

# 低温センターだより

第5号

1987年 5月

東 京 大 学

低 温 セ ン タ ー

## 目 次

はじめに	低温センター長	田隅三生 ……	1
昭和 61 年度低温センター共同利用研究室使用報告			
急速凍結法を用いた生体試料の観察	教養学部生物学科	馬淵一誠 ……	3
電子ビーム・リソグラフィによる 厚さ変化型 Nb ジョセフソン接合の試作	工学部電子工学科	三宅修治 …… 菅野卓雄	7
極低温に於ける金属材料の変形挙動	工学部金属材料学科	柴田浩司 …… 藤田利夫	16
液体ヘリウム急速凍結置換法による トマト葉チラコイド膜の微細構造	農学部農芸化学科	森 敏 …… 西沢直子 湯本 昌(医)	22
実験技術			
ダイナミックシール	低温センター	小田嶋豊 ……	25

## はじめに

低温センター長 田隅三生

東京大学低温センターだより第5号をお届け致します。かつて1960年代後半から1970年代前半にかけて低温センターだよりは4号まで作成されましたが、その後は事務連絡を中心とする低温センターニュースのみが発行されて現在に至っております。

低温センターの第一の任務が液体ヘリウムの製造、供給、液体窒素の供給であることは明らかであります。もう一つの重要な機能に東京大学における低温関連研究のセンターとして、この分野の研究を活発化することがあると考えられます。前センター長の管野卓雄先生は研究センターとしての機能の充実に努力され、その一環として低温センターだよりの復刊を企画されました。その結果が今回お届けする第5号です。

本号では、現在低温センターの場所を借りて研究を行なっておられる方々にお仕事の紹介をお願い致しました。これを手始めとして、本学における低温関連の研究の紹介を行ない、これを通じて研究交流の実をあげてゆきたいと考えております。関係各位のご支援、ご協力をお願い申し上げます。

昭和61年度低温センター共同利用研究室使用状況

所属	氏名	使用目的	室名(面積)
教養学部 生物学科	馬淵一誠(代表者) 月田承一郎(医・解剖) 月田早智子 米村重信 吉田祥子	生物試料の急速凍結	202号室 (20m <sup>2</sup> )
工学部 電子工学科	菅野卓雄(代表者) 新井夫差子 高津求 平木充 竹田潔 福岡克仁	ジョセフソン素子の測定	202号室 (25m <sup>2</sup> )
工学部 金属材料学科	柴田浩司(代表者) 藤田利夫 藤田庫造	鉄鋼の極低温に於ける 機械的性質	304号室 (20m <sup>2</sup> )
農学部 農芸化学科	森敏(代表者) 西沢直子 湯本昌(医・解剖) 生嶋伸介	植物試料の急速凍結	202号室 (10m <sup>2</sup> )

## 急速凍結法を用いた生体試料の観察

教養学部 生物 馬淵一誠

### [序]

生物を化学固定することなく、できるだけ生きた状態のまま電子顕微鏡で観察することは、生物学者の長年の夢であった。その一つの方向として、生物を凍らせて、凍結試料を何らかの方法で電子顕微鏡観察しようとする試みは古くからなされていた。しかし、生物試料を通常の方法、例えば液体窒素などを用いて凍結すると細胞の中に大きな氷晶が形成され、微細構造は完全に破壊される。このような氷晶形成を避けるためには、グリセリンなどの凍結保護剤を用いるなどの方法があるが、生きた細胞を観察するのには適していない。そこで、細胞を急速に凍結することにより、氷晶形成の問題を避けようとする試みが多くなされてきたが、実用化が可能となったのはごく最近のことである。一般に純水や細胞質をアモルファスな状態で凍らせるのには、それぞれ一秒間に100万度及び1万度の温度効果が必要であるとされている。このような凍結速度を得るには、いろいろな方法が考えられるが、液体ヘリウム温度の純銅ブロックに試料を圧着するという方法が最も優れている。我々は、山田英智医学部名誉教授がこの低温センターで開発された急速凍結装置を改良し、種々の生物試料の急速凍結を行なっている(図1)。本年度は、主に、ウニとイモリの卵を用いた実験を行なった。

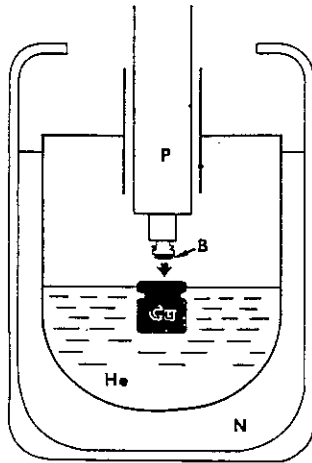


図1. 山田らにより開発された急速凍結装置の略図. 液体ヘリウムにつかっている純銅ブロックに, 棒の先につけた試料を圧着することにより, 急速凍結を行なう.

### 1. ウニ卵の表層細胞骨格の分析

ウニ卵は受精から第一分裂に至る過程で, その細胞膜直下の細胞骨格が大きな構造変化を示すことが知られており, 細胞骨格の動態を調べるのに適している. 我々は, この細胞骨格のダイナミックな構造変化を急速凍結法でとらえることを試みつつある.

### 2. ウニ卵の分裂装置の分析

細胞が分裂する際, 染色体を分配する装置として, 分裂装置が形成される. この分裂装置は微小管と呼ばれる細胞骨格線維で形成されていることはよく知られている. 我々は急速凍結法とディープエッチングレプリカ法を組み合わせることにより分裂装置を立体的に観察し, 染色体移動の基本となる構造について分析した(図2).

