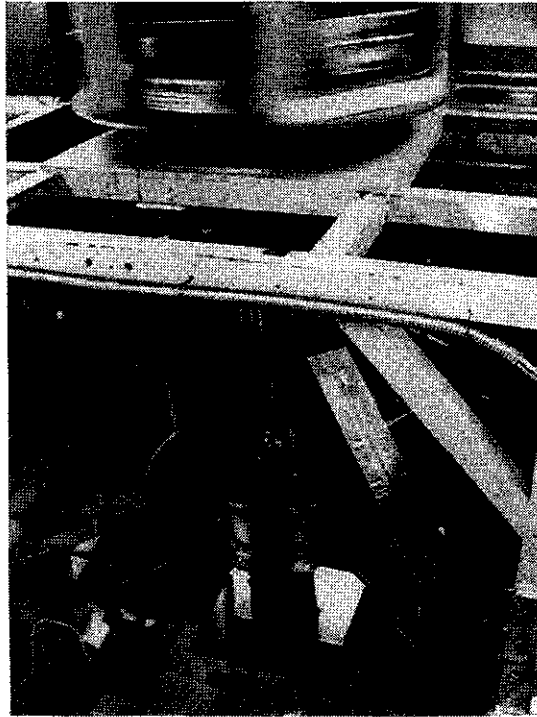


低温センターだより

第 24 号

1998年8月



東 京 大 学
低 温 セ ン タ ー

目 次

ASTRO-E衛星搭載X線マイクロ カロリメーター	宇宙科学研究所 満田和久, 滝本龍一	1
回転クライオスタットと超流動量子渦科学の 基礎研究	物性研究所 福田宗行, 久保田実	18
低温におけるアルミニウム合金の粒界破壊	工学系研究科材料科学専攻 倉本繁, 菅野幹宏	28
磁場により引き起こされる種々の現象	工学系研究科応用化学専攻 廣田憲之, 北沢宏一	34

ASTRO-E 衛星搭載 X線マイクロカロリメーター

宇宙科学研究所 満田 和久
(mitsuda@astro.isas.ac.jp)
藤本 龍一
(fujimoto@astro.isas.ac.jp)

1. ASTRO-E XRS (X-Ray Spectrometer)

XRS (X-Ray Spectrometerの略) は、2000年初めに打ち上げ予定の我が国 4 番目のX線天文衛星 ASTRO-Eの焦点面検出器の一つとして搭載されるX線検出器システムである。ASTRO-Eには5台の軟X線望遠鏡と1台の硬X線望遠鏡が搭載される。軟X線望遠鏡はそれぞれX線反射鏡と焦点面検出器からなり、5台中4台には焦点面検出器としてX線CCDカメラを用いる (XIS=X-ray Imaging Spectrometerと呼ばれる)。残りの1台が、X線マイクロカロリメーターアレーを検出器とするXRSである。

X線マイクロカロリメーター (X線ボロメーターといっても同義であるが、光子検出を行なうX線の場合にはマイクロカロリメーターの方が広く用いられる) は、グレーティング等の分散系を用いたスペクトルメーターに匹敵するエネルギー分解能と高い検出効率を同時に合わせ持つX線検出器である。一方、XRSの前に置かれるX線反射鏡 (XRT: X-Ray Telescope) は、焦点距離4.5m、直径40cmの多層薄板型の斜入射X線反射鏡で大きな有効面積と約10keVまで伸びた広いエネルギー範囲を特徴とする。このXRTとXRSの組み合わせによって、これまでにない高いエネルギー分解能と広いエネルギー範囲にわたる高い感度を実現している。表1にXRSの諸元を示す (X線反射鏡の特性は含まない)。

1998年5月現在、XRSは飛翔モデルの製作および特性試験が進められている。本稿ではXRSのX線検出器と冷却システムについて紹介する。また、開発の途中で生じた低温物理の面からも興味をもっていただければよい問題についても紹介したい。

なお、XRSは日米の研究チームの共同開発プロジェクトにより開発が行なわれている。参加機関は、日本側は宇宙科学研究所、都立大学、理化学研究所、米国側はNASAゴダード研究所(GSFC)、ウイスコンシン大学である。また国内メーカーでは、住友重機械工業 (冷凍機)、日本電気 (FW、電源など)、富士通 (デジタル回路) が参加している。

表1 ASTRO-E XRS諸元

エネルギー分解能	12 eV	(FWHM
エネルギー範囲	0.5-12 keV	(>10%)
位置分解能	0.63mm x 0.63 mm	6x6-4 画素
寿命	2-2.5年	
動作温度	65 mK	(断熱消磁冷凍機)
	1.3 K	(液体He)
	17 K	(固体Ne)
	230 K	(デュワー外表面)
重量	約420 kg	冷媒・電子回路・FWを含む
電力	60 - 80	モードによる

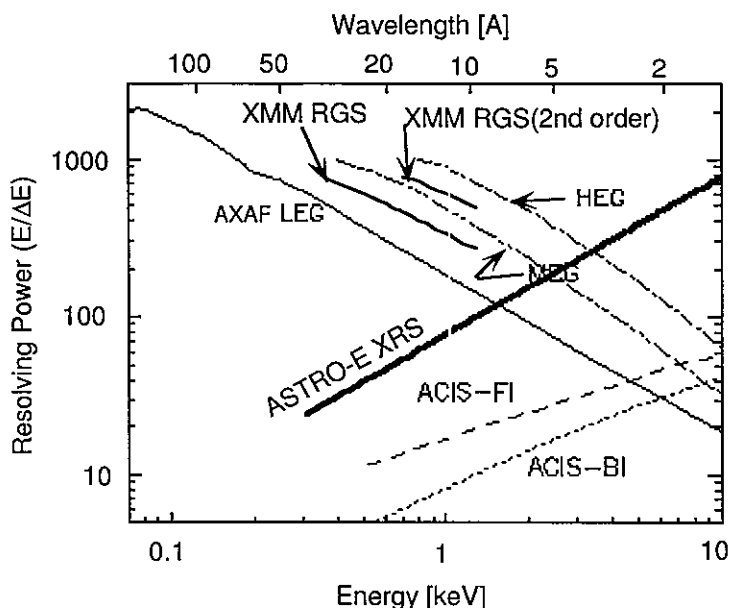


図1. ASTRO-E XRS、および同時期に軌道に上にある観測装置のエネルギー分解能（Resolving Power=X線エネルギーを分解能（半値幅）で割ったもの）比較。約3keV以上のエネルギー範囲ではXRSがもっとも優れている。

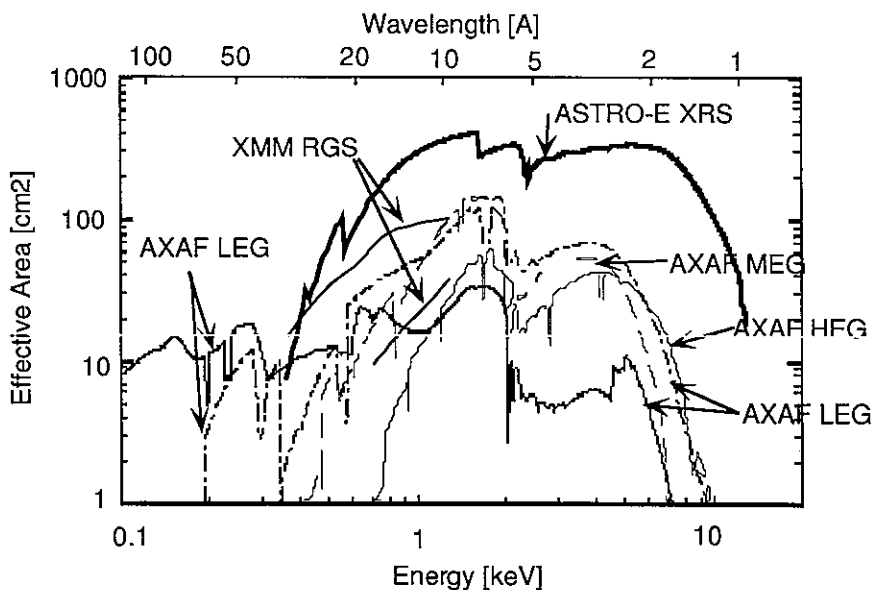


図2. 図1の観測装置について、有効面積（観測装置の幾何学的な受光面積に装置の検出効率をかけたもの）を比較。AXAF LEGは焦点面検出器として何をを使うかにより2つの線がある。

