関しては、本研究の開始時点においてすでにレーザーフラッシュ法が開発されており、金属、合金、セラミックス、半導体、黒鉛等緻密な固体の熱拡散率に対して標準的な方法として広く普及し、実用測定装置が製品化されて広範な科学技術分野において使用されてきた<sup>[19]-[22]</sup>。そのような普及を反映して、緻密な固体材料に関してデータブックやデータベースに掲載されている熱拡散率や製品のカタログに記載されている熱拡散率の値の大部分はレーザーフラッシュ法により求めたものとなっている。

レーザーフラッシュ法の測定原理を図3に示す。レーザーフラッシュ法においては、一定温度に保たれた平板状試料の表面が瞬間的に加熱される。その結果、瞬間的に温度上

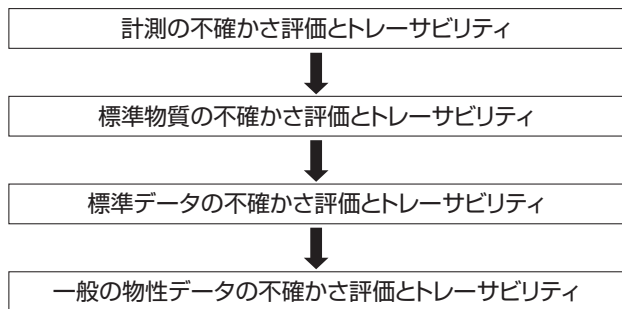


図2 不確かさ評価とトレーサビリティを「計測」から「一般の物性データ」にまで展開するプロセス

昇した試料表面から試料裏面に向かって一次的に熱が拡散し、最終的には試料全体が均一温度となる<sup>[19]-[22]</sup>。試料裏面の温度上昇の速さから材料の熱拡散率が求められる。

熱拡散率の測定方法としては、パルス加熱以外に周期的に加熱する方法、階段関数的に加熱する方法等が開発されている。また、試料表面を加熱したときのその位置の温度変化から熱浸透率を求めることも行われている<sup>[4]</sup>。

レーザーフラッシュ法は熱拡散率・熱拡散率測定法として以下の優位性を有している。

- パルス加熱後の一次元熱拡散による試料裏面の温度上昇の時間変化を、解析的に求められる理論曲線でフィッティングすることにより測定の妥当性が検証できる。
- 小さい試料を短時間で測定できる。
- 試料裏面の温度変化の測定に放射温度計を使うことにより、加熱と測温をともに非接触で行うことができる。
- 室温より低い温度から2,000℃以上に至る高温まで広い温度範囲(試料裏面温度変化測定に用いるセンサーに依存する)で測定が可能である。
- 1961年にフラッシュランプによってパルス加熱する測定法として発明されて以来、多くの研究が行われ、その妥当性と優位性が広く認知され、実用測定装置も広範に普及している。

以上の背景から、レーザーフラッシュ法は、精密な熱拡散率測定を実現する潜在的可能性を持つと判断し、熱拡散率計測のための国家標準器に採用することを試みた。一方レーザーフラッシュ法には、熱拡散率を精密に測定する方法として未完成的な部分も多く残っており、測定結果の不確かさ評価も十分には行われていなかったため、国家標準器の研究開発では、計測技術の精密化が必須であった。また、バルク材料の熱拡散率の信頼性の高い熱物性データを効率的かつ迅速に社会に供給するシステムを構築するために、標準物質の整備、ならびに計測技術の標準化(JIS規格、ISO規格の整備)も研究課題として掲げた。

### 4.2 計測技術の精密化

図4は理想的な初期条件・境界条件下でのレーザーフラッ

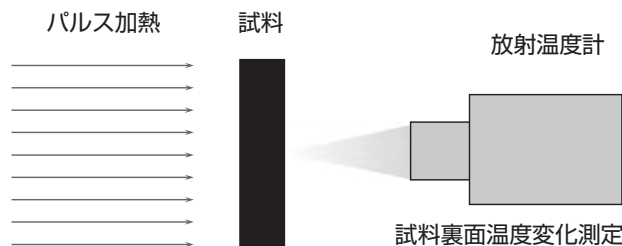


図3 レーザフラッシュ法の測定原理

シュ法における試料裏面の無次元温度上昇（最大温度上昇値により規格化した温度上昇）を無次元時間（膜厚方向の熱拡散の特性時間  $\tau = d^2 / \alpha$  により規格化した時間）の関数として表示したものである。試料裏面の温度変化の速さは熱拡散率  $\alpha$  に比例し、試料の厚さの 2 乗に反比例する。理想的な条件下では熱拡散率は試料の厚さ  $d$  と裏面の最大温度上昇値の半分  $\Delta T/2$  に達するのに要する時間（半値時間） $t_{1/2}$  から下記の式により算出される<sup>[19][20]</sup>。

$$\alpha = \frac{0.1388 d^2}{t_{1/2}} \quad (3)$$

図 5 にレーザーフラッシュ法によりガラス状炭素を測定したときに観測された試料裏面温度の時間変化を示す。

産総研ではレーザーフラッシュ法についていくつかの新しい要素技術を開発し導入した。光ファイバにパルスレーザービームを通すことによりレーザービームの空間エネルギー分布を均

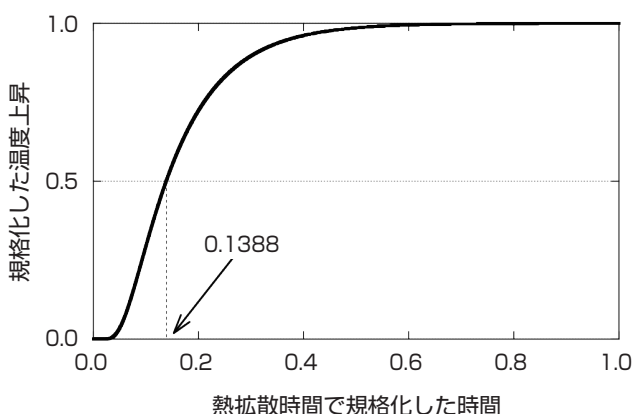


図4 理想的な初期条件・境界条件下でのレーザーフラッシュ法における試料裏面の温度応答曲線

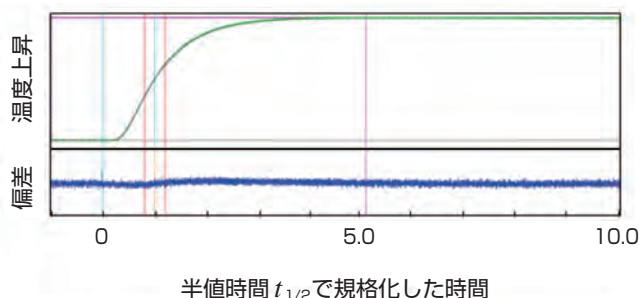


図5 レーザーフラッシュ法により実測されたガラス状炭素の試料裏面の温度応答曲線（緑線）と理論曲線（黒線）および両者の偏差（10倍に拡大して図の下部に青線で表示）  
実測曲線（緑線）と理論曲線（黒線）とは、そのままでは差が見えないほどほとんど重なっている。

一化して、試料中の一次元熱流を確実にした<sup>[22][23]</sup>。赤外放射温度計を用いて試料裏面の温度変化を非接触で高速かつ正確に測定した<sup>[22][24]</sup>。試料の表面から周囲に放射で失われる熱（熱損失）を考慮して熱拡散率を算出した<sup>[20]</sup>。試料の熱拡散率は一般に温度依存性を持っていることから、加熱レーザーエネルギーが 0 の場合に相当する材料固有の（インヒレントな）熱拡散率を外挿により求めた（図 6）<sup>[22][25][27]</sup>。

このようにして産総研で開発したレーザーフラッシュ法による熱拡散率測定装置を国家標準器に位置づけた。図 7 に国家標準器の写真を示す。

### 4.3 国家標準と標準物質の整備

我が国の国家計量標準を担う産総研計量標準総合センター（NMIJ）では、2010 年までに物理系計量標準 250、化学系計量標準 250 を整備することを目標にかかげて国家