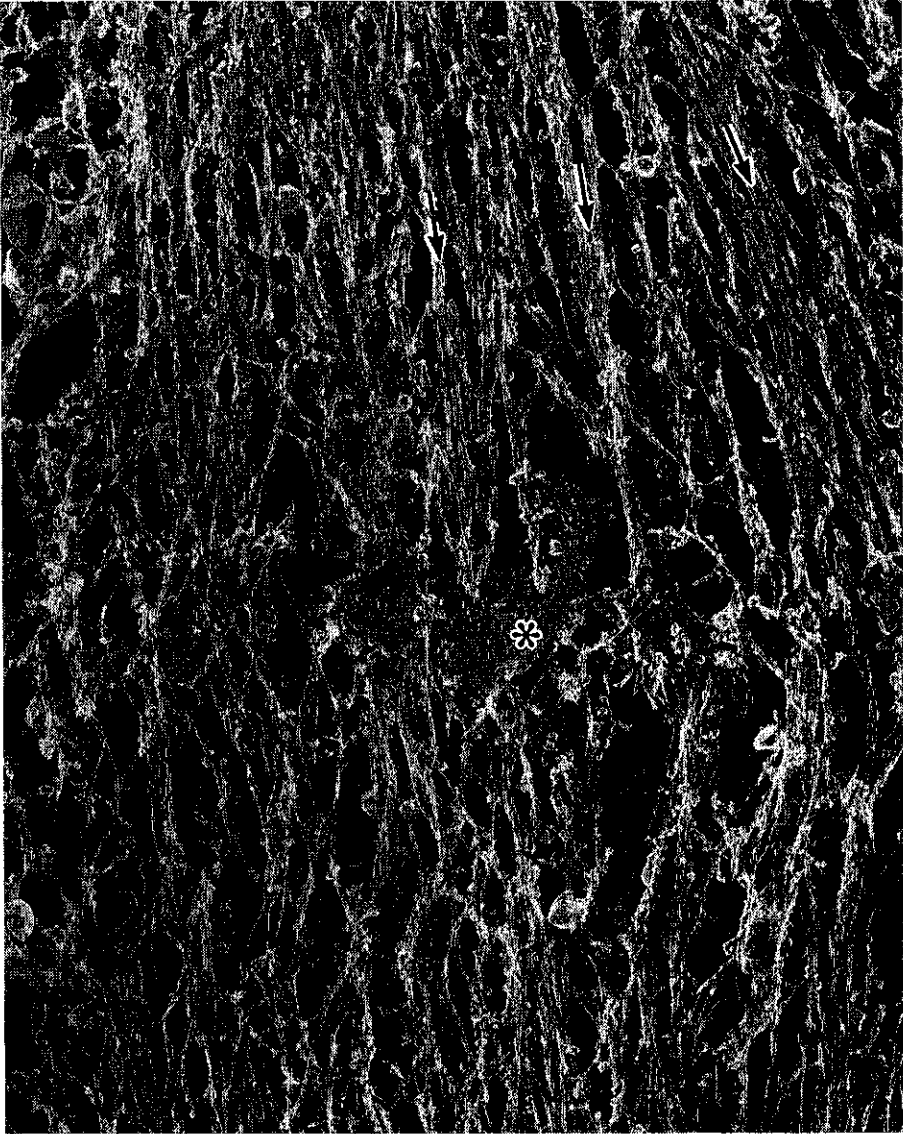


図 2 . ウニ分裂卵より分離された分裂装置の急速凍結ディープエッチングレプリカ像 . 染色体 ( \* ) より伸び出ている紡錘糸 ( 微小管 ) が明瞭に観察される .

### 3. イモリ卵より分離した分裂溝の分析

細胞が分裂する際、最終的には、細胞質が二つに分けられる。この細胞質分裂の際、細胞の赤道面にくびれができるが、その細胞膜の直下には、アクチン線維が束になって存在することが知られており、その束の収縮により、細胞質が二つに分けられる。我々は、最近このくびれ（分裂溝）をイモリ卵より単離することに成功し、その構造の分析を進めている。本年度は、単離した分裂溝を急速凍結し、ディープエッチングレプリカ像を得ることに成功した。



# 電子ビーム・リソグラフィによる厚さ変化型 Nb ジョセフソン接合の試作

三宅 秀治, 菅野 卓雄

東京大学 工学部 電子工学科

## 1. はじめに

ブリッジ型ジョセフソン素子は、素子容量が無視できる程小さく、高速デジタル素子への応用が期待できる。また平面的な構造をとりやすいので集積化にも適しているが、特性の良いブリッジ型接合を得るためには弱結合部の材料のコヒーレンス長の数倍程度、すなわち  $0.1 \mu\text{m}$  程度の微細加工を行なうことが必要である。

そのためブリッジ長の短い素子を作成するために従来種々の方法が提案されてきたが、その中には集積化に適用が困難なものもある。

我々は以前、ブリッジ型ジョセフソン素子を用いた、磁束量子を情報担体とした一方向化磁束量子論理回路を提案したが、<sup>(1),(2)</sup>、この回路を製作するためには、ジョセフソン素子の大きな利点の一つである消費電力の小さいことを活用するためにも素子の製作プロセスは高密度集積化に適したものであることが望ましい。また高密度集積化を行うために超伝導グランドプレーンを用いる事が出来るように、素子の製作プロセスは絶縁膜上に素子を作成できるものでなければならない。

我々は以上の観点から集積化を主な目的として、Nb の蒸着を 1 回に限り、電子ビーム・リソグラフィ技術を用いて Nb の厚さ変形型のジョセフソン素子の制作を行っている。本稿では、ブリッジ型素子を作成するために Nb の  $0.1 \mu\text{m}$  程度の加工を行うための電子ビーム・リソグラフィ技術およびこれを用いたブリッジ型素子の製作と素子の特性について報告する。

## 2. ブリッジ型素子製作のための電子ビームリソグラフィ

$0.1 \mu\text{m}$  程度の加工を行うための方法としては、斜め蒸着法、リフトオフ法などの種々の方法が提案されているが、本研究では超伝導金属として高融点金属である Nb を用いているので、このような方法で  $0.1 \mu\text{m}$  程度の加工を行う

ことは困難である。したがって、本研究では絶縁膜上に蒸着したNbに電子ビーム露光と反応性イオン・エッチングを用いて、 $0.1\ \mu\text{m}$ 程度の溝を製作した。

本研究で用いている電子ビーム露光装置は、JEOL JBX-5DS型で、加速電圧は $25\ \text{kV}$ である。この露光装置ではビーム径を $10\ \text{nm}$ まで絞ることができるが、電子ビームでは以下に示すような近接効果によって加工できる最小線幅が決定される。<sup>3)</sup>

a) 基板からの電子の後方散乱

b) レジスト内の電子の散乱

したがって、電子ビーム露光を用いて微細加工を行うためには以上の各効果をできるだけ小さくすることが必要である。a)を減少させるためには基板を非常に薄くするなどの方法があるが、この場合には基板は膜厚 $0.1\ \mu\text{m}$ 以上のNb膜であるからこの方法を用いることはできない。またb)を減少させるためには、加速電圧一定のもとではレジストの膜厚をできるだけ薄くすればよい。

さらに本研究では膜厚 $0.1\ \mu\text{m}$ 以上のNbをエッチングする必要があるので、レジストはNbの反応性イオン・エッチングに対して十分マスクとなるだけの耐プラズマ性をもたなければならない。一般に電子ビーム・レジストは反応性イオン・エッチングによるエッチングが大きく、特に $0.1\ \mu\text{m}$ 程度の分解能を得るのに用いられる最も分解能の優れたPMMAでは約 $300\sim 400\ \text{nm}/\text{min}$ と非常に大きいため、Nbの反応性イオン・エッチングマスクとするためにはかなりの膜厚が必要であるため、前述したb)の影響が大きくなってしまふ。

以上を考慮して、本研究では図. 1に示す3層レジスト技術<sup>4)</sup>を採用している。この方法では、Nbの反応性イオン・エッチングのマスクとしては最下層の有機膜を用いるので、電子ビームで露光する最上層のレジストの膜厚を非常に薄くすることができ、レジスト内の電子の散乱を小さくすることができる。