ASTRO-E XRSの特徴は、10keVまで伸びた広いエネルギー範囲にわたる高い感度と高いエネルギー分解能にある。図1と図2に、ASTRO-E XRSとほぼ同時期に活躍する予定で、かつXRSと同じように高いエネルギー分解能をめざす観測装置との比較を示した。図2の有効面積はX線反射鏡と検出器を組み合わせた特徴である。AXAF LEG/MEG/HEGは米国のAXAF衛星に搭載されるtransmission grating、XMM RGSは欧州（ESA）のXMM衛星に搭載されるreflective gratingで、どちらも分散系を用いたものである。図1にはAXAF衛星のCCDカメラ（ACIS-FI/BI）のエネルギー分解能も示されている。ASTRO-EのCCDカメラのエネルギー分解能はACIS-FIと同等である。ASTRO-E XRSは低エネルギー領域でのエネルギー分解能は分散系のAXAF HEGなどに劣るものの、宇宙物理で特に重要となる鉄のK輝線スペクトル（6-7keV）を含む約3keV以上の領域では、これら分散系を超える最も高いエネルギー分解能を持つ。また、有効面積ではXRSが感度を持つほとんどすべての領域（0.3-12keV）で他の観測装置を凌駕している。また、AXAF HEGなどの分散系のスペクトルメーターは空間的に広がったX線源に対して所定のエネルギー分解能を発揮できない。これに対し、XRSはCCDカメラのような高いイメージング能力は持たないものの、ひろがっていてもエネルギー分解能に変化はない。

XRSによるX線輝線スペクトルやX線吸収スペクトルの精密観測を通して、超新星残骸、銀河団、活動銀河核やX線連星などの熱的プラズマや光電離プラズマのプラズマ診断、天体周辺および星間空間物質の診断、これらのX線放射天体の熱的、マクロな、もしくは宇宙論的な運動の測定などを行ない、観測的な宇宙の理解に大きな貢献ができるものと期待している。

2. カロリメーター（ボロメーター）の原理

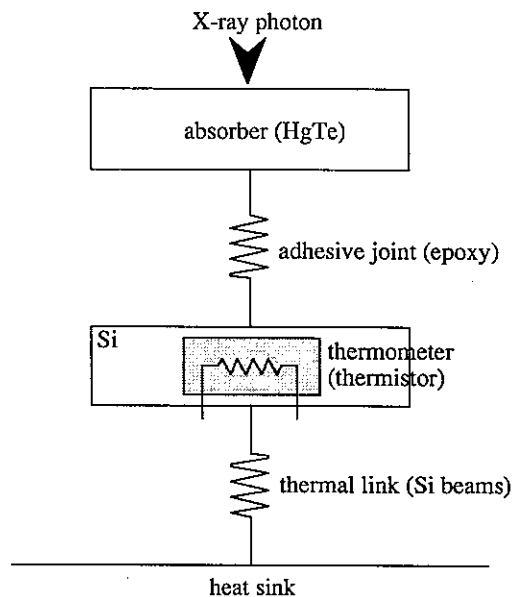


図3 X線カロリメーターの模式的な構造図

X線マイクロカロリメーターとは、入射したX線光子1つ1つのエネルギーを素子の温度上

昇として測定する検出器である ([1])。図3はX線マイクロカロリメーターを模式的に表したものである。X線光子がX線吸収体に吸収されると、吸収体の温度が数mK上昇する。温度計(サーミスタ)は熱的には吸収体から部分的に切り離されていて、吸収体が熱平衡に達した頃にその温度上昇を感知し始める。シリコンピクセルを温めた熱は、弱い結合を通してゆっくりと熱浴に流れていく。数十ミリ秒後、サーミスタは最初の動作温度に戻る。

吸収体は、X線吸収効率が高く、熱容量が小さく、かつ入射エネルギーを素早く完全に熱エネルギー(フォノン)にかえることができることが要求される。XRSでは化合物半導体であるHgTe (Mercury Telluride; 水銀テルル)を使用している。HgTeは熱容量と熱化で特に優れている。吸収体と温度計との間は、X線を吸収した場所によるレスポンスの非一様性をさけるために、熱エネルギーが温度計に流れていく前に吸収体が熱平衡に達して温度が一樣になるように熱的にある程度切り離されていることが必要である。

一方、温度計は小さい温度変化に対して高い感度を持ち、固有の熱揺らぎとジョンソンノイズ以外のノイズ(特に1/fノイズ)の可能な限りノイズの小さいものでなければならない。XRSではion-implanted silicon thermistorを採用している。不純物としては、phosphorusをboronでcompensateしている。

温度計と熱浴の間の熱リンクは、温度計を熱浴から熱的に切り離しつつ、適当な時間の後には最初の状態に復帰するようにしなければならない。XRSではマイクロマシンによるシリコンビームを使用している。熱リンクの部分の熱伝導度が、X線カロリメータの時定数を決める。

3. カロリメータの特性

素子の温度上昇 ΔT はほぼ入射X線光子のエネルギー E に比例し、

$$\Delta T \approx \frac{E}{C}$$

と書ける。厳密には入射X線のエネルギーによって素子の温度が変わり、それに伴って素子の熱容量 C が変わるため、エネルギーと温度上昇の関係は非線形性となる。素子の温度上昇を測定し入射X線光子のエネルギーを測定する。素子が定常状態に戻るまでの時定数 τ は、素子の熱容量 C と、素子と熱浴の間の熱伝導度 G の兼ね合いでほぼ決まり、

$$\tau \approx \frac{C}{G}$$

となる。サーミスターを流れる電流が温度上昇で変化するためある種のフィードバックがかかり、実際の時定数はこれよりも短くなる ([2])。XRSでは τ の値は約5m秒である。

次にエネルギー分解能は、大きくわけて次の3つの要素で決まる。素子自身の温度揺らぎ(phonon noise)とサーミスターのJohnson noiseの二つからなる検出器自身のintrinsicなnoise、サーミスター読み出し回路の初段のJFETのnoise、その他のnoise(電磁干渉などによるノイズ、熱浴の温度の揺らぎなど)である。XRSではこれらのnoiseはほぼ同等の寄与を持っている。検出器自身のintrinsicなnoiseで決まる分解能は直感的には以下のように考えることができる。素子全体の熱エネルギーは CT 、フォノン1個あたりの平均エネルギーは kT と考えられるので、フォノン数は $\sim CT/kT$ と見積もられる。フォノン数の揺らぎによる素子のエネルギーゆらぎは

$$\Delta E \sim \sqrt{\frac{CT}{kT}} kT = \sqrt{kCT^2}$$

と見積もることができる。X線光子による温度上昇は小さいのでこれがそのままエネルギー分解能の見積もりとなる。これは非常に大雑把な見積りであるが、素子の熱ゆらぎ(素子と熱浴との間のフォノンのランダムな移動)やジョンソン雑音をきちんと考慮して計算すると、