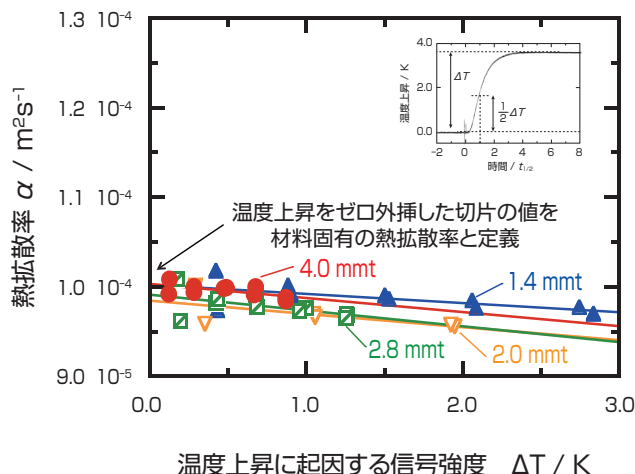


図6 材料固有の熱拡散率を求めるためのデータプロット（高密度等方性黒鉛を室温で測定した場合の例）<sup>[26]</sup>



図7 熱拡散率の国家標準器

表1 計量標準整備計画（～2010）の固体熱物性分野における標準供給品目

整備計画 整理番号	量 (依頼試験の項目)	範囲 (適用温度範囲)	拡張(相対)不確かさ 包含係数 $k=2$	供給形態	備考
240-00 241-00	熱拡散率	$1 \times 10^{-6} \text{m}^2 \text{s}^{-1} \sim 5 \times 10^{-4} \text{m}^2 \text{s}^{-1}$ (297 K～1500 K)	< 3.4 %	依頼試験（一般）	校正対象は、等方性黒鉛
		(300 K～1500 K)	5 %～7 %	認証標準物質 NMIJ CRM5804-a	等方性黒鉛（1201-a）
242-00	薄膜熱物性 (熱拡散時間)	100 ps～6500 ps	4.2 % (Mo 400 nm 厚の場合)	依頼試験	薄膜領域（100 nm～400 nm） 厚み方向のみ
242-10		40 ns～1000 ns	3.6 %	依頼試験	校正対象は、透明ガラス基板上の 窒化チタン薄膜
		150 ns (室温)	4.9 %	標準物質 NMIJ RM1301-a	透明ガラス基板上の窒化チタン薄膜 (膜厚 700 nm)
244-00	熱伝導率	(300 K～900 K)	7.4 %～9.8 %	標準物質 NMIJ RM1401-a	等方性黒鉛（1401-a）
245-00	比熱容量	(50 K～350 K)	$1.3 \times 10^{-3} \text{JK}^{-1} \text{g}^{-1}$ $\sim 6.1 \times 10^{-3} \text{JK}^{-1} \text{g}^{-1}$	依頼試験	断熱法
246-00		(300 K～900 K)	$1.9 \times 10^{-2} \text{JK}^{-1} \text{g}^{-1}$ $\sim 3.1 \times 10^{-2} \text{JK}^{-1} \text{g}^{-1}$	依頼試験	示差走査熱量測定法

計量標準整備計画に取り組み、その目標を達成した<sup>[28]</sup>。固体熱物性分野においては産総研計測標準研究部門物性統計科（現在の材料物性科）熱物性標準研究室が標準整備を担当し、表1に示されるようにバルク材料の熱膨張率、熱拡散率および比熱容量の計量標準を整備した。また産総研依頼試験制度のもとで熱物性の測定サービスを開始するとともに、熱膨張率標準物質、熱拡散率標準物質、および熱伝導率標準物質を供給している<sup>[9][29][30]</sup>。さらに先端産業における共通の部材である薄膜の熱拡散率と熱拡散時間の計量標準の整備にも取り組み、同様に測定サービスと薄膜熱拡散時間標準物質の供給を開始した<sup>[31][32]</sup>。

産総研の熱拡散率の依頼試験は、校正機関に対する国際的な要求事項である ISO 17025<sup>[33]</sup>に基づいた品質システムを構築して実施している。頒布中の熱拡散率標準物質は、さまざまな検討の結果<sup>[34][35]</sup>、均質性と安定性に加えて表面の黒化処理を必要としないことを重視し、近赤外付近の波長の光に対して黒色かつ不透明である高密度等方性黒鉛を選定し、その標準値は国家標準器を用いて決定した。2006年から頒布を開始したが、後に標準物質の生産者に対する国際的な要求事項である ISO Guide 34<sup>[36]</sup>に適合した運用を行って、2010年度より NMIJ CRM-5804 という名称の認証標準物質として供給されている。

国家標準を整備した次の段階として、熱物性計測に関する我が国の国家標準と外国のそれとが同等であるかどうかの検証が重要である<sup>[37]</sup>。そのためには、同一のロットから切り出した均一な試料を複数の国立計量研究機関（National Metrology Institute, NMI）に配布し、それぞれでの測定値を比較し、不確かさの範囲内で互いに一致するかどうかを調べる。これを国家計量標準の国際比較と呼んでいるが、そのようにして測定結果が一致した機関同士はそれぞれの校正測定能力（Calibration and

Measurement Capability, CMC）を互いに承認し合い、その結果を国際度量衡局の基幹比較データベース（BIPM Key Comparison Database, KCDB）<sup>[38]</sup>に登録して誰でも見られるようにする。熱物性に関する国際比較は国際度量衡委員会測温諮問委員会（CIPM Consultative Committee for Thermometry, CCT）<sup>[39]</sup>の熱物性作業部会（Working Group 9, WG9）ならびにアジア太平洋計量計画（Asia Pacific Metrology Programme, APMP）<sup>[40]</sup>の測温技術委員会（Technical Committee for Thermometry, TCT）において現在実施中であるので、その状況を以下に述べる。

メートル条約のもとで国際度量衡委員会の測温諮問委員会は熱物性作業部会（Working Group 9, WG9）を2003年に設置した<sup>[41]</sup>。2005年より著者の一人（馬場）が熱物性作業部会の議長を務めている。そこでは熱物性の計量標準を整備し国立計量研究機関（NMI）相互の国家標準の同等性を検証して相互承認するために種々の取り組みを行ってきた。

2008年より保護熱板法による断熱材の熱伝導率測定、レーザフラッシュ法による固体材料の熱拡散率測定、固体材料の分光放射率測定の予備的国際比較（Pilot study）を実施し参加機関の測定結果がそれぞれの幹事機関に集約され、最終報告書の作成が進められている。

レーザフラッシュ法による固体材料の熱拡散率測定の予備的国際比較（PT02）は2008年から2011年にかけて行われた<sup>[42][43]</sup>。この国際比較は、国立計量研究機関の間でのレーザフラッシュ法による熱拡散率測定の国際比較としては初めてのものであり、最新の計測技術のレベルを調べるとともに測定手順やデータ解析方法、不確かさの評価方法について共通の理解を得ることが目的であった。参加機関は、フランス国立計量研究所（Laboratoire national

de metrologie et d'essais, LNE)、中国計量科学研究院 (National Institute of Metrology, NIM)、産総研計量標準総合センター (NMIJ)、英国国立物理学研究所 (National Physical Laboratory, NPL) の4機関であり、この論文著者の一人(阿子島)がオーガナイザを務めた。

初回の国際比較であるので、測定対象とする材料は、試料表面を別途黒化処理しなくてもそれ自身でレーザビームを効率的に吸収できるような材料や、過去に十分に評価がなされて安定であることが確認されていてかつ製品として市場で入手可能な材料のなかから、アームコ鉄と高密度等方性黒鉛を選択した。これらの材料で直径が10 mm、厚さがそれぞれ1.0、1.4、2.0、2.8、4.0 mmの円板状試験片セットを参加機関の数だけ製作し、事前に均質性をチェックした後で各参加機関に1セットずつ送付して測定を行った<sup>[43]</sup>。測定には、産総研が提案しているインヒレントな熱拡散率を求める手順を取り入れ、それ以外の作業は各機関で通常行っている手順に基づいて行った。各機関から報告された結果を図8および図9に示す。全体の温度依存性の傾向から外れている値は、測定装置の応答速度が不十分であるなど、装置に起因する原因が判明しているものである。それらを除いて、適切に測定がなされたと評価されたデータは、3機関でのばらつきの標準偏差が、300 Kから1200 Kの温度範囲で7%以下と、不確かさの範囲内で一致を示した。この国際比較から、レーザフラッシュ法による熱拡散率測定は国立計量研究機関の間で十分に同等性を有することが確認された。