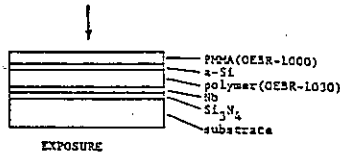
また基板からの後方散乱は、最下層の有機膜により吸収することができるのでこの影響を小さくすることができる。ここで、最上層のレジストには分解能の最も優れたビーム・レジストPMMA(OEBR-1000)を用いている。また、最下層の有機膜に要求される条件には次のようなものがある。

- 1) Nbの反応性イオン・エッチングに対する、マスクとして十分であること。
- 2)  $\text{O}_2$ プラズマで反応性イオン・エッチングをした場合の分解能が十分小さいこと。
- 3) 剝離が容易であること。

一般に耐プラズマ性の点では、電子ビーム・レジストよりもフォトレジストの方が優れている。ここで用いているOEBR-1030はボジ形電子ビームレジストであり、比較的耐プラズマ性が優れており、フォトレジスト(例えばMP-1400J)と比べてレジストとしての分解能が優れているので、反応性イオン

・エッチングによってより微細に加工することが可能であると考えられる。

前述したように最上層の電子ビームレジストの膜厚ができるだけ薄いことが望ましいので、各層の膜厚は各々その下の膜の反応性イオン・エッチングに対して十分マスクとなる範囲でできるだけ薄くなるように決定した。各層の膜厚を表1に示す。



Top layer	OEBR-1000(diluted with tri-chloroethylene)	- 200 nm
Middle layer	amorphous silicon(doped with P)	- 40 nm
Under layer	OEBR-1030	-600 nm

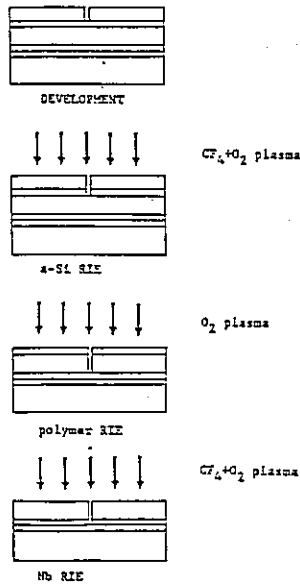


表1 3層レジストの各層の膜厚

Gas	CF <sub>4</sub> + O <sub>2</sub>
RF power	250 W
Gas pressure	3 Pa
Gas flow rate	30 sccm
Self-bias voltage	800 V
Etch rate	
amorphous silicon	-100 nm/min.
OEBR-1000	-300 nm/min.

図1 ブリッジ部の製作プロセス

表2 アモルファスシリコンの

反応性イオン・エッチング条件

Gas	O <sub>2</sub>
RF power	200 W
Gas pressure	3 Pa
Gas flow rate	30 sccm
Self-bias voltage	700 V
Etch rate	
OE3R-1030	-200 nm/min.
amorphous silicon	<10 nm/min.

Gas	CF <sub>4</sub> + O <sub>2</sub>
RF power	250 W
Gas pressure	3Pa
Gas flow rate	30 sccm
Self-bias voltage	800 V
Etch rate	
Nb	- 80 nm/min.
OE3R-1030	< 200 nm/min.

表3.ポリマ膜の反応性イオン・エッチング条件

表4 Nbの反応性イオン・エッチングの条件

ここで、アモルファス・シリコンはプラズマ化学気相堆積で、帯電を防ぐためにPドーピングして堆積している。堆積条件は、最下層の有機膜が堆積中に損傷を受けないように堆積温度150℃、放電電力10Wとしている。中間層としてアモルファス・シリコンを用いているのは、帯電を防止するために低抵抗にすることが容易であることと、反応性イオン・エッチングによる加工が容易であることと、最下層の有機膜が損傷を受けない条件で堆積可能であるためである。

電子ビーム露光のドーズ量は $\sim 1 \text{ nC/cm}$ で現像液にはMIBK:IPA = 1:3をもちいている。アモルファス・シリコン、OE3R-1030、Nbの反応性イオン・エッチングの条件を各々表2、3、4に示す。微細なパターンをエッチングするために、ガス圧をできるだけ小さく、またセルフバイアス電圧をできるだけ大きくしている。

各表中のエッチ速度の値は大面積の膜をエッチングした場合のエッチ速度であるが、微細パターンをエッチングする際には、特に膜の幅が狭くなりアスペクト比が大きくなればなるほど、エッチングによる反応性生成物（例えば、OE3R-1030のエッチングの場合には、CO<sub>2</sub>、H<sub>2</sub>O）が溝の中から外部に抜けないために、エッチングの進行が妨げられるため、エッチレートはこれらの値よりもずっと小さくなる。

この問題を解決するためには、アスペクト比が大きくエッチングによる反応生成物が外部に抜けにくくなるような、OE3R-1030およびNbのエッチング中に、反応生成ガスを外部に強制的にだしてやればよく、本研究では、これらのエッチングを間欠的に行い、放電と真空引き（ $\sim 3 \times 10^{-3} \text{ Pa}$ ）を交互に行うことによって、溝中の反応性生成ガスを排気している。

この間欠的なエッチングは反応性イオン・エッチング時の温度上昇を抑え、レジストの温度上昇に伴う変質を防ぐことにより、等価的に放電電力（セルフバイアス電圧）を大きくすることができるといふ効果も果している。

以上のプロセスを用いて加工したNbの微細パターンの走査型電子顕微鏡写真の例を図2、3に示す。図2はライン・アンド・スペースのパターンを加工したもので、図中の左側から右側にドーズ量を10%ずつ減少させている。これらにより、以上のプロセスによってNbの0.1 $\mu$ m程度の加工が可能であることがわかる。