次に述べる最適フィルター処理を行なった場合にエネルギー分解能は

$$\Delta E = 2.35\xi\sqrt{kCT_0^2}$$

となることがわかる([1])。ただし、 T_0 は熱浴の温度、 ξ はバイアス条件や温度計の感度によって決まるパラメータで、2程度の値を持つ。XRSの場合、カロリメータ自身のintrinsic noiseによって決まる分解能は約4eVと見積もられる。

4. 最適フィルタを用いた信号処理

素子の温度上昇は、X線光子による温度上昇パルスのピークの値からベースラインの値を差し引くことで得ることができ、これは生データのノイズがじかに効いてしまう。時定数 τ でdecayする信号全体を用いることにより、factor 2から3のS/Nの改善を行なうことができる ([3])。

すべてのパルスは同じ形をしていると仮定し、これを $A S(t)$ とする。 $S(t)$ が規格化されたパルス波形で、 A はその大きさである。最適なパルスハイトの推定値 H は実データ $D(t)$ とパルス波形のモデルとの差を最小にするものである。これは周波数領域において

$$\chi^2 = \sum_{\omega} \frac{(D(\omega) - HS(\omega))^2}{N(\omega)^2}$$

で定義される χ^2 を最小にすることと同等である。ここで $N(\omega)^2$ はノイズのパワースペクトルである。 χ^2 を最小の解を、時間空間に戻すと、

$$H = \sum_i D(t)F(t)$$

と書ける。ここで、 $F(t)$ は、最適フィルタテンプレートで、 $\frac{S(\omega)}{|N(\omega)|^2}$ をフーリエ逆変換したものである。ノイズが白色の場合は最適フィルタは平均パルス波形と一致するが、実際のXRSのノイズはDCに向かうにつれて増加するため、最適フィルタは典型的にはパルス到着直前で負の値となる(この領域はベースラインの値を知るために重要で、パルスから差し引くために負になる)。

5. XRSシステム

図4にXRSのシステムブロック図を示す。X線検出器は、冷却システム (Dewar) の中に納められ65mKに冷却される。X線検出器の前には紫外線以上の波長の光を遮断するため5重の光遮蔽フィルターが置かれている。冷却系からとりだされたX線検出器からの信号はアナログ処理回路(CAP=Calorimeter Analog Processor)とデジタル処理回路 (CDP=Calorimeter Digital Processor) により処理される。CDPは12kHzのサンプリングレートでアナログ信号をサンプリングする。X線のイベントを検出した場合には最大2048 サンプル (167m秒分) のデジタル化した信号を用いて前出の最適フィルター処理を行なう。ACHE (ADR Control and Housekeeping Electronics) は、断熱消磁冷凍機 (ADR) のコントロールとDewar内の温度計測を行なう。XRS-PSU (XRS Power Supply Unit) は衛星のバス電源からCAP, CDP, ACHEへ電源供給を行なうDC-DCコンバーターである。ASTRO-Eの他のサブシステムのDC-DCコンバーターに比べて格段に高い安定性と低ノイズを要求されている。X線イベントによる温度上昇が完全に回復する以前に次のX線イベントがあると、高いエネルギー分解能でX線エネルギーを決定することができず、場合によってはX線イベントの検出そのものが困難になる。このため、明るいX線源を観測する場合にはDewarの前方に置かれたFilter Wheelを (FW) 用いて、検出器に到達するX線強度を下げる。FWには、なにも

filterのないthrough holeが一つ、X線エネルギーによらずにX線強度を下げるneutral density filterが3枚、低エネルギーのX線を主にカットするフィルターが2枚搭載される予定である。FDE (FW Drive Electronics)はFWを駆動する電子回路である。XRS-DEはCDP、CAP、ACHEと衛星コマンド/テレメトリー系とのインターフェースを受け持つ。TCIもFDEなどと衛星コマンド/テレメトリー系とのインターフェースを受け持つサブシステムである。

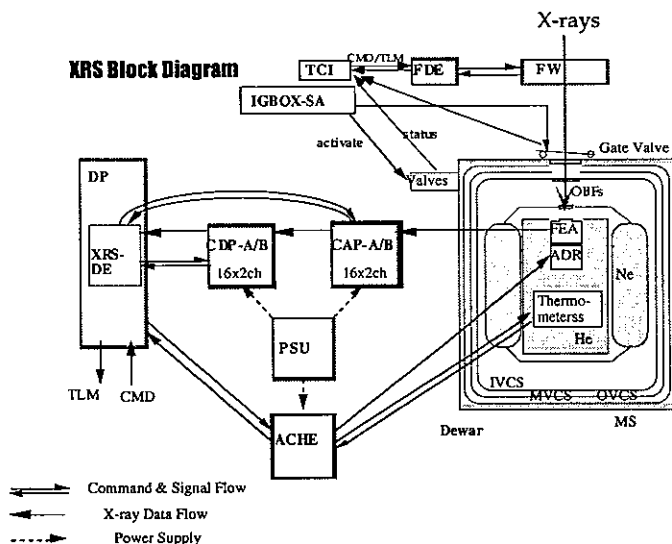


図4 XRSのシステムブロック図

6. X線検出器 (カロリメータアレー)

カロリメータアレーは、NASAゴダード研究所(GSFC)のマイクロデバイスラボで作られた0.64mm x 0.64mmの大きさの画素が6x6個並んだ2次元アレイである。図5は8μm厚の水銀テルルのX線吸収体を、シリコン基板上に作られた画素構造の上に張り付けた後の写真である。このはり付け作業は、ひとつひとつ手作業で行なっている。これらの画素の中で4隅の4個の画素には外部への電気配線を行わず、読みだしを行わない。図6に水銀テルルを張る前のシリコン基板上に作られた画素構造を示す。各素子は、幅と厚さが約10μmの4本のビーム構造で支えられ、素子自身も厚さ10μmである。素子にはイオンうち込みでつくられた二つの温度計があり電気的には並列に接続され、同じくイオンうち込みで作られた配線を通してボンディングパッドまで引き出されている。