一方、2010年の測温諮問委員会 CCT の会合において

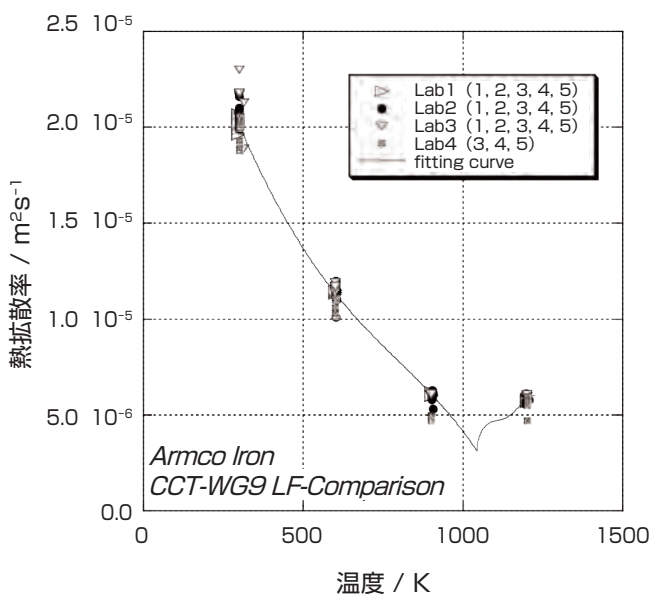


図8 アームコ鉄の熱拡散率に関する予備的国际比較の結果<sup>[43]</sup>  
Lab1 (1,2,3,4,5) のカッコ内の数字はサンプル番号を表す。

熱物性分野の熱伝導率、熱拡散率、比熱容量、熱膨張率を国立計量研究機関の校正測定サービスの項目に組み入れることが合意され、各機関の校正測定能力 CMC を国際度量衡局の基幹比較データベース KCDB に登録する道筋が開けた。現在、熱拡散率、熱伝導率等の校正測定能力を審査するための基準文書を作成中である。

アジア太平洋地域における国立計量研究機関の連合体であるアジア太平洋計量計画 APMP においても、2010年に測温技術委員会 TCT 内に熱物性作業部会が設置された。国際度量衡委員会測温諮問委員会 CCT の活動とリンクして、アジア太平洋地域での国際比較(補完比較: Supplementary Comparison) が2件開始された。具体的には、フラッシュ法による熱拡散率測定 (APMP T.S-9) と保護熱板法による断熱材の熱伝導率測定 (APMP T.S-10) である。APMP T.S-9 は、測温技術委員会 TCT と材料計量技術委員会 TCMM との合同企画である。

このように、熱物性分野で初めて CMC 登録に向けた活動を進めているところである。

#### 4.4 計測技術の標準化

熱物性データが機器やデバイスの設計と性能の評価、省エネルギー特性の評価、品質や安全性の保証等の目的で客観的なデータや公的なデータとして活用されるためには、熱物性の測定に用いる装置の仕様や測定手順が標準化され、規格により規定されていることが望ましい。

本研究の成果および関連する研究開発が寄与した規格の一覧を表2に示す。著者の一人(馬場)は2件の JIS 規格 (JIS H7801、R1667)<sup>[44][45]</sup> で、原案作成委員会の

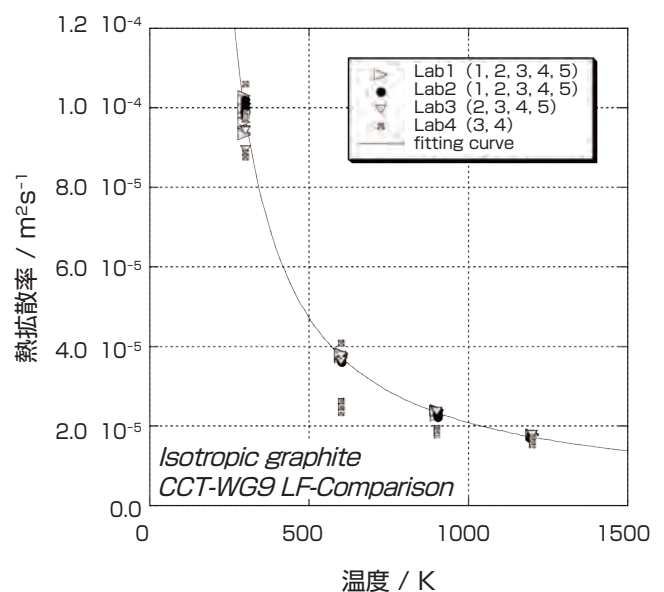


図9 高密度等方性黒鉛の熱拡散率に関する予備的国际比較の結果<sup>[43]</sup>  
Lab1 (1,2,3,4,5) のカッコ内の数字はサンプル番号を表す。



表2 本研究が寄与したレーザフラッシュ法に関するISO規格とJIS規格

種別	規格番号	発行 / 制定年	規格名 (和文)	規格名 (英文)
ISO	18755	2005年	—	Fine ceramics: Determination of thermal diffusivity of monolithic ceramics by laser flash method
JIS	R1611	1991年 (2010年改訂)	ファインセラミックスのレーザフラッシュ法による熱拡散率・比熱容量・熱伝導率試験方法	Test methods of thermal diffusivity, specific heat capacity, and thermal conductivity for fine ceramics by flash method
JIS	H7801	2005年	金属のレーザフラッシュ法による熱拡散率の測定方法	Method for measuring thermal diffusivity of metals by the laser flash method
JIS	R1667	2005年	長繊維強化セラミックス複合材料のレーザフラッシュ法による熱拡散率測定方法	Determination of thermal diffusivity of continuous fiber-reinforced ceramic matrix composites by the laser flash method
JIS	H8453	2010年	遮熱コーティングの熱伝導率測定方法	Measurement method for thermal conductivity of thermal barrier coatings

委員長または主査として新規作成を進めた。ISO/TC206（ファインセラミックス）/WG15に日本代表として参加しISO 18755 “Fine ceramics: Determination of thermal diffusivity of monolithic ceramics by laser flash method” の成立に寄与した<sup>[46]</sup>。

熱拡散率測定のための技術的課題は、測定する材料に依らない共通課題と材料毎の個別課題（個別ハード・ソフト技術）に大別される。前者は、規格で規定することで、統一された技術基準として社会で共有されている。レーザフラッシュ法による熱拡散率測定の場合、材料に依らない共通課題は、図10に示されるように、装置の仕様（共通ハード技術）とデータ解析と結果の検証（共通ソフト技術）に区分でき

る。規定した事項を以下に列挙する。

- 1) 外界との接触熱伝達を最小化した状態で、試料を安定に保持すること。
- 2) 試料の定常温度を安定に保持し、正確に測定すること。
- 3) 試料表面を空間的に均一にパルス加熱すること。
- 4) 試料表面から試料裏面への熱拡散時間に対して、パルス加熱の時間幅を十分に短くし、データ解析の原点となるパルス加熱時刻を正確に同定すること。
- 5) パルス加熱後の試料裏面の温度変化を、熱拡散時間に対して十分早い応答速度で歪みなく観測すること。

これらは、熱物性計測器メーカーに技術移転され、実用化されている。

2010年のJIS R1611改定では著者ら（阿子島、馬場）が主導的な役割を果たし、レーザフラッシュ法による熱拡散率の国家標準の研究において新たに開発した上記の技術を多数導入した。特に、測定データの不確かさの評価方法と熱拡散率標準物質を用いた校正方法／妥当性の検証方法、長年の課題であった黒化処理の影響の定量的評価方法が、附属書に記載されている。