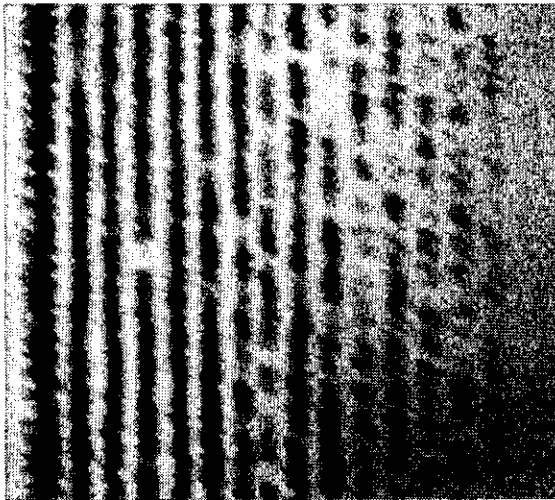


図2 Nbエッチング後の  
ライン・アンドスペースの走査型電子顕微鏡写真

1  $\mu$  m

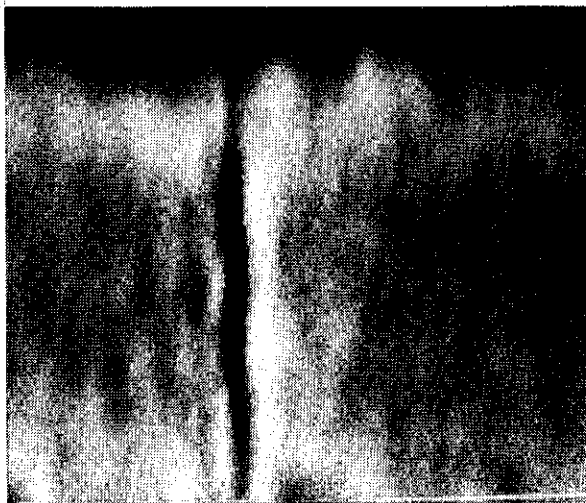


図3 Nbエッチング後の0.1 $\mu$ mラインの走査型電子顕微鏡写真

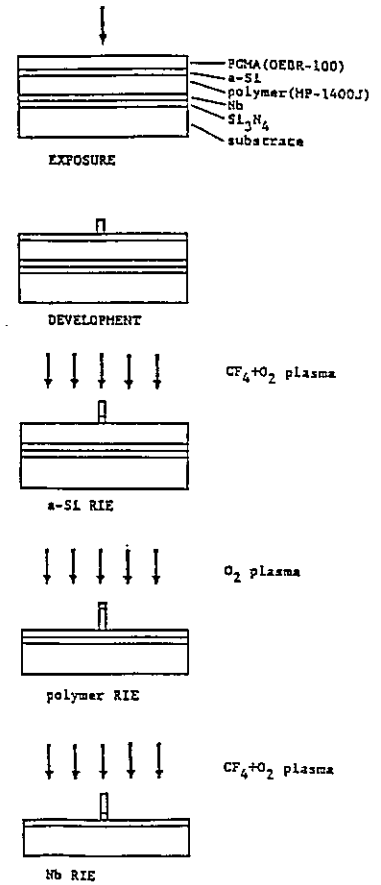


図4 電極パターニングのプロセス図

0.5  $\mu$  m

### 3.ブリッジ型素子の制作

本研究ではブリッジ型素子を用いて論理的回路を、高密度集積化に適した方法で製作することを最終的な目標としているので、ゲート当りの面積をできるだけ小さくすることができるように最小線幅を $1\mu\text{m}$ としている。このためブリッジ型素子の電極配線パターンニングも電子ビーム露光を用いて行っている。これにより、論理回路を製作する際の重ね合わせ精度を良くすることができる。

前述したように電子ビームレジストの耐プラズマ性は悪く、時にここで用いるネガ型レジストPGMA(OEBR-100)の反応性イオン・エッチングによるエッチ速度は非常に大きいので、ここで図4に示すような3層レジスト技術を用いている。

この場合最下層の有機膜としてMP-1400Jを用いているのは、前節のプロセスと異なり分解能自体はそれほど必要ではなく、耐プラズマ性の点で優れているためである。またPGMAのベーク温度は低いので、MP-1400Jが3層レジストの製作中に変質することはない。MP-1400Jは、膜厚が $\sim 600\text{nm}$ となるようにシンナーで希釈している。アモルファ・シリコンは前節と同様にプラズマCVDで堆積しているが、堆積温度はMP-1400Jのベーク温度が低い( $130^\circ\text{C}$ )ため $100^\circ\text{C}$ にしている。また、アモルファス・シリコン、MP-1400J、Nbのエッチングには各々前節で述べたのと同じガスを用いているが、この場合にはエッチング中の有機物の堆積が生じにくいように圧力を $5\text{Pa}$ と高くし、主に反応性イオン・エッチングの温度上昇を小さくするために放電時の電力(セルフバイアス電圧)を小さくしている。

厚さ変化型ブリッジ素子の製作プロセスを以下に述べる。

- 1) Si基板上に $\text{Si}_3\text{N}_4$ を $100\text{nm}$ プラズマ化学気相堆積法により堆積する。
- 2) Nbを電子ビーム蒸着により $120\text{nm}$ 蒸着する。
- 3) 図4に示したプロセスを用いて、素子の電極およびボンディング・パッドのパターンニングを行う。
- 4) 図1に示したプロセスを用いてブリッジ部のパターンニングを行う。

この方法では、1度のNbの蒸着でブリッジ型素子を製作することができるので集積化に適している。

以上のプロセスで製作したブリッジ型素子の走査型電子顕微鏡写真を図5に示す。ブリッジ長は $0.1\sim 0.15\mu\text{m}$ のものが再現性良く得られている。

#### 4. 素子の特性

以上のプロセスで制作した厚さ変化型ブリッジ素子の4.2 Kにおける電圧・電流特性の測定結果の例を図6に示す。現在までに得られている厚さ変化型ブリッジ素子の臨界電流値 $I_c$ は0.05~0.3 mAの範囲である。

図7に10 GHz程度のマイクロ波を照射した時の電圧・電流特性の測定結果の例を示す。0.1 mA程度までステップが現れている。

前述したプロセスによって厚さ変化型を製作する場合に、素子の特性に重大な影響を及ぼすと考えられるには、ブリッジ部のNbの膜厚と反応型イオン・エッチングによる損傷の二つである。

ブリッジ部のNbの膜厚は、現在エッチング時間によって制御しているが、前述したようにこの場合のように狭い領域をエッチングする場合のエッチ速度は大きな面積をエッチングする場合のエッチ速度よりも小さくなっている。

また、図5に見られるようにパターンのエッジがネガ型電子ビームレジストの分解能が不十分であることに起因すると思われるが、それほど鋭くではなく、そのため断面形状を正確に走査型電子顕微鏡で観察することが困難であるため、実際の素子でのブリッジ部のNbの膜厚は今までのところ求まっていない。この場合よりもやや広い0.3  $\mu$ m程度の線をエッチングした場合には走査型電子顕微鏡による断面形状の観察から残っている膜厚を見積ることが可能であり、その場合のエッチ速度から推定してブリッジ部のNbの膜厚は数100 Åであると考えられる。素子の特性のばらつきの原因は、この膜厚の制御が十分でないためと考えられる。

現在Nbの反応性イオン・エッチングの条件は、微細なパターンをエッチングできるようにセルフバイアス電圧がかなり大きくなるような条件にしているが、この場合にはかなりの物理的スパッタリングも含まれていると考えられる。Nbの反応性イオン・エッチング時のセルフバイアス電圧を800~700 Vの範囲で変化させているが、現在のところこの範囲では素子の特性にそれほど大きな差は現れていない。しかし、エッチング条件の変化に伴ってエッチ速度も変化するためにブリッジ部のNbの膜厚を一定にすることが困難であるためエッチング条件を変化させたことによる影響のみを単独に見積ることは難しい。

今後さらにエッチング時のセルフバイアス電圧を下げることなどによって、反応性イオン・エッチングによる損傷を減少させることにより素子の特性を向上させることは可能であると思われる。