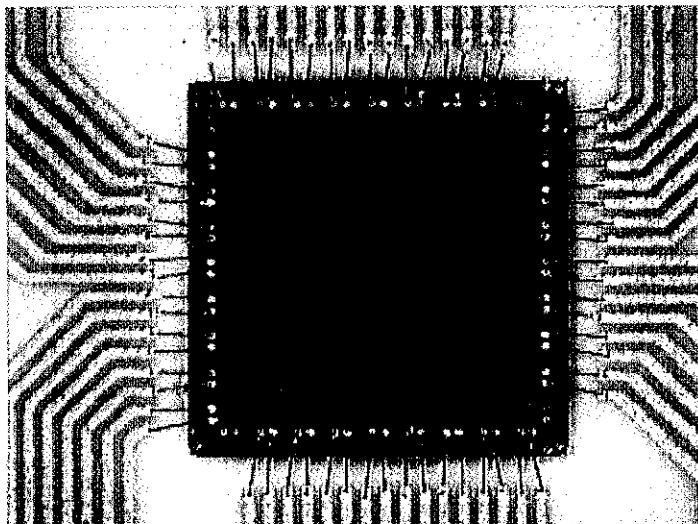


図5 カロリメータアレイを上（X線入射方向）から見た写真。X線受光部全体（6x6のHgTeの吸収体）の大きさが約3.8mm角である。

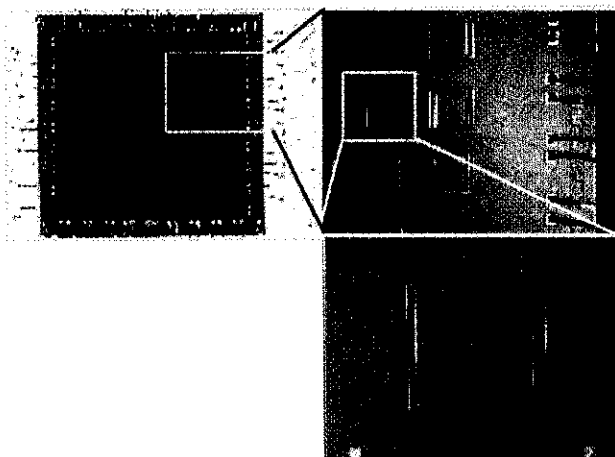


図6 シリコン基板上に作られたカロリメータ画素構造。幅・厚さとも約 $10\mu\text{m}$ の4本のビーム構造で厚さ $10\mu\text{m}$ の素子が支えられている。素子にはイオンうち込みでつくられた二つの温度計があり電気的には並列に接続されている。この素子の上に、手作業でシリコンのスペーサーをエポキシで糊付けし、さらにその上にHgTeの吸収体を糊付けする。

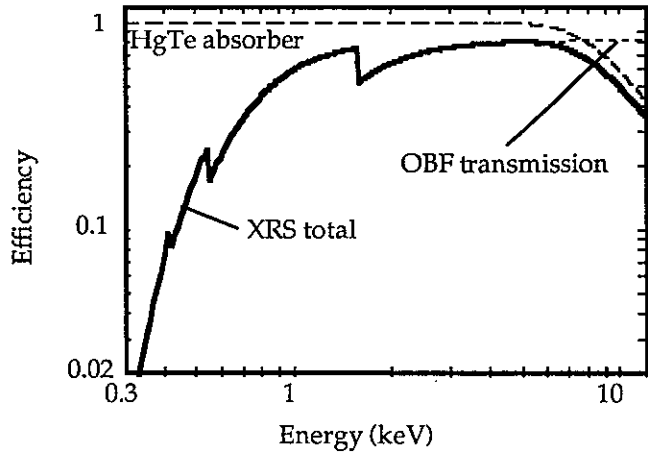


図7 XRSの検出効率。XRSの検出効率は光遮蔽フィルター（OBF）のX線透過率とX線吸収体である厚さ $8\mu\text{m}$ のHgTeのX線吸収効率の積で決まる。図2の有効面積はこれにX線反射鏡の有効面積がさらにかかったものである。

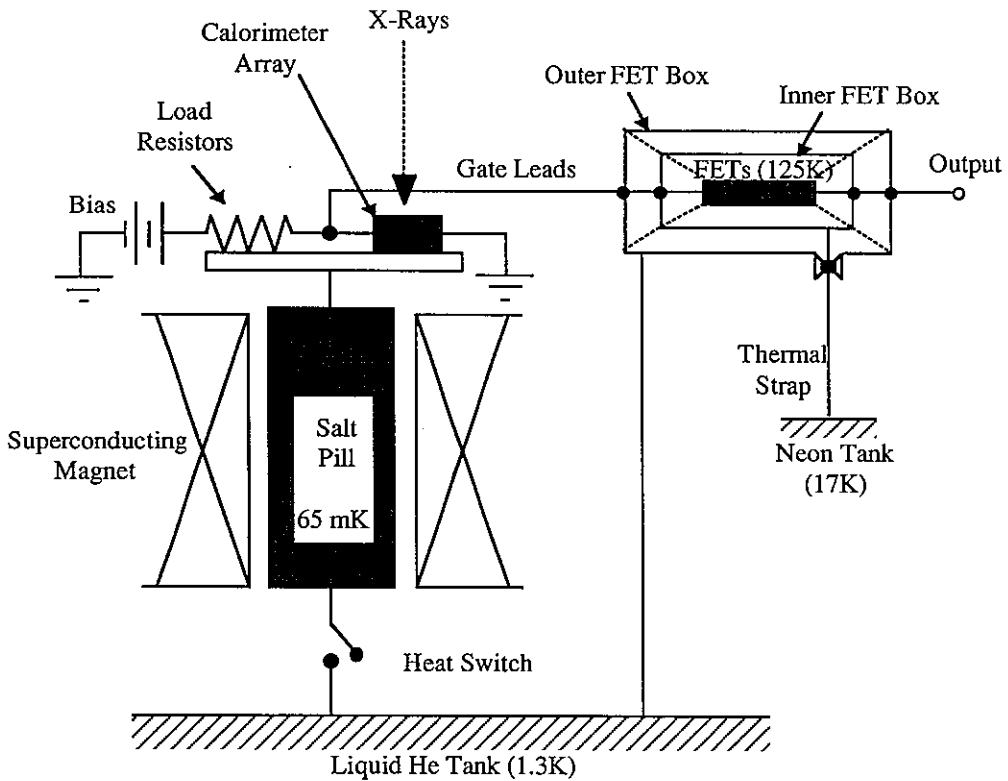


図8 FEA(Front End Assembly)とADR(断熱消磁冷凍機)の模式図

XRSのX線検出効率は、X線吸収体である水銀テルルの吸収効率と、検出器前面にある光遮蔽フィルターのX線透過率で決まり図7に示されるようなエネルギー依存性を示す。

カロリメータアレーのすぐ後側にはシリコンPINダイオードで作られた荷電粒子イベント検出用のアンタイコインシデンス検出器が置かれる。カロリメータにバイアス電流を供給するためのバイアス抵抗、読み出し用のJFETは32個の画素それぞれに独立に置かれる。カロリメータアレーはこれらの部品ともに、FEA(Front-End Assembly)と呼ばれるユニットに収納され、冷凍機に取り付けられる。図8にFEAおよびADR(断熱消磁冷凍機)部分の模式図を示す。JFETはヒーターにより加熱され120Kで動作する。その熱は17Kの固体ネオンおよび1.3Kの液体ヘリウムに捨てられる。

7. 冷却系

XRSでは、限られた重量・容積で所定の温度と2年の軌道寿命を実現するため、固体ネオン、液体ヘリウム、断熱消磁冷凍機の3段の冷凍機を採用している([4])。冷却系全体は、XRSデューワーと呼ばれ、メインシェル(Main Shell=MS)とよばれる高さ・直径とも約1mのアルミ製の円筒の断熱真空容器に入れられる。図9にXRSデューワーの断面図を示す。

メインシェル表面の約1/4は衛星から直接宇宙に露出し、放射冷却により衛星軌道平均230K以下の温度に冷却される。固体ネオン約120ℓは、ドーナツ型のアルミ容器であるネオンタンクに入れられ、GFRP製の12本のサポートストラップによりメインシェルから吊られている。ネオンタンクは、昇華ネオン、気化ヘリウムガスにより冷却された3重のVapor Cooled Shield(VCS)でかこまれ、さらにその間には放射による熱伝導を切るための20から50層のMulti Layer Insulator (MLI)が施されている。ネオンタンクの前後には、ネオンタンク内側に置かれるヘリウムインサートへの放射による熱入力を切るためネオンシュラウドが置かれネオンタンクと同じ温度に冷却される。