このような熱物性計測における我々の取り組みは、図11に示すような三位一体の取り組みとして、計量標準と標準化、実用計測技術が、互いに寄与して全体が向上するような形で発展させることができたと考えている。薄膜の熱拡散率計測においても同様の取り組みが行われた<sup>[17]</sup>。これらの測定規格に記載された不確かさ評価方法の手順は、材料計量の分野において広く参照されることが期待される。

### 5 熱物性の社会システムの構築状況

図12はレーザフラッシュ法による熱拡散率測定に関連する主要な要素技術とそれらの関係を技術体系として示したものである。図の中央に示されるように、測定装置（ハードウェア）によって観測された温度応答信号に対して、解析プログラム（ソフトウェア）によって理論曲線をフィッティング（カーブフィッティング）して熱拡散率を算出する。こ

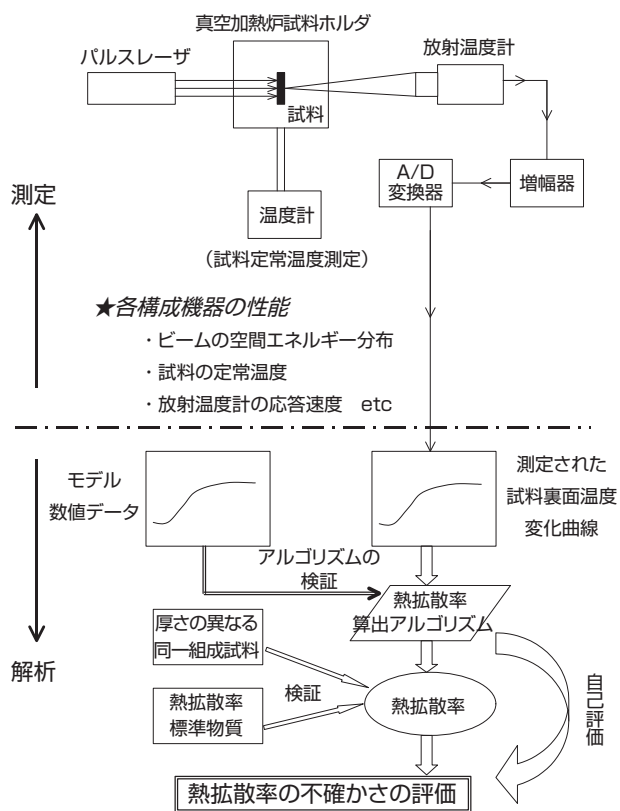


図10 レーザフラッシュ法における測定装置の仕様と解析技術

のとき計測技術の改良に対応して解析技術の改良が促され、逆に解析技術の進歩により測定装置に対する要請が高まるといった相乗効果が働いた。すなわち計測技術と解析技術は密接に相互作用して循環的に進歩してきた。

その具体例を示すと、レーザフラッシュ法において光ファイバを用いてパルスレーザビームの空間エネルギー分布を均一にすることにより熱が試料中を一次元的に拡散していくことを確実にできた<sup>[22][23]</sup>。そのような計測技術の進歩に刺激されて一次元的な熱拡散に対する応答関数法による汎用の解析技術を開発することができた<sup>[47][49]</sup>。

このような計測技術と解析技術の循環的な進歩により熱拡散率測定の不確かさが著しく低減され、これらの技術が熱拡散率測定用の国家標準器に反映されて、標準物質に標準値を付けるときの不確かさも同様に低減された。さらにこの結果として、標準物質の熱拡散率データの不確かさが厳密に評価できるようになり、高品質の熱拡散率標準物質の整備に結実した。

新規の計測技術および解析技術の普及には、その技術に基づく実用測定装置が開発され市場で広く入手可能になることが重要である。レーザフラッシュ法においては光ファイバを用いたレーザビームの均一化技術やカーブフィッティング法による解析技術等を熱物性測定装置メーカーへ技術移転してきた。

### 6 まとめと今後の展開

以上のように、我が国においてレーザフラッシュ法による熱拡散率の計測技術と計量標準、標準化が体系的に進展し、信頼性の高い熱拡散率データを効率的かつ迅速

に供給する社会システムが実現された。自ら開発した計測技術と解析技術に基づいて国家標準器と標準物質を整備し、技術を民間企業に移転して実用測定装置の開発を支援し、対応する JIS 規格および ISO 規格を整備するとともに、データベースを整備して当該社会システムによって生み出される信頼性の高いデータを収録してインターネット公開した。このような包括的かつ体系的な取り組みは世界的にも例をみないユニークなものと考えている。

この論文において報告したレーザフラッシュ法によるバルク材料の熱拡散率、および別途研究している超高速レーザフラッシュ法による薄膜の熱拡散率に関して、その計測技術、計量標準、規格整備、実用計測器の開発、データベースの整備に関する体系的取り組みをさらに発展させていくことにより社会の要請に応えられるものと考えている。引き続き、2010 年度から開始された産総研第 3 期中期計画<sup>[50]</sup>、および産総研第 3 期標準整備計画（2010 年度から 2014 年度まで）<sup>[51]</sup>に沿って国家標準と標準物質の整備を着実に推進するとともに、国際度量衡委員会測温諮問委員会（CIPM CCT）や国際標準化機構（ISO）等においても本報告で述べた体系的な取り組みに基づき熱物性の統合された計測体系を世界規模で実現していく計画である。

さらに不確かさ評価とトレーサビリティへの取り組みを、標準物質に対する標準値と標準データに対して拡張するだけでなく、一般の熱物性データへと展開する。そのためのキーテクノロジーとして材料の均質性評価と安定性評価に加えて、材料キャラクタと物性値の相関を定量的に表現する手法を開発する。

国内の関係機関（独立行政法人、大学、学協会、企業等）のみならず材料・物質の物性データに関わる海外の主要機関とも積極的に連携していくことにより、上記の計測体系により生み出される信頼性の高い熱物性データを分散型熱物性データベースに継続的に収録し、科学技術の基

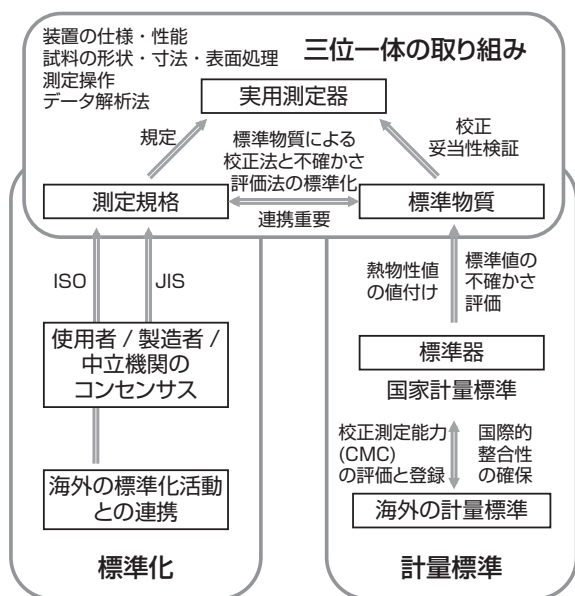


図11 計測技術の標準化と計量標準との連携

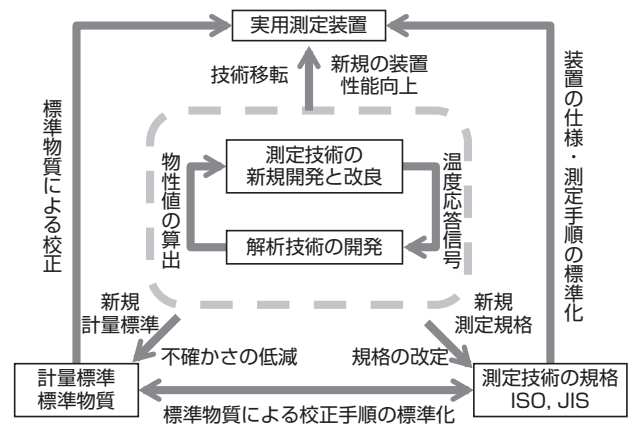


図12 レーザフラッシュ法による熱拡散率測定に関する技術体系

盤情報である熱物性データを広範なユーザーに電子情報として提供していく体制の構築を目指している。

今後はこのシステムを国際的な枠組みに発展させて行く取り組みを推進する。バルク材料を測定対象とするレーザーフラッシュ法は実用測定装置が世界中の広範なユーザーに普及しており、ISO/TC206（ファインセラミックス）において国際規格が策定され、国際度量衡委員会測温諮問委員会熱物性作業部会におけるメートル条約下の計量標準の整備に関しても先進的な取り組みが進展している。したがって今後の最重要課題は策定された国際規格と計量標準・標準物質が世界の広範なユーザーに活用されることであり、海外の国立計量研究機関との連携のもとに測定装置製造事業者、および熱物性データを必要とする研究機関、エネルギー関連企業、エレクトロニクス関連企業等への普及を目指していく。