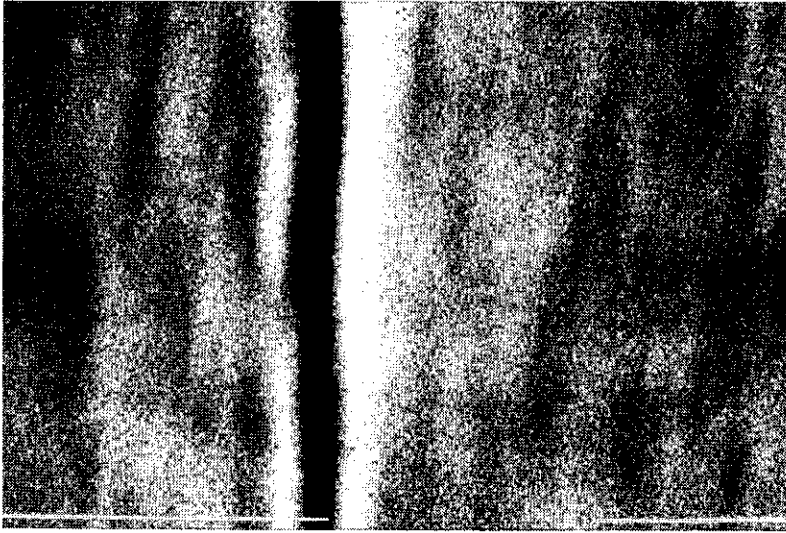


図5 ブリッジ部の走査型電子顕微鏡写真  $1\ \mu\text{m}$

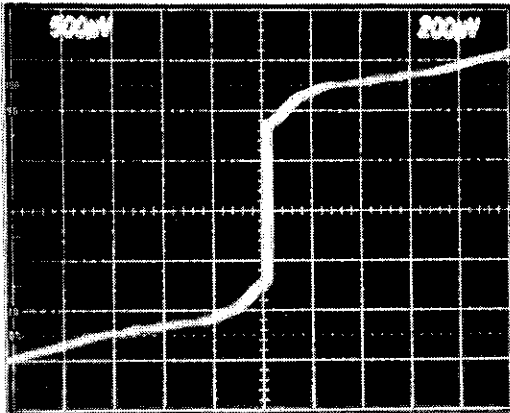


図6 製作した素子の4.2 Kにおける  
電圧・電流特性の例

縦軸  $50\ \text{uA/div.}$  横軸  $200\ \text{uV/div.}$

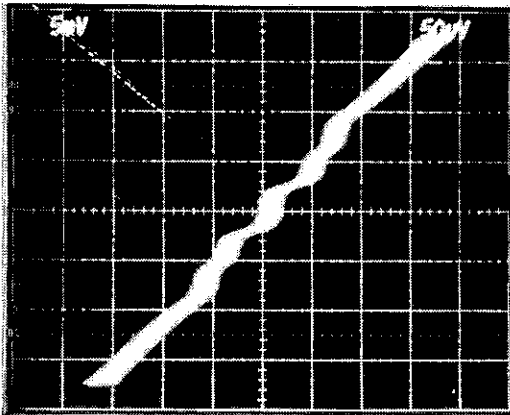


図7

製作した素子のマイクロ波(9.9 GHz)  
照射時の電圧・電流特性の例

縦軸  $50\ \text{uA/div.}$  横軸  $50\ \text{uV/div.}$



## 5. まとめ

ブリッジ型素子を用いた論理回路を製作することを最終的な目的として、高密度集積化に最適な方法でブリッジ型素子を製作するために、3層レジスト技術と反応性イオン・エッチングを用いてNbの $0.1\mu\text{m}$ 程度の加工を行うための電子ビーム・リソグラフィ技術を確立した。この技術を用いて長さ $0.1\sim 0.15\mu\text{m}$ 、幅 $1\mu\text{m}$ のNbの厚さ変化型ブリッジ素子を制作した。

4. 2Kにおける電圧・電流特性および $10\text{GHz}$ のマイクロ波照射時の電圧・電流特性を測定した結果、 $I_n R_n$ 積 $0.05\sim 0.3\text{mV}$ が得られ、 $0.1\text{mV}$ 程度までステップが観測された。

今後特性およびその制御性を向上させるためにブリッジ部のNbの膜厚および反応型イオン・エッチングによる損傷の影響について検討を加えるとともに論理回路の製作を行う予定である。

## 参考文献

- 1) 三宅, 深谷, 岡部, 菅野:  
信学技報 SCE 83-53 p.45
- 2) H. Miyake, N. Fukaya, Y. Okabe and T. Sugano :  
IEEE Trans. Mag.-21 (1985) p. 578
- 3) M. Hatzakis :  
Appl. Phys. Lett. vol. 18 (1971) p.7
- 4) D. M. Ternant, L. D. Jackel, R. E. Haward, E. L. Hu, P. Grabbe,  
R. J. Capik and B. S. Schreider :  
J. Vac. Sci. Technol. 19 (1981) p. 1304

猶本稿は電子通信学会技術研究報告・超伝導エレクトロニクス研究専門委員会資料 SEC 85-33を許可を得て再録したものである。

# 極低温における金属材料の変形挙動

工学部 金属材料学科 助教授 柴田浩司  
教授 藤田利夫

## 1. 緒言

近年、次世代のエネルギーを荷なうものとして核融合炉、超伝導発電等超伝導マグネット周辺技術の開発が盛んに行われている。これらの技術において使用される超伝導マグネットは非常に大きく、作用する電磁力も強大なものとなる。また、当然のことながら安全性も十分考えなければならず、強度が高く靱性にも優れた構造材料が要求される。一般に材料は強度が高くなるほど、また使用温度が低くなるほど脆くなる。従って、極低温用構造材料の開発にあたっては、靱性の低下をいかに少なくして強度を高めるかが重要な課題の一つとなる。また、極低温においては材料の比熱、熱伝導度が著しく低下する。例えば、Al合金の場合4.2Kの比熱は室温のおよそ3000分の1にもなる。そのため、塑性変形によるわずかの仕事就容易に材料の温度上昇をもたらし、特異な塑性変形挙動の原因となる。この変形挙動は、変形が局所的に高速度でかなりの温度上昇を伴って生じることを特徴とし、通常断熱不安定変形あるいはセレーションなどと呼ばれている。このような変形が上に記したような極低温構造物で生じると、超伝導マグネットの正常な運転に支障を来すのみならず、場合によっては構造物の力学的安定性を破壊することも懸念される。しかし、従来この特異な変形挙動に関する研究は殆ど行われておらず、詳細に不明の点が多い。さらに、極低温構造物はパルス運転や冷却・昇温による繰り返し変形を受ける場合が多く、極低温用材料は疲労に対しても強いことが要求される。しかし、液体ヘリウム温度における疲労の研究は、液体窒素を用いる場合と比較して実験に余計な労力と面倒を要することや、とくに我が国では液体ヘリウムが高価なことから殆ど行われていなかった。以上のような情勢から、我々は昭和56年度より、液体ヘリウム中で引張試験、疲労試験が行える材料試験装置を試作して当低温センターに設置し、高強度・高靱性極低温用材料開発のための基礎研究、極低温における低サイクル疲労に関する研究、極低温における変形挙動の研究などを進めてきた。