固体ネオンは、液体ヘリウムの寿命を延ばすための熱浴として使用できるような十分低い温度を持ち、かつ単位質量当たりの熱容量が大きいということで選ばれた(以上の要求のみから言えば最良の物質は固体水素であるが、これを使用するには特別な地上設備を必要とする)。ネオンは1気圧中では約27Kで液化する。XRSでは、ネオン注入用の配管を通し、液体の状態で作入する。ネオンタンクの底にはネオン冷却用の液体ヘリウム配管が施されており、ここに液体ヘリウムを流すことによりネオンを固化する。ネオンは約24.5Kで固化する。固化すると体積が減少するため所定の量(120ℓ)のネオンを固化するためには、液体ネオンの再注入と固化が必要である。ネオン冷却用の配管がタンク底に布設されているのは、ネオンを下から固化することによりネオンの体積減少で固体中に空隙ができるのを防ぐためである。軌道上では、ネオン排気用バルブ(図10)を開くことにより約1torrに減圧され、固体ネオンは約16Kに冷却される(ネオンタンク表面温度は17K)。ネオンタンク内部には、ネオンタンク表面と固体ネオンの間の熱伝導を確保し、かつ、固体ネオンをタンク内部に固定するために体積充填率3%の発泡アルミニウムが充填されている。

ネオンタンクを吊っているサポートストラップには、ロケット打ち上げ時の振動および衝撃により1本あたり約1.7トンの力がかかる。一方、固体ネオンへの熱入力の約40%はサポートストラップを通しての熱伝導が占めており、サポートストラップの断面積はできるだけ小さくしたい。このため、サポートストラップへの衝撃力を軽減するためにメインシェルは24枚の皿バネを装着したショックアブソーバーを通して衛星取り付け面から取り付けられている。

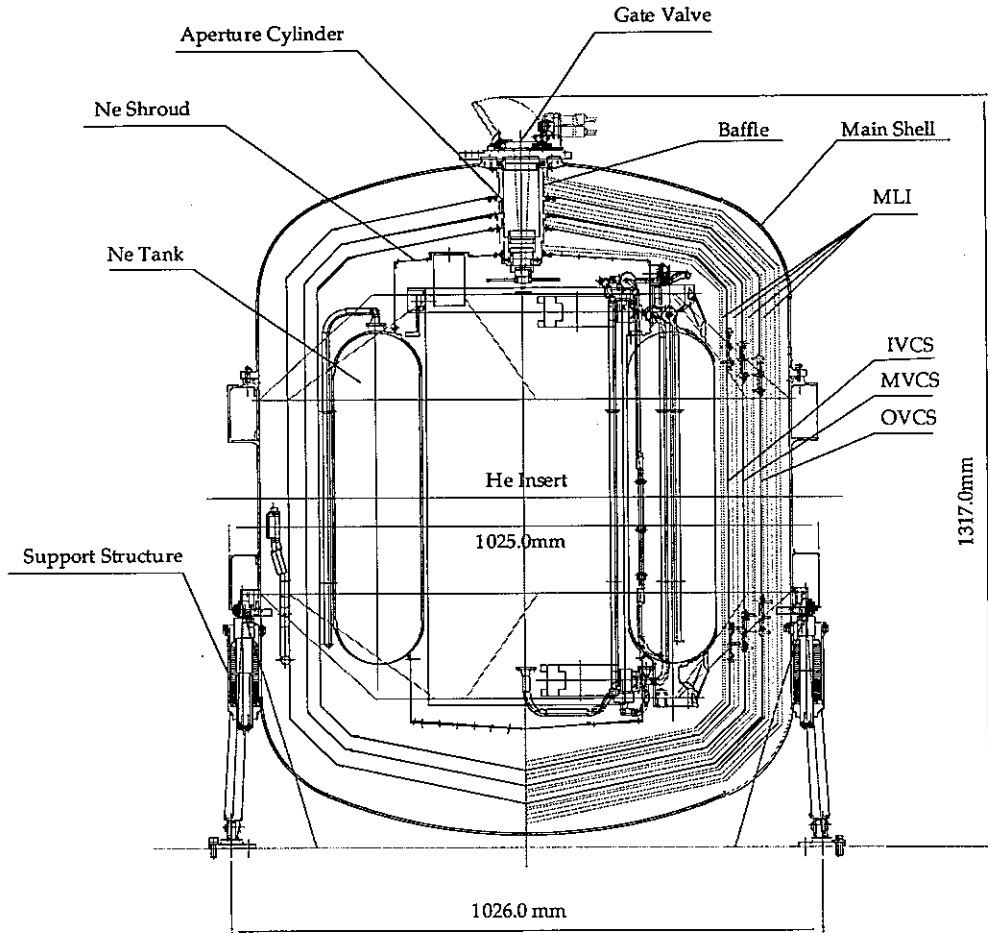


図9 XRSデュワーの構造。横から見た断面を示す。X線はGate Valveより入射しApature CylinderおよびNe Shroud、FEAに取り付けられた光遮蔽フィルターを通して検出器に入射する。検出器はHe Insert上部に取り付けられている。

5枚の光遮蔽フィルターのうち3枚はアパーチャーシリンダーと呼ばれるアルミナFRP製の構造に固定されている。これは、主にMLIから発生すると予想されるコンタミネーション物質（主に水）がフィルターに付着するのを防ぐためである。X線入射口のゲートバルブは打ち上げ後10日程度たってから解放される予定である。

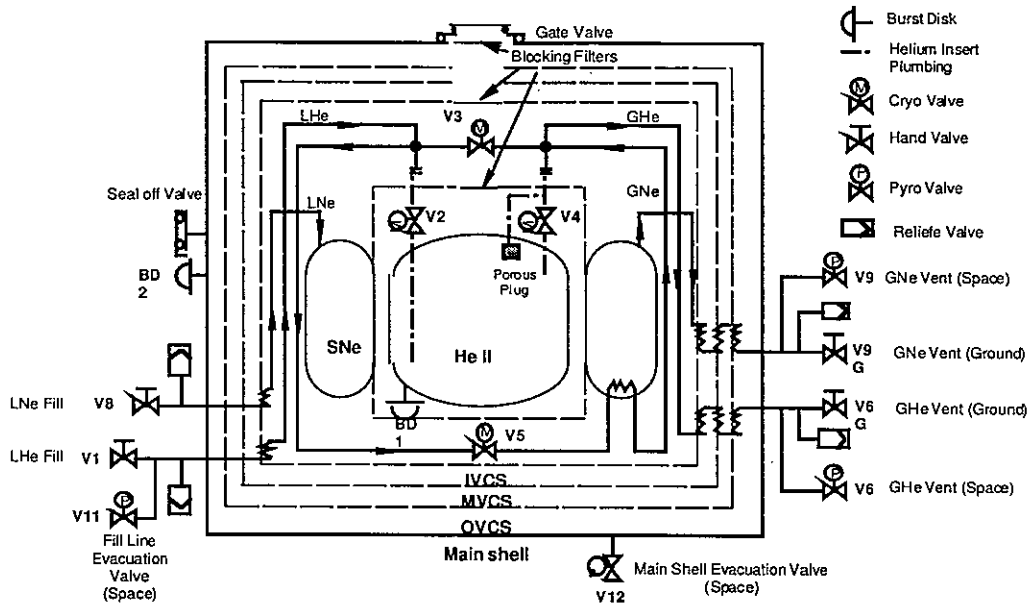


図10 ネオンおよびヘリウムの配管系。Pyro valveは点火系を用いたアクチュエータにより軌道上で解放するバルブである。Cryo valve(V2-V5)はステッピングモータで駆動するバルブで、地上設備を用いて開閉する。Cryo valveは全て閉じて打ち上げられる。