#### 付録A 学会における取り組み

我が国においては科学技術と産業において欧米へキャッチアップした1970年代から知的基盤として熱物性データを自ら整備することの必要性が強く認識されるようになり、1980年に日本熱物性研究会が設立され1990年より日本熱物性学会となった<sup>[52]</sup>。

日本熱物性学会は毎年日本熱物性シンポジウムを開催し、また機関誌「熱物性」<sup>[53]</sup>を発行するなど、日本は世界的にも最も活発な研究拠点の一つとなっている。またアジア熱物性会議が1986年に結成され、米国、欧州の熱物性研究機構と連携して「世界熱物性コンGRESS」を形成し、世界的な研究交流の場を提供している。

日本熱物性学会においては、科学技術の広い分野にわたる熱物性に関する情報を一冊に集約した「熱物性ハンドブック」を1990年に発刊した<sup>[54]</sup>。熱物性ハンドブックは熱物性データを収録するのみならず、熱物性値の解説や定義、検索、入手法、測定法等を記載し、熱物性データを入手して利用する方法を、熱物性を実測で求める場合も含めて体系的に記述している。2008年には初版以降の科学技術の進歩とデータの増加に対応して改訂され、「新編熱物性ハンドブック」として発刊された<sup>[4]</sup>。

1996年に制定された日本の第1期科学技術基本計画において知的基盤整備の重要性が指摘され<sup>[55]</sup>、それを受けて産業技術審議会と日本工業標準調査会合同の「知的基盤整備特別委員会」において1998年に、新規産業創成を推進するために積極的な整備および研究開発を行うべき重点分野として、計量標準、化学物質安全管理、人間生活・福祉、生物資源情報、材料が選定された<sup>[56]</sup>。この動きと連動して日本熱物性学会において1997年に「知的基盤と

しての熱物性のあり方」について検討が行われ、1998年に日本熱物性学会の提言として報告されている<sup>[2]</sup>。

#### 付録B 国際度量衡委員会における取り組み

メートル条約のもとではその締結以来100年以上にわたり、長さ、質量、時間、電気、温度等基本量の国際標準を設定してきたが、近年食品の安全性や環境汚染物質の検査、健康診断等において元素や化学物質の含有量の分析結果が世界的に共通に使えることが重要であると認識され、化学計測に対しても国際的整合性やトレーサビリティを要請するようになった<sup>[57]</sup>。このような要請に応じて1995年、メートル条約の枠組みのもとで国際度量衡委員会（CIPM）に物質量諮問委員会（Consultative Committee for Amount of Substance, CCQM）が設置された<sup>[58]</sup>。

物理標準が各国の国立計量研究機関（National Metrology Institute, NMI）の校正測定能力（Calibration and Measurement Capability, CMC）に基づく国家標準による校正サービスを介して供給されるのに対して、物質質量標準は認証標準物質（Certified Reference Material, CRM）により供給されトレーサビリティが確保されることが一般的となっている。

一方、材料の計測評価分野に関してはベルサイユサミット（1982年）において「参加国間での、新材料に関連した新技術の発展と国際標準化を促進することにより、先端技術製品の貿易を活性化し、経済的交流を活性化する」ことを目的として、新材料および標準化に関するベルサイユプロジェクト（Versailles Projects on Advanced Materials and Standards, VAMAS）が設立された<sup>[59]</sup>。

また国際度量衡委員会（CIPM）では今日の社会を支える「材料」の技術的役割と通商の重要性に鑑みて、熱物性のみならず、材料の力学特性や電気特性を含む材料特性一般を対象として、世界の国立計量研究機関および材料研究所の専門家により構成される材料計量暫定作業部会（Ad hoc Working Group of Material Metrology, WGMM）を設置することを2005年に決定した。2006年から検討が行われ2007年に国際度量衡委員会に最終報告書が提出された<sup>[60]</sup>。作業部会の結論として材料計量に関する別途の諮問委員会（CC）を新設するのではなく、既存の各諮問委員会における材料関係のWGがVAMASと連携して取り組んでいくことが勧告された。その活動成果のより詳細な内容は専門誌Metrologiaの特集号として発刊されている<sup>[61]</sup>。

熱物性に関しては測温諮問委員会（CCT）の中にWorking Group 9熱物性（Thermophysical Property、議長：馬場、CCTのVAMAS対応担当を委任される）が

設立され<sup>[62]</sup>、断熱材の熱伝導率、レーザーフラッシュ法による固体の熱拡散率、放射率に関して予備的な国際比較を実施した。

この論文の第1章において記述したように、熱伝導率、比熱容量、熱拡散率、熱浸透率等の熱物性は基本物理量を用いて一義的に定義され、原理的には計測方法に依存せず同一の値が求まる物質・材料に固有（インヒレント、inherent）な物理量である<sup>[16][27][63]</sup>。

## 付録C 通商産業省工業技術院計量研究所における取り組み

産総研計測標準研究部門の前身の一つである旧通商産業省工業技術院計量研究所では1985年に「物性計測に関する調査研究」を実施し、その成果を報告書として取りまとめた<sup>[1]</sup>。その知見に基づき熱物性部が創設され、熱物性の計測技術と標準に関する研究に関する組織的取り組みが開始された。

その一環として科学技術振興調整費による知的基盤整備推進制度の中で、旧計量研究所が中核機関となり、「機能材料の熱物性計測技術と標準物質に関する研究」が1997年度より5年計画で実施された。この研究課題においては、密度、熱伝導率／熱拡散率、比熱容量、熱膨張率、放射率、音速／弾性率について下記の目標を設定し、国内10数機関の共同研究プロジェクトとして実施された<sup>[3][15][64]</sup>。

- ① 熱物性値の精密計測技術を開発して、国の一次標準を確立する。
- ② 標準試料・標準物質を開発し、標準データを取得して、広く研究・生産現場に供給する。
- ③ 先進的機能材料に対応できる先端的計測法を開発し、また実用的計測法の標準化を行う。
- ④ 特定の重要材料に対して、材料キャラクタを同定しつつ、熱物性値の高水準データセット（熱物性値だけでなく、材料を同定するためのキャラクタを含むひとまとまりのデータ）を作成して、この研究のアプローチの有効性を検証する。
- ⑤ プロトタイプ熱物性データベースを試作して、データ普及用ツールとしての有効性を検証する。

上記の知的基盤整備推進制度をはじめとする多くのプロジェクトの実施の積み重ねによりこの論文に記述した包括的かつ体系的な成果が達成された。

上記⑤の取り組みは産総研計測標準研究部門に引き継がれ、「分散型熱物性データベース」としてインターネット上に公開されている<sup>[65]-[67]</sup>。