## 2. 方法

試験は試験片を冷媒に浸して行う。試験機の性能を表1に示す。

表1. 材料試験機の性能と仕様。

本体	可能な試験	引張試験、圧縮試験、低サイクル疲労試験
	荷重 (油圧)	±2500kg
	繰り返し数	0.01~0.4hz
	引張速度	~10~1x10 <sup>-3</sup> mm/min
	波形	三角波
	ストローク	max. 30mm
	制御	荷重、変位 (差動トランスで検出)、歪 (試験片に取付けたクリップゲージで検出)
クライオスタット		
	内容積	約20リットル
	必要な冷媒の量	液体ヘリウム (15リットル、疲労試験の場合は20リットルで約6時間試験出来る) 液体窒素 (30リットル)
試験片形状*		
	丸棒試験片	ネジ部直径 引張試験 (12φ、8φ) 圧縮試験 (12φ) 疲労試験 (12φ)
		(8φの試験片は1度に3本試験出来る)
試験温度	室温	
		77K (液体窒素中)
		4.2K (液体ヘリウムHel I中)
		2.2K (液体ヘリウムHel II中)

(\* 治具を作製すれば他の形状の試験片でも試験可能)

実際に材料試験を行うと同時に、極低温での変形の計算機シミュレーションも行い考察の手段にした。

## 3. 結果

### 3.1. 高強度、高靱性極低温用高マンガン鋼開発の基礎研究

#### 低再加熱脆化感受性極低温用鋼に関する研究

超伝導マグネットの製造法の一つであるWind and react法では、コンジュエットと呼ばれる管の中に超伝導線素材を挿入してから加熱して素材を反応させ超伝導線とする。マグネット運転時超伝導線はコンジュエット内の隙間を流れる液体ヘリウムにより冷却されるが、コンジュエット材が、素材を反応させるための加熱時に脆化し問題となる。本研究ではマイクコアロイニングと熱処理の効果を検討することにより、脆化の程度の少ないコンジュエット用鋼を製造するための知見を得た。

超伝導マグネット支持材用高強度非磁性鋼に関する研究

オーステナイト系ステンレス鋼および高マンガン鋼に窒素を添加すると極低温における強度が著しく増加するが、靱性が劣化する。本研究では、この靱性劣化の原因を詳細に調べ、脆化を熱処理により防止もしくは回復する方法を見出している。

3. 2. 極低温における鋼の低サイクル疲労挙動に関する研究

高強度極低温用オーステナイト鋼の室温以下液体ヘリウム温度までにおける低サイクル疲労挙動を詳細に調べ、窒素、炭素の添加により強化した鋼は、繰り返し変形を受けると軟化することを見だし、その原因について検討した。この疲労軟化は、例えば塑性歪振幅一定試験を行った場合、歪振幅が小さいほど、また窒素量、炭素量が多く強度レベルが高いほど顕著になる。また、マルテンサイトが繰り返し変形中に生じなければ、軟化は試験温度の低下によっても著しく大きくなる。図1, 2に結果の一部を示す。せっかく窒素を添加して強化しても、繰り返し変形により強度が低下してしまうことが分る。

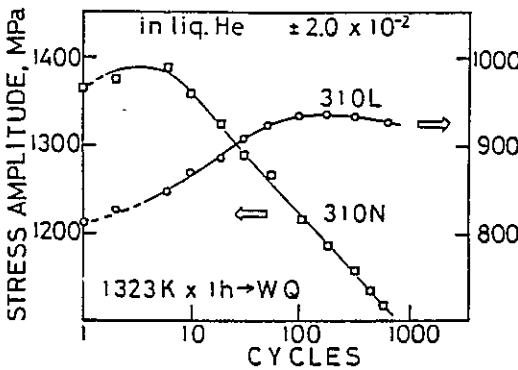


図1. SUS310系鋼の液体He温度における疲労挙動(L: 0.01C, 0.008N, N: 0.013C, 0.17N).

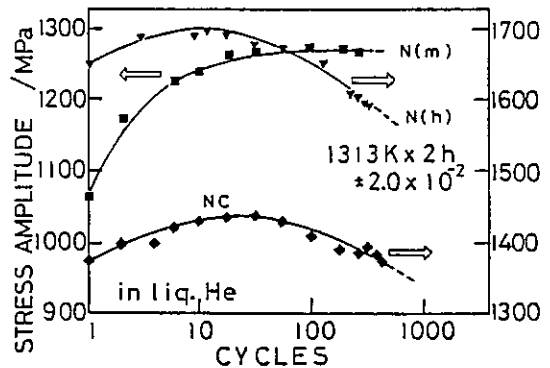


図2. 32%Mn系鋼の液体He温度における疲労挙動(NC: 0.14C, 0.13N, N(m): 0.03C, 0.12N, N(h): 0.03C, 0.30N).

我々はこの疲労軟の原因について考察し、Cr, Mn原子と窒素、炭素原子の間の結合体が発与していると考え、注目しているような疲労軟化に

関する多くの実験結果を定性的にはあるがうまく説明出来ることを明らかにした。また、極低温における疲労試験においては、前述したような断熱不安定変形に起因して測定上様々な問題が生じることを明らかにし、試験法の標準化が必要であることを提言した。

### 3.3. 極低温における引張変形挙動に関する研究

断熱不安定変形に及ぼす試験条件、材料因子の影響を明らかにした。試験条件の影響に関しては、引張速度、試験片の平行部長さ・太さ、試験温度、試験機の剛性について検討した。材料因子の影響に関しては、強度レベル、転位密度、比熱、熱伝導度、熱伝達率、転位の運動の活性化エネルギー、試験中に生じるマルテンサイト変態及びFe-Ni合金・Al合金、純Ti、Ti合金等材料の相違の効果について検討した。また、我々の作成した計算機プログラムによる引張試験のシミュレーションは、実際に観察される断熱不安定変形挙動を良く再現することを明らかにし、このシミュレーション法を用いることにより、実験的には困難な断熱不安定変形に及ぼす特定の因子の影響などが容易に解明出来ることなどを示した。シミュレーション方法の骨子を図3に、結果の一例を図4.5に示す。