液体ヘリウムタンク以下の構造体をヘリウムインサートと呼んでいる(図11)。これは、ネオンタンクとのインターフェースからネオンタンクと同様にGFRP製の12本のサポートストラップで吊られている。ヘリウムタンク自身の容量は31ℓであるが、軌道上での初期液体ヘリウム量は18から26ℓと見積もられている。液体ヘリウムは、ロケット打ち上げ数時間前に、約2K程度まで減圧し注入される。注入後、さらに約1.5K程度まで減圧され打ち上げられる。ロケット打ち上げ時には、3段目ロケット燃焼中にヘリウム排気弁を解放しporous plugを通してHeを減圧し、1.3Kの温度を得る。porous plugは、超流動ヘリウムの熱機械効果を利用した液体と気体の相分離器である。3段目燃焼中にヘリウム排気弁を開くのは、porous plugが液体ヘリウムにさらされないうちに、ヘリウムガスの排気を開始しporous plugに正しい方向の温度差を与えるためである。

ヘリウムタンク上部には、断熱消磁冷凍機(ADR)をおさめるための円筒状のくぼみがあり、その中に超伝導コイルが置かれ、さらにその内側にADRのsalt pillがケブラーワイヤーで吊られている。salt pillとしては鉄ミョウバンの結晶約700gが用いられている。超伝導コイルの最大磁場は1.65テスラである。salt pillの再磁化の際にヘリウムタンクに熱を逃がすため、ヘリウムガスを用いた熱スイッチがsalt pillとヘリウムタンクの間には置かれている(図8参照)。ADRの再磁化には約1時間を要する。一方、ADRが所定の温度(65mK)に達してから再磁化を必要とするまでの時間(保持時間)は24時間以上である。

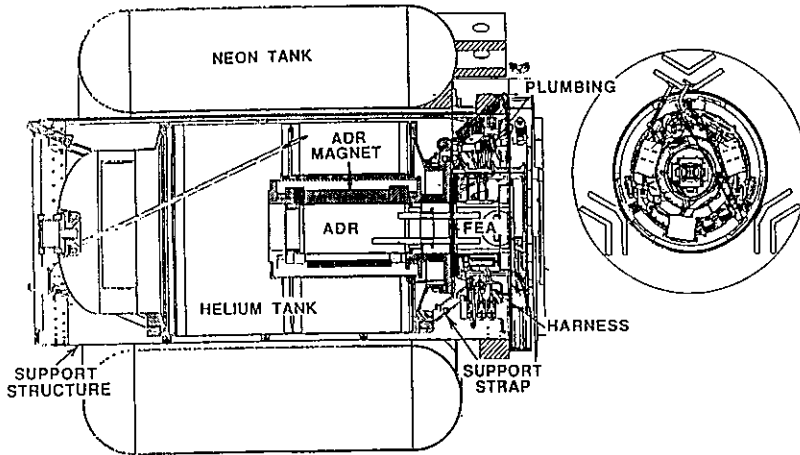


図11 ヘリウムインサートの構造。ヘリウムインサートはネオンタンク上面に取り付けられた指示構造から上下12本のGFRPのサポートストラップで吊られている。ヘリウムタンクの内側には断熱消磁冷凍機が置かれ、その上にX線検出器部（FEA）が置かれる。

8. 固体ネオンの膨張と収縮問題

固体ネオンは、XRSネオンデューワーを衛星に組み込む前に注入固化される。このため、衛星の組み立て試験の開始から打ち上げまでの約10ヶ月の間、固体ネオンを保持しておくことが必要となる。このために、約4週間に一度の割り合いでネオン冷却用配管に液体ヘリウムを流し、ネオンの温度を8Kから23Kの間に保持する。冷凍機的设计を進め、その设计を実証するためネオンデューワーのプロトタイプモデルの製作を進めていた1996年7月、ハッブル宇宙望遠鏡の赤外線カメラとして開発されていたNICMOSに生じた固体窒素の膨張により生じた問題を耳にした。同様の問題は固体ネオンの膨張でも生じ得る。固体の線膨張率は、大雑把にいて、温度変化とその物質の融点の温度の比でスケールできる。したがって固体ネオンの線膨張係数はネオンタンクのアルミニウムに比べて約2桁大きいことになる。このため、8Kと23Kの熱サイクルをかけると、ネオンタンクに塑性変型を生じてしまう可能性がある。たとえば、冷却時にはネオンタンクの内筒を固体ネオンが締め付ける。一方、冷却後にはネオンとタンクの外筒の間には隙間ができるはずであるが、サポートストラップからの熱入力により固体ネオンには温度差が生じるため、タンク中央部分に固体ネオンが移動し、この部分では隙間が埋められるであろう。その状態で温度が上昇するとタンクの外筒を外に押し広げることになる。こういった変型が塑性変型領域まで達すると、変型が熱サイクル毎に蓄積してゆくことになる。実際、ハッブル宇宙望遠鏡の赤外線カメラNICMOSの場合には、地上試験時に熱サイクルをくり返すうちに冷凍機内に置かれた赤外線検出器の位置が数mmずれてしまった。この位置のずれは検出器の位置を微調する機構の範囲内であったため、NICMOSは1997年2月にスペースシャトルによりそのまま

ハッブル宇宙望遠鏡に据え付けられた。しかし、その後、固体窒素タンクの変型はさらに進み、一番内側のvapor cooled shieldと固体窒素タンクが熱的に接触してしまった。NICMOSは観測装置としてはうまく働き見事な赤外線画像を送ってきているが、冷媒の寿命は予定よりも大幅に短くなってしまった。

固体ネオンを用いるXRSでも同様の変型が生じる可能性があり、これはNICMOSよりも悪い結果に至る危険すらある。固体ネオンを宇宙で冷媒として用いるのはXRSが初めてであることもあって、この問題の検討と解決には長い時間と労力を要した。

固体ネオンの線膨張係数は文献中に測定値があり、10-20K程度の温度では、約 $1 \times 10^{-3} \text{ K}^{-1}$ 程度とされている(たとえば[5])。つまり10Kで約1%の変型を生じる。これはアルミ合金の線膨張係数よりも2桁大きい。一方、文献には固体ネオンを密閉容器中で圧縮した実験があり(たとえば[6])、これからcompressibilityが求められている。これにPoisson比0.3を仮定すると、ヤング率を上記の温度範囲で60から110 MPa程度と見積もることができる。この値を用いて、固体ネオンがyieldしないものとしてモデル計算を行なうと、8Kから23Kの熱サイクルでネオンタンクに大きな塑性変型が生じることがわかった。この塑性変型によりネオンタンクを支えているサポートストラップの張力に変化が生じると打ち上げ時の振動衝撃に耐えられなくなる危険性もある。しかし実際にはNeもどこかで塑性変形するはずである。NICMOSの固体窒素タンクの場合にはタンクを100%固体窒素で充填して使用していた。これに対し、XRSのネオンタンクは、所定の120ℓを充填しても、上部に約10ℓの隙間が残る構造になっている。このため固体ネオンに圧縮力がかかっても、固体ネオンはその力に垂直な方向に逃げるができる。アルゴンとクリプトンについては塑性変型と引っ張り強度の測定があり、これらは”寒い日のバターと同じ程度の強度である”、と表現されているくらいに柔らかい[7]。しかし、ネオンについての測定は文献中に見つけることができなかつた。また、XRSでは固体ネオンを発泡アルミ中で固化しているため両者を合わせた強度が必要である。そこで、固体ネオンの強度測定をMaterials Research & Engineering社(MRE, Colorado, USA)に依頼して行なった。