## 参考文献

- [1] 通商産業省 工業技術院 計量研究所(編): 物性計測技術に関する調査研究報告書 (1985).
- [2] 福迫尚一郎: 知的基盤としての熱物性のあり方, *熱物性*, 12 (3), 152-169 (1998).
- [3] 小野 晃: 知的基盤と熱物性, *熱物性*, 12 (1), 20-30 (1998).
- [4] 日本熱物性学会(編): *新編熱物性ハンドブック*, 23-25, 養賢堂 (2008).
- [5] <http://www.nist.gov/srm/>
- [6] <http://www.nist.gov/srd/>
- [7] [http://irimm.jrc.ec.europa.eu/reference\\_materials\\_catalogue/Pages/index.aspx](http://irimm.jrc.ec.europa.eu/reference_materials_catalogue/Pages/index.aspx)
- [8] <http://www.iajapan.nite.go.jp/jcss/outline/index.html>
- [9] 阿子島めぐみ: 固体材料の熱拡散率標準の開発, *計測標準と計量管理*, 59 (2), 23-29 (2009).
- [10] <http://www.springermaterials.com/navigation/>
- [11] National Research Council: *International Critical Tables of Numerical Data, Physics, Chemistry and Technology Vol. 1-7, U.S.*, (1929).
- [12] D. R. Lide Jr.: Critical data for critical needs, *Science*, 212 (4501), 1343-1349 (1981). DOI:10.1126/science.212.4501.1343
- [13] Y. S. Touloukian and C. Y. Ho eds.: *Thermophysical Properties of Matter; TPRC Data Series, 1970-1972*, IFI-Plenum, New York (1970).
- [14] <https://cindasdata.com/>
- [15] A. Ono, T. Baba and K. Fujii: Traceable measurements and data of thermophysical properties for solid materials: a review, *Meas. Sci. Technol.*, 12 (12), 2023-2030 (2001).
- [16] T. Baba: Measurements and data of thermophysical properties traceable to a metrological standard, *Metrologia*, 47 (2), S143-S155 (2010). DOI:10.1088/0026-1394/47/2/S12
- [17] 産業構造審議会・日本工業標準調査会合同会議: 知的基盤整備特別委員会中間報告－知的基盤整備・利用促進プログラム, 49 (2012) <http://www.meti.go.jp/pre/2012/08/20120815002/20120815002-3.pdf>
- [18] 馬場哲也, 山下雄一郎: 分散型熱物性データベースの開発, *計測標準と計量管理*, 59 (2), 49-57 (2009).
- [19] W. J. Parker, R. J. Jenkins, C. P. Butler and G. L. Abbott: Flash method of determining thermal diffusivity, heat capacity, and thermal conductivity, *J. Appl. Phys.*, 32 (9), 1679-1684 (1961).
- [20] 長坂雄次, 馬場哲也: 第3章 固体熱物性の光学的計測技術, *新編伝熱工学の進展 第3巻*, 養賢堂, 163-226 (2000).
- [21] A. Cezairliyan, T. Baba and R. Taylor: A high-temperature laser-pulse thermal diffusivity apparatus, *Int. J. Thermophys.*, 15 (2), 317-341 (1994).
- [22] T. Baba and A. Ono: Improvement of the laser flash method to reduce uncertainty in thermal diffusivity measurements, *Meas. Sci. Technol.*, 12 (12), 2046-2057 (2001). PII: S0957-0233(01)27342-1
- [23] T. Baba, M. Kobayashi, A. Ono, J. H. Hong and M. M. Suliyanti: Experimental investigation of the nonuniform heating effect in laser flash thermal diffusivity measurements, *Thermochim. Acta*, 218, 329-339 (1993).
- [24] 小林 正信, 馬場 哲也, 小野 晃: レーザーフラッシュ熱拡散率測定用赤外放射温度計, *熱物性*, 8 (3), 143-148 (1994).
- [25] M. Ogawa, K. Mukai, T. Fukui and T. Baba: The development of a thermal diffusivity reference material using alumina, *Meas. Sci. Technol.*, 12 (12), 2058-2063 (2001). DOI:10.1088/0957-0233/12/12/305
- [26] M. Akoshima and T. Baba: Study on a thermal-diffusivity standard for laser flash method measurements, *Int. J. Thermophys.*, 27 (4), 1189-1203 (2006).
- [27] M. Akoshima, B. Hay, M. Neda and M. Grelard: Experimental verification to obtain intrinsic thermal diffusivity by laser-

- flash method, *Int. J. Thermophys.*, 34 (5), 778-791 (2013). DOI:10.1007/s10765-013-1470-7
- [28] <http://www.nmij.jp/service/>
- [29] 馬場哲也, 榎原研正, 山田修史, 藤井賢一: 物性統計技術における到達点と今後, *計測標準と計量管理*, 60 (4), 2-9 (2011).
- [30] T. Baba, N. Yamada, N. Taketoshi, H. Watanabe, M. Akoshima, T. Yagi, H. Abe and Y. Yamashita: Research and development of metrological standards for thermophysical properties of solids in the National Metrology Institute of Japan, *High Temperatures-High Pressures*, 39 (4), 279-306 (2010).
- [31] 竹歳尚之, 八木貴志, 馬場哲也: パルス加熱サーモリフレクタンス法を用いた薄膜熱物性標準の整備, *計測標準と計量管理*, 59 (2), 36-41 (2009).
- [32] 八木貴志, 竹歳尚之, 馬場哲也: 薄膜の熱物性計測と標準 - 熱拡散時間の標準薄膜 -, *計測標準と計量管理*, 59 (2), 42-48 (2009).
- [33] ISO/IEC 17025 1999 General requirements for the competence of testing and calibration laboratories
- [34] M. Akoshima and T. Baba: Thermal diffusivity measurements of candidate reference materials by the laser flash method, *Int. J. Thermophys.*, 26 (1), 151-163 (2005).
- [35] M. Akoshima and T. Baba: Laser flash thermal diffusivity measurements of isotropic graphite and glass-like carbon, *Thermal conductivity*, 28, 497-506 (2006).
- [36] ISO Guide 34:2009 General requirements for the competence of reference material producers
- [37] Mutual recognition of national measurement standards and of calibration and measurement certificates issued by national metrology institutes, BIPM (1999).
- [38] <http://kcdb.bipm.org/>
- [39] <http://www.bipm.org/en/committees/cc/cct/>
- [40] <http://www.apmpweb.org/>
- [41] [http://www.bipm.org/en/committees/cc/cct/tor\\_wg9.html](http://www.bipm.org/en/committees/cc/cct/tor_wg9.html)
- [42] M. Akoshima, B. Hay, J. Zhang, L. Chapman and T. Baba: International comparison on thermal diffusivity measurement using laser flash method - preliminary results, *Thermal Conductivity*, 30, 367-377 (2010).
- [43] M. Akoshima, B. Hay, J. Zhang, L. Chapman and T. Baba: International comparison on thermal-diffusivity measurements for iron and isotropic graphite using the laser flash method in CCT-WG9, *Int. J. Thermophys.*, 34 (5), 763-777 (2013). DOI:10.1007/s10765-012-1209-x
- [44] JIS H 7801 金属のレーザフラッシュ法による熱拡散率の測定方法 (2005制定)
- [45] JIS R 1667 長繊維強化セラミックス複合材料のレーザフラッシュ法による熱拡散率測定方法 (2005制定)
- [46] ISO 18755:2005 Fine ceramics (advanced ceramics, advanced technical ceramics) -- Determination of thermal diffusivity of monolithic ceramics by laser flash method.
- [47] 馬場哲也: 応答関数法による傾斜機能材料熱物性の解析, *熱物性*, 7 (1), 14-19 (1993).
- [48] T. Baba and N. Taketoshi: Analysis of thermal diffusion in multi-layer thin films by a response function method, *Proc. of Eurotherm*, 57, 285-292 (1999).
- [49] T. Baba: Analysis of one-dimensional heat diffusion after light pulse heating by the response function method, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 48, 05EB04. 1-05EB04.9 (2009).
- [50] [http://www.aist.go.jp/aist\\_j/outline/middle\\_plan3/middle\\_plan3\\_1.html](http://www.aist.go.jp/aist_j/outline/middle_plan3/middle_plan3_1.html)
- [51] <http://www.nmij.jp/info/planning/>
- [52] <http://www.netsubusse.jp/>
- [53] <http://www.jstage.jst.go.jp/browse/jjtp/-char/ja>
- [54] 日本熱物性学会編: 熱物性ハンドブック(初版), 養賢堂, (1990).
- [55] <http://www8.cao.go.jp/cstp/kihonkeikaku/index4.html>
- [56] [http://www.meti.go.jp/report/committee/data/g\\_commi03\\_01.html](http://www.meti.go.jp/report/committee/data/g_commi03_01.html)
- [57] *Evolving Needs for Metrology in Trade, Industry and Society and the Role of BIPM*, edited R. Kaarls, (2007) <http://www.bipm.org/utills/en/pdf/Kaarls2007.pdf>
- [58] <http://www.bipm.org/en/committees/cc/ccqm/>
- [59] <http://www.vamas.org/index.html>
- [60] S. Bennett and G. D. Sims: *Evolving Needs for Metrology in Material Property Measurements, Report of the CIPM ad hoc Working Group on Materials Metrology (WGMM)*, (2007).
- [61] S. Bennett and J. Valdés: Special issue for materials metrology: *Metrologia*, 47 (2), (2010). DOI:10.1088/0026-1394/47/2/E01
- [62] [http://www.bipm.org/en/committees/cc/cct/working\\_groups.html#wg9](http://www.bipm.org/en/committees/cc/cct/working_groups.html#wg9)
- [63] R. G. Munro: *Data Evaluation Theory and Practice for Materials Properties: NIST Recommended Practice Guide*, SP 960-11, U.S. Government Printing Office, Washington (2003).
- [64] [http://www.mext.go.jp/a\\_menu/kagaku/chousei/data/14/hyoka030129/2/40.pdf](http://www.mext.go.jp/a_menu/kagaku/chousei/data/14/hyoka030129/2/40.pdf)
- [65] <http://tpds.db.aist.go.jp/>
- [66] T. Baba, Y. Yamashita and A. Nagashima: Function sharing and systematic collaboration between a networking database system and printed media on thermophysical properties data, *J. Chem. Eng. Data*, 54, 2745-57 (2009).
- [67] Y. Yamashita, T. Yagi and T. Baba: Development of network database system for thermophysical property data of thin films, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 50 (11), 11RH03 (2011).