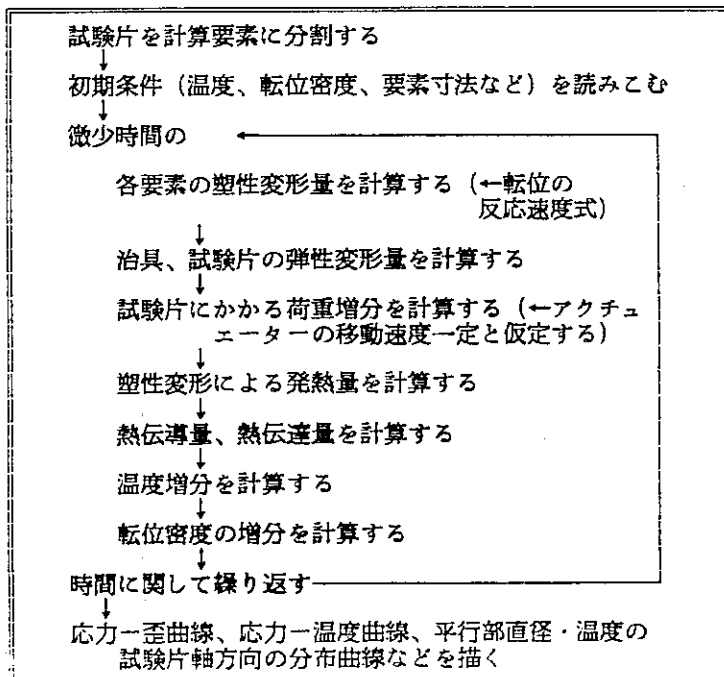


図1. 極低温変形の計算機シミュレーション法

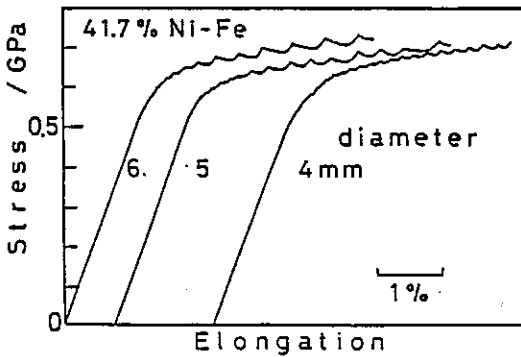


図4. 液体He中での応力-伸び曲線に及ぼす試験片平行部太さの影響(実測)。

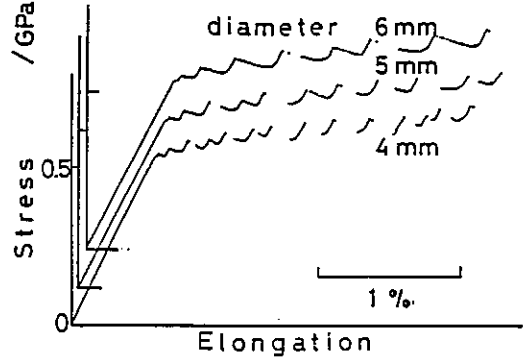


図5. 液体He中での応力-伸び曲線に及ぼす試験片平行部太さの影響(計算)。

#### 4. 結言

高温超伝導物質の発見のニュースがあい次ぎ、第3者である我々の胸も高まる最近である。いずれ超伝導マグネットもそのような物質で作られる時代が訪れるのかも知れない。しかし当分の間は極低温において作動する超伝導マグネットが使用され、材料の極低温における強度、靱性、変形挙動、疲労挙動などを明らかにすることの重要性は変わらないものと考えられる。61年度より、ヴェルサイユサミットの合意により、先端材料の特性に関する国際協同研究(科学技術庁)が開始されたが、我々のグループも極低温構造材料分野でその一端を荷なうことになった。現在、従来用いてきたものよりさらに精度、荷重能力の高い試験機を新設中で、間もなく液体ヘリウム中で荷重15トンまでの破壊靱性試験も行えるようになる予定である。

最後に、本研究に御協力下さった低温センターの皆様、協同研究者の皆様に感謝いたします。また、研究費の一部は文部省科研費、岩谷研究奨励金によったことを付記し感謝いたします。

#### 研究成果

k. Shibata et al: Mechanical Properties of High Yield Strength High Manganese Steels at Cryogenic Temperatures, Advances in Cryogenic Engineering Materials, 30(1984), 153

- 柴田ら：高窒素高Mn非磁性鋼の低温脆化、鉄と鋼（投稿準備中）
- K. Shibata et al: Cooling Conditions After Solution Treatment and Low Temperature Toughness of a 32%Mn Bearing High Content of Nitrogen, Trans. of ISIJ（投稿準備中）
- 柴田ら：窒素添加オーステナイト系ステンレス鋼の繰返し軟化、鉄と鋼、69(1983)4. A93
- 柴田ら：32%Mn非磁性鋼の低サイクル疲労挙動に及ぼすC、Nの影響、鉄と鋼、71(1985)15. 1795
- 柴田ら：オーステナイト系ステンレス鋼の低サイクル疲労における繰返し軟化、鉄と鋼、69(1983)16. 2076
- K. Shibata et al: Cyclic Softening and Hardening of Austenitic Steels at Low Temperatures, Fatigue at Low Temp., ed. by R. I. Stephens., ASTM. STP 857, 1985. 31
- 柴田ら：窒素により強化した極低温用オーステナイト鋼の低サイクル疲労軟化、（昭和59年度文部省科研費エネルギー特別研究総合包括班報告書）. 1969. 105
- 柴田ら：液体窒素および液体ヘリウム中における32%Mn非磁性鋼の低サイクル疲労に及ぼすC、Nの影響、鉄と鋼、73(1987)6月号（印刷中）
- 柴田ら：オーステナイト系ステンレス鋼の低サイクル疲労軟化に及ぼすCの影響、鉄と鋼（投稿中）
- K. Shibata et al: Serration of Fe-Ni Austenitic Steels at Very Low Temperatures and its Computer Simulation, Trans. of ISIJ, 26(1986)12. 1065
- K. Shibata et al: Martensitic Transformation and Serration of Fe-Ni Binary Alloys at 4.2K, Proc. for Intern. Conf. on Marten. Transformation, 1987. Jan.. 509
- 柴田ら：極低温におけるFe-Ni合金のセレーションとその計算機シミュレーション、鉄と鋼、73(1987)4月号（印刷中）
- k. shibata et al: Simulation of serration near liquid helium Temperatures, Advances in Cryogenic Engineering Materials 34(1987) (to be submitted)

## 液体ヘリウム急速凍結置換法によるトマト葉チラコイド膜の微細構造

農学部 植物栄養 森 敏, 西沢直子, 医学部 解剖 湯本 昌

電子顕微鏡による細胞の微細構造観察のための試料作成の際、華品による化学固定の代りに細胞を急速に凍結して固定する方法を急速凍結法と呼ぶ。現在低温センター内で使用している装置は、液体ヘリウム温度に冷却した純銅ブロックに細胞を圧着し、凍結試料を得るものである。

微細構造の保存において画期的な手法である、この液体ヘリウム急速凍結法を植物の組織に適用して、良好な結果を得ている。今回は液体ヘリウムによる急速凍結後、置換固定したトマト葉肉細胞内の葉緑体の微細構造、特に従来法では観察されなかったチラコイド膜の微細構造について報告する。