実験は、直径1インチ、高さ1インチの円筒形の発泡アルミあり/なしの両方の固体ネオンの試料を製作し、これを側面がfreeの状態で上下から圧力をかけて変形量と圧力の関係を測定する、という方法で行なった。固体ネオンの温度を8K, 17, 19, 21, 23Kの5通りである。図12に、8Kと19Kにおける測定結果を示す。これらの測定の結果、発泡アルミありの場合の平均81psi (0.56MPa=約5気圧)で、固体ネオンのみ場合には平均23psi (0.16MPa=約1.4気圧)の小さな圧力で比例関係からずれることがわかった。ただし8Kの場合には、比例関係からずれたあとも広い範囲で応力は変形量とともに増大する。図12をみると大変大きな変形量を与えられていることがわかるが、このとき固体ネオンは図13に見られるような形に変形をし、(発泡アルミがある場合はこれとともに)外側に大きく膨らんでいた。また、変形を与える速度を変化させる、変形を与える途中で動きを止め応力が緩和するのを見る、という実験も行なった。XRS内の固体ネオンが冷却・昇温するような長いタイムスケール(数時間から1ヶ月)では、これらの要素の影響は無視してよいこともわかった。

表2に、この実験から得られた固体ネオンのパラメーターをまとめる。

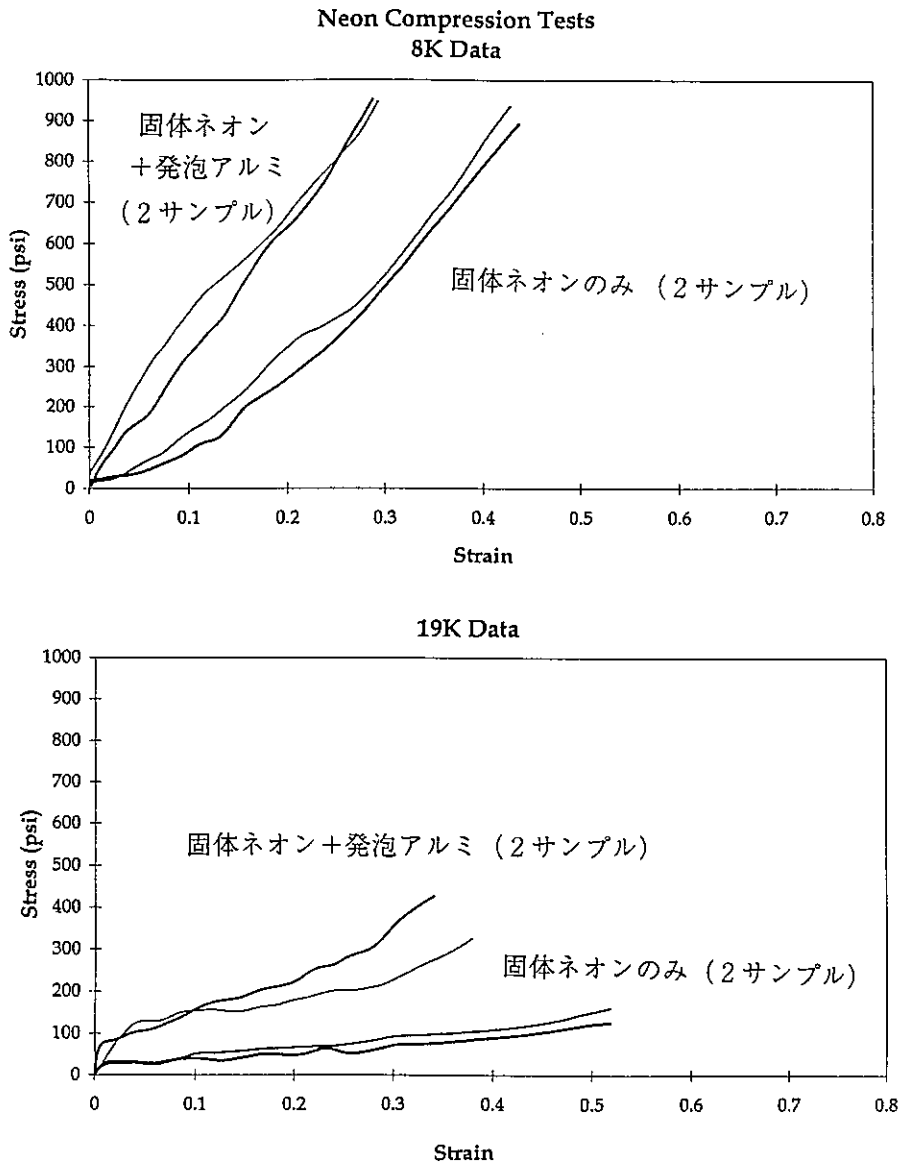


図12 測定された固体ネオンの変型量と圧力の関係を8Kの場合と19Kの場合について示す。それぞれ試験サンプルは、固体ネオンのみのサンプル2つ、発泡アルミ中でネオンを固化したサンプル2つ、の計4個づつである。

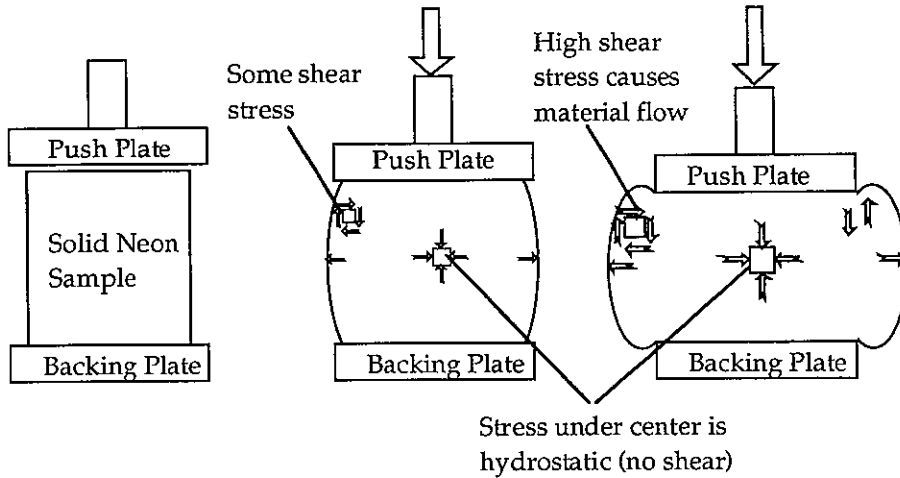


図13 固体ネオンサンプルの圧縮後の変形の様子

表2 実験で得られた固体ネオンおよび固体ネオン+発泡アルミニウムの力学的性質

SNe only		
Elastic Modula	6.8 MPa (23K) - 16 MPa (8K)	
Yield Strength	0.16 Mpa (average of 8-23K)	
SNe + foam Al		
Elastic Modula	25 MPa (23K) - 99 MPa (8K)	
Yield Strength	0.56 MPa (average of 8-23 K)	

以上の結果得られた固定ネオンの機械的な性質を仮定し、再度、固体ネオンの冷却・昇温におけるネオンタンクの力学的な変形のモデル計算を行なった。（計算は、Mega Engineering社（Maryland, USA）と、ネオンデュワーの設計と製作を担当している住友重機械株式会社が行なった。）このモデル計算の結果は、タンクの変形量は弾性変形の範囲内で0.3mm程度になると予想している。