## 執筆略歴

馬場 哲也 (ばば てつや)

1979年東京大学大学院理学系研究科相関理化学専門課程博士課程修了(理学博士)。1980年通商産業省工業技術院計量研究所入所。1986年～1988年米国立標準局客員研究員。2001年産業技術総合研究所計測標準研究部門物性統計科熱物性標準研究室長。2005年より国際度量衡委員会測温諮問委員会熱物性作業部会議長。2007年より計測標準研究部門上席研究員。2011年日本熱物性学会会長。熱物性の計測技術・計量標準・標準物質の研究および熱物性データベースの開発に従事。1999年 Thermal conductivity award、2000年市村学術賞功績賞、2005年文部科学大臣表彰科学技術賞(研究部門)、2013年アジア熱物性会議 ATPC significant contribution award 受賞。この論文では全体を統括した。



阿子島 めぐみ (あこしま めぐみ)

2000年東北大学大学院工学研究科応用物理学専攻博士後期課程修了。博士(工学)。1999年1月～2001年3月日本学術振興会特別研究員DC。2001年(独)産業技術総合研究所入所。同計測標準研究部門物性統計科(現材料物性科)熱物性標準研究室に配属。入所以来、固体材料の熱拡散率計測の研究に従事し、レーザフラッシュ法を用いた熱拡散率測定で、SIトレーサブルかつ材料固有の熱拡散率を決定する方法を確立し、依頼試験及び標準物質の供給を行っている。最近、熱拡散率の国際比較のオーガナイザとして CCT-WG9 および APMP TCT WG で活動を行っている。この論文では熱拡散率の計測技術・計量標準・



標準物質の開発と規格整備ならびに国際比較を担当した。

## 査読者との議論

### 議論1 全体評価

コメント（小野 晃：産業技術総合研究所）

この論文の研究は固体材料の熱物性を社会全体で効率的に生産し効果的に利用するシステムを構築することを目標に掲げて取り組んだ優れた構成的研究です。研究目標のスケールの大きさと、関係する多くのステークホルダーを巻き込みつつ目標を実現するための合理的なシナリオが注目されます。

### 議論2 米国における熱物性研究の状況

質問（小野 晃）

3.2節で米国における1960年代から70年代の熱物性研究を振り返って、国立標準局の熱物性標準物質とパデュー大学情報数値データ解析合成センターのデータ評価との連携が必ずしも十分ではなかったと述べられています。

当時米国では熱物性研究が盛んで、その成果はいろいろな技術分野に貢献したと思います。しかしながら標準物質が社会で広く利用され、その結果良質な熱物性データが多く生産されてパデュー大学のデータブックに反映されるまでには時間が足りなかったということでしょうか。当時の米国の熱物性研究に限界があったとすればどのような点だったのか、著者にお考えがあればお聞かせ願います。

また国立標準局とパデュー大学の両者にどのようなモチベーションやシナリオの共有があればよりよい連携が生まれたと考えられるか、著者にご見解があればお聞かせ下さい。

回答（馬場 哲也）

パデュー大学の熱物性研究センター（TPRC）において行われていた「データ評価」は測定トレーサビリティや不確かさの概念が普及する以前に行われており、データを測定の信頼性から評価するというより、報告されているデータ全体を俯瞰し、物性論的知見や測定機関の評判等に基づき、評価者の見識により個々に判断されていました。

国立標準局の熱物性標準物質の開発はTPRCのデータ評価開始より少し遅れて開始され、本格的に供給が開始されたのは1970年代後半です。残念ながらそれ以降にはTPRCおよびその後継機関であるCINDASによる熱物性データブックの改訂はなされませんでした。

もし、パデュー大学がデータ評価において「計測の不確かさとトレーサビリティ」の重要性を認識するに至っておれば、国立標準局の標準物質により校正された測定器を使って取得したデータを参照情報として、それ以外の一般のデータの信頼性を評価するという視点を導入することにより、計測の不確かさに基づくより普遍的なデータ評価手法にまで発展した可能性があると考えます。

### 議論3 情報によるトレーサビリティの確保

質問・コメント（小野 晃）

4章において材料標準分野では、標準器や標準物質といった器物に依存せずに、情報だけでトレーサビリティを確保できる可能性があるかと述べられています。これは従来にはない柔軟なトレーサビリティの考え方ですので是非発展させてほしいと思います。

①情報だけでトレーサビリティがとれるのは、具体的にどのような材料についてまず可能になりそうでしょうか。単結晶シリコンの熱物性等がその候補でしょうか。著者のお考えをお聞かせ願います。

②情報だけでトレーサビリティをとろうというこの考え方は現在まだ計量標準関係者に広く受け入れられるには至っていないと思います。どのようにしたら広く受け入れられるかを考えてみますと、情報のみによってトレーサビリティを確保した場合に、計測結果の信頼性（ばらつきや偏り）が現実にはどの程度大きくなってしまおうのか、いろいろな場合について実際に検証してみてもどうかと思いますがいかがでしょうか。広く受け入れられるための方策について著者のお考えがあればお

聞かせ下さい。

回答（馬場 哲也）

①液相および気相の水等の熱物性データは組成（必要に応じて不純物の量や同位体組成比まで考慮する）が既知であり、計測のトレーサビリティが確保されていれば、不確かさが評価された普遍的なデータとして提供可能です。例えば温度目盛りの場合は、国際原子力機関（IAEA）の標準物質Vienna Standard Mean Ocean Water（VSMOW）の同位体組成の純水の三重点は上位の標準による校正を必要とせず普遍的に実現できます。粘度標準はISO/TR3666:1998（E）に規定された20℃、大気圧における蒸留水の粘度を一次標準として構成されています。