材料として、トマト(品種サターン)をガラス室内で30日間土耕栽培し、その完全展開葉の一部を用いた。カミソリで、葉を1mm幅に切り、その切断面が純銅ブロックへの圧着面となるようにして、液体ヘリウム温度に保ったブロックに圧着、凍結後、2%オスミウム酸アセトン(-80°C)で48時間置換固定した。徐々に温度を上げ、室温でアセトン、プロピレンオキシドにより脱水、樹脂包埋した。超薄切片は、ウランと鉛の二重染色を施し、日立HU-12A, H-7000で検鏡した。

葉緑体の基質は、電子密度の高いリボソーム様の顆粒で埋っていた(オI図)。チラコイド膜は、グラナ部分もストロマチラコイド部分も明瞭に観察された。デンプン粒は基質内に存在したが、プラストグロビールは、みられなかった。

高倍率にして観察すると、それぞれのチラコイド膜は三層から構成され、非対称である。基質に面した層(外層)は電子密度が高く、中間の層は明るく、内腔側に面した層は、やや電子密度が低く、不連続になっている。この内層は、しばしば、2nm~3nm径の電子密度の高い顆粒から構成されているように観察される(オII図)。これに対して、従来の化学固定法による観察では、チラコイド膜は均一で、このような三層構造は、みられなかった。



急速凍結置換法では、化学固定法の脱水時にみられたクロロイルの抽出は、ほとんどみられなかった。

以上の観察結果から、この方法によって得られたチラコイド膜の微細構造は、化学固定によるものよりもほかに、自然の状態に近いと考えられる。

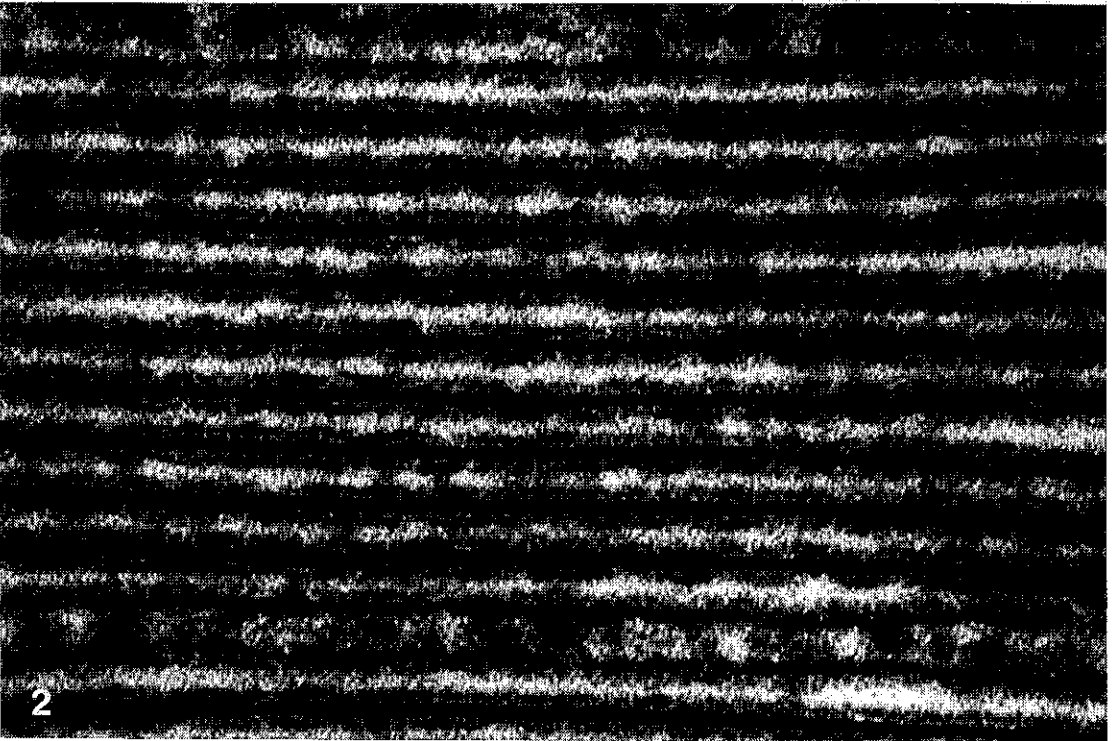
### 図の説明

オ1図 トマト葉肉細胞内葉緑体(急速凍結置換法による)

500nm

オ2図 同上拡大図。葉緑体内チラコイド膜の微細構造

50nm



## 実験技術紹介

### ダイナミックシール

低温センター 小田嶋豊

従来液体ヘリウムを汲み出す時は、トランスファーチューブを液体ヘリウム容器に入れて、生ゴム管の上から銅線で縛っていました。このダイナミックシール（図1）を予めトランスファーチューブにつけておけば銅線を使う必要はありません。

使い方は簡単：ヘリウム容器とクライオスタットにトランスファーチューブを少し差し込んでからシールを下げゴム管で止めます。後はゆっくりトランスファーチューブを下げるだけです（図2）。+0.3気圧に加圧してもリークはなく、真空も0.05Torr以下までひけます。トランスファーチューブの導入時のヘリウムガスの大気放出をふせげるし、銅線を結ぶ手間もかからない。トランスファーチューブも痛めない、第一銅線屑が出ない。お勧めします。

なお、手持ち品が少しありますので希望の方は連絡してください。

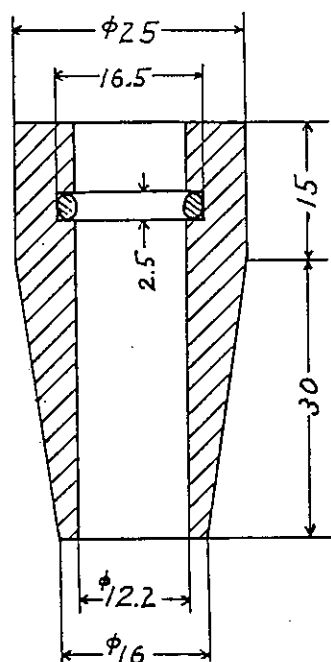


図1：ダイナミックシール

材質：テフロン、デルリンなど

○リング：JIS B2401-P12

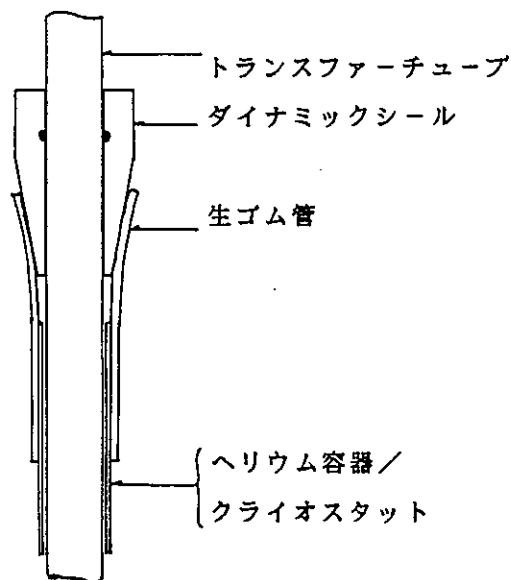


図2：使用法