比熱容量と熱膨張率につきましてはNMIJにおいて特定のロットのシリコン単結晶を保管し、均質性を評価し国家標準による値付けを行って標準物質として供給しています。次のステップとして指定された純度より良いシリコン単結晶について比熱容量や熱膨張率の標準データを器物に依存せず情報として供給する可能性が考えられます。またシリコン単結晶は本報告において述べました熱拡散率においても器物に依存せず標準データを提供できる可能性が高いものと考えております。

以上は国家計量標準の供給に関わる取り組みですが、ユーザーと測定器メーカーのニーズ主導のデファクトスタンダードとして、比熱容量参照物質としての酸化アルミニウムが挙げられます。エンタルピーおよび比熱容量の標準物質として、米国国立技術標準研究所（National Institute of Standards and Technology, NIST）のEnthalpy and Heat-Capacity Standard Reference Material: Synthetic Sapphire（Alpha-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>）が供給されていますが、形状が細い円筒状であるため、示差走査熱量計（Differential Scanning Calorimeter, DSC）の参照試料としては適していません。このような状況においては、認証標準物質をDSC用の参照標準物質として用いることができず、市販の高純度のアルミナを使用することが一般に行われています。ロットを限定していないアルミナにおいて製造者や製造時期の違いにより比熱容量がどの程度ばらつくかの情報についての系統的検証は行われておらず今後の課題となっています。

②情報だけでトレーサビリティをとろうという考え方が計量標準関係者に広く受け入れられるためには、第1にその値が国家標準にトレーサブルな計測を行った結果と整合していることを証明する必要があります。第2にその情報に対応する物質・材料の集合を明確に規定することが不可欠です。物質・材料の集合を定量的に定義することは、気体と液体の場合には組成を同定することに対応しますが、固体の場合には多様な構造をどのように定量的に記述するかが難関となります。

今日、膨大なデジタル情報が生み出されウェブ上で共有され解析・利用されています。このようなデータの信頼性・信憑性をどのように判定し保証するかは最も根源的で困難な課題です。多様なデータのなかでセンサを含む計測器による定量的データの信頼性・信憑性は不確かさにより表現することができ、「情報によるトレーサビリティ」の実現が具体的アプローチであると考えています。

### 議論4 不確かさの評価手順の規格化

質問・コメント（小野 晃）

5.4節で、JIS R1611の中で熱拡散率標準物質を用いた校正方法／妥当性検証方法と測定データの不確かさの評価方法とを規定したとあります。これはとても画期的なことと高く評価します。

そこでJIS R1611では具体的にどのように不確かさの評価方法の手順を規定したのか、簡単に結構ですので内容をご教示願います。

またこの動きは熱拡散率だけでなく他の物性に関する測定方法の規格や、一般の試験評価の規格にも広がることを期待しますが、そのためにはどのようなことが今後ポイントになるのでしょうか、著者にお考えがあれば願います。

回答（阿子島 めぐみ）

JIS R1611「ファインセラミックスのフラッシュ法による熱拡散率・比熱容量・熱伝導率の測定方法」の2010年改定において不確かさの評価手順に関する記述を加えました。

具体的にはこの改訂に下記の附属書を追加しました。

附属書E：入手可能な標準物質、その供給機関等の情報

附属書JB：標準試料を用いた校正及び測定結果の補正方法

附属書JD：不確かさ評価の情報

附属書JC：黒化処理の影響の評価方法

フラッシュ法による熱拡散率の計測においては附属書JBに示した標準試料を用いた校正または補正を行う場合と、標準試料を用いず熱拡散時間を絶対測定する場合があるので、附属書JDにおいてはそれぞれの場合について不確かさの評価方法を提示しました。

試料が透光性を有する場合や、試料のフラッシュ加熱光に関する吸収率や放射測温波長での放射率が十分高くない場合には試料の両面に黒色で不透明な薄膜を付加します。この薄膜の存在により熱拡散時間は試料だけの場合より増加しますので、その増加分を評価し補正する方法を附属書JCに記載しました。

物性に関する測定方法において校正方法／妥当性検証方法ならびに測定データの不確かさの評価方法を規定するための前提として、その物性が測定法に依存しない材料固有の量（インヒレントな量）であることが重要だと考えています。

測定法依存の量（プロセス量）の場合には同じ材料を測定した場合でも測定値は測定法に依存して異なる値が得られることとなります。

JIS R1611では、測定した熱拡散率がインヒレントな量であることを検証する方法も含めた測定方法を規格に記述することで、不確かさ評価方法がより効果的であると言えます。

校正方法／妥当性検証方法ならびに測定データの不確かさの評価方法を普及させるためには、この論文により提示した精密測定技術の開発、計量標準と標準物質の整備、および測定方法の標準化に体系的に取り組むことがポイントであると考えています。

## 議論5 三位一体の取り組みの重要性

質問・コメント（小野 晃）

5.4節と6章で「計量標準と標準物質の整備」、「計測技術の標準化」、「実用計測器の開発と普及」の三位一体の取り組みが、熱物性データの生産と利用の社会システムの根幹にあると述べられています。今後熱物性以外の分野でもこのような取り組みが進むことを期待しますが、熱物性分野でこのような取り組みが行われた要因は何だったのか、当事者の立場で紹介してもらえそうですと他分野の今後の参考にもなると思います。

回答（馬場 哲也）

長さ、温度等の基本量では計量標準の精度と実用計測の精度は何桁も隔たりがあり、計量標準と実用計測では用いる技術も異なっていることが少なくないと思われます。この論文においては実用計測技

術として普及しているレーザフラッシュ法により熱拡散率の国家標準を整備するというアプローチを採用したため、技術開発の成果は計量標準と実用計測技術の両サイドに寄与しました。さらに開発した要素技術とそのシステム化による実用計測技術の高精度化と開発された標準物質による国家標準へのトレーサビリティの実現を計測技術の標準化に反映させることができました。

このようなアプローチはレーザフラッシュ法を超高速度で薄膜に適用する技術においても採用されており、同様の三位一体の社会システムが整備されつつあります。

熱物性のみならず、材料の力学物性、電気物性・磁気物性、光学物性データの生産と利用のための社会システムも同様のアプローチが適用できるのではないかと認識しています。

## 議論6 社会システムの発展のための各ステークホルダーへの期待 質問・コメント（小野 晃）

図1に熱物性データを効率的に生産し効果的に利用できる社会システムを構築するための研究シナリオが提示されています。現在この社会システムの骨組みがまずできたとところで、骨組みの強化も含めて中身はこれから順次充実させていくのであろうと思います。

このシステムが社会の中に定着していくためには、熱物性に関するさまざまなステークホルダー（大学、公的研究機関、材料製造メーカ、材料利用メーカ、標準化団体）に今後期待するところがあると思います。どのようなステークホルダーにどのような活動を期待するのか、著者のお考えがあればお聞かせ願います。

回答（馬場 哲也）

熱物性の計測器メーカには標準物質と規格を活用したトレーサブルで計測の不確かさが客観的に保証された熱物性計測器を広く社会に提供されることを期待します。

大学および学会には、計測技術の進歩とともに供給量が增大する熱物性データを、トレーサビリティと不確かさ評価技術および情報技術の進歩を駆使して評価する新しいアプローチを提示していただくことを期待します。

公的研究機関には、その設置目的に応じて所掌する分野の熱物性データを組織的かつ継続的に収集・評価することを期待します。例えば産業技術総合研究所であればエネルギー関連材料・エレクトロニクス関連材料の熱物性データなど、原子力研究開発機構であれば原子力産業・研究に必要な熱物性データが該当すると思われます。

材料製造メーカには製品の熱物性値を計量標準にトレーサブルな計測技術により測定し計測の不確かさを備えたデータを提供するとともに、販売する材料品目ごとに熱物性値のばらつきを示して提示していただければと思います。

材料利用メーカには本社会システムにより、製品の高度化やイノベーションを実現するために必要とされる総合特性（熱物性を含む）を備えた材料を見いだしていただけるものと考えています。もし既存の材料がその総合特性を満たすことができない場合には、産総研は、そのような総合特性を実現する材料のニーズを材料製造メーカに提示する情報ハブの役割を担っていきたいと考えています。