以上の固体ネオンの物性の測定とモデル計算を確認し、最終的に現状のネオンタンクの設計を確認するために、プロトタイプデュワーを用いた約4ヶ月にわたる熱サイクル試験を行なった。ネオンタンクに所定量のネオンを固化充填したあと、2方向からX線写真をとることによりネオンタンクの外径筒外壁のデュワーメインシールドに対する位置を0.2mm程度の精度でモニターしながら、4回の熱サイクルをかけた。その結果、ネオン温度が8Kと18Kの間にある間に0.3mmから0.5mmの変形を生じるが、温度が18K以上に上昇すると元に戻る、すなわち変形量は弾性変形の範囲を超えていないことがわかった。以上の結果は、モデル計算の予想とよく一致している。最後に、QT（Qualification Test）レベルと呼ばれる、実際の打ち上げで予想されるレベルに比べて2倍高いレベルの振動・衝撃試験を行ない打ち上げ時の機械環境への耐性に影響を与えるような変形は生じていないこと、特にX線写真では測定できない内円筒側面に大きな変形を生じていないことを確認した。

9. XRSの現状と今後の予定

X線検出器部を含めたヘリウムインサートは本年初めに一旦組み上げられ、断熱消磁冷凍機による冷却試験、X線モノクロメーターを用いた検出器較正実験がNASAゴダード研究所でおこなわれた。図14に、X線モノクロメーターを用いた試験で得られたX線スペクトルデータの例を示す。このスペクトルには、 Fe^{55} 放射線源からのマンガンの K_{α} 、 K_{β} 線、X線モノクロメーターによって単色化されたX線発生装置の鉄ターゲットからの K_{α} 線が見える。この中で、単色化された鉄からの K_{α} 線が最も細く、XRSのエネルギー分解能をよく表していると考えられる。これからエネルギー分解能は画素ごとに多少のばらつきがあるが、FWHMで10から12 eVであることがわかった。これに対し、マンガンの K_{α} 線のXRSのスペクトルは有意に広がっており、これは理論から予想される $K_{\alpha 1}$ (5.89875 keV)、 $K_{\alpha 2}$ (5.88765 keV)の2本の線スペクトルで強度比を含めてよく説明できる [8]。 K_{β} 線はさらに多くの線スペクトルからなっているはずである。

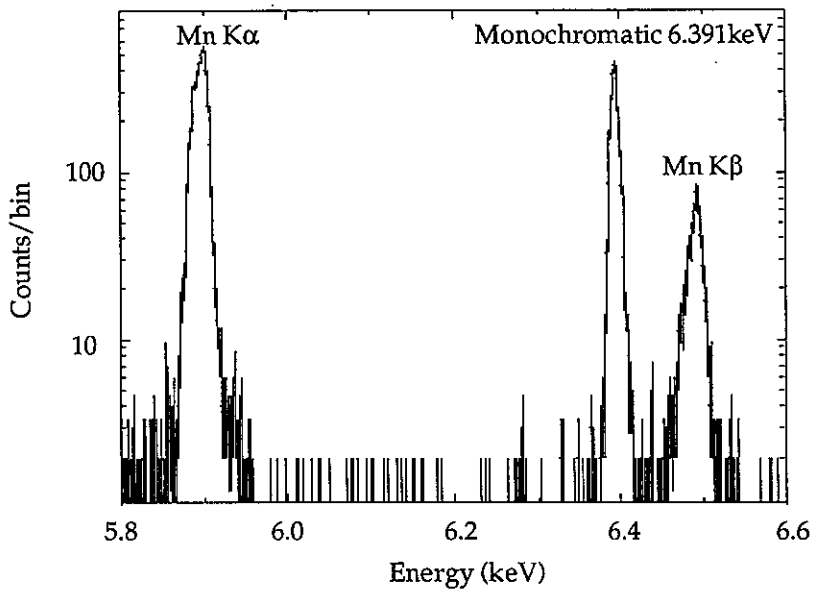


図14 XRS検出器較正実験で得られたX線スペクトルの例。5.6keVから6.6keV（マンガンの K_{α} 、 K_{β} 線、鉄の K_{α} 線のところを拡大して示してある。モノクロメーターで濾された鉄の K_{α} 線はXRSの分解能を表しているが、マンガンの K_{α} 、 K_{β} 線は複数の線スペクトルの重ねあわせであり、有意に広がっている。

ヘリウムインサートは今年(1998年)の夏頃にXRSデュワー内に組み込まれる予定である。これに続いて、XRSデュワーの最終組み立ておよび試験が来年3月頃まで行なわれ、その後、衛星の総合試験（衛星の組み立て、動作試験および熱機械環境試験）に供されることになる。ヘリウムインサートが、XRSデュワー内に組み込まれ、デュワーの上半分の部分のMLIが縫い合わされ閉じられると、XRSデュワーの作業の後戻りは事実上不可能な状態になる。このため、今後の作業で問題が生じないようにヘリウムインサートの組み込みま

でに各部分の十分なQualificationを行なう。2000年1-2月期の打ち上げをめざして、最終組み立てと試験の長い日々が続くのである。

謝辞：XRSはプロジェクトに参加する各機関／企業の関係者の大変な努力によりすすめられている。この場を借りてお礼を申し上げたい。また、この本稿で取り上げた内容に関して、特に以下の方々に感謝の意を表したい。小川原教授、井上教授（宇宙科学研究所）、京谷さん、平林さん（住友重機械工業株式会社）、Dr. Kelley、Dr. Stahle、Dr. Gendreau、Dr. Volz（現BASD）、Mr. Gonzalez（NASA/GSFC）。

参考文献

- [1] Moseley,S.H., Mather,J.C., and McCammon,D. 1984, J.Appl.Phys. 56, 1257.
- [2] Jones,R.C 1953, Journal. of Opt. Soc. of America, 43 1.
- [3] Szymkowiak,A.E., Kelley,R.L., Moseley,S.H., and Stahle,C.K. 1993, in Fifth Intl. Workshop on Low Temperature Detectors, Bekeley CA.
- [4] Voltz,S.M., Mitsuda,K., Inoue,H., Ogawara,Y., Hirabayashi,M., Kyoya,M., 1996, Cryogenics 36, 763.
- [5] Batchelder,D.N., Losee,D.L., and Simmons,R.O. 1967, Phys Rev. 162, 767,
- [6] Stewart, J.W. 1955, Physical Review, 97, 578.
- [7] Bowden and Rowe 1955, Proc.Roy.Soc. A228, 1. この表現は Venables,J.A. and Smith,B.L. 1977, in Rare Gas Solids Vol II, Ed. by Klein and Venables, Academic Pressの p652 に引用されている。
- [8] Moseley,S.H., Juda,M., Kelley,R.L., McCammon,D., Stahle,C.K., Szymkowiak,A.E. and Zhang,J. 1992, in Proc. ESA Symposium on Photon Detectors for Space Instrumentation (ESA SP-356)

回転クライオスタットと超流動量子渦科学の基礎研究

----- 多孔質ガラス中のヘリウム薄膜の2次元-3次元超流動転移と

量子渦のダイナミックス -----

物性研究所 福田宗行, 久保田実

(内線96-5211)

(kubota@ult.issp.u-tokyo.ac.jp)

1. はじめに

超流動や超伝導は、巨視的な物体の性質が量子力学的'波動関数'で記述され、「巨視的量子現象」と呼ばれる。例えばHe原子やクーパ対の超流動回転流や、渦は、量子化され、この記述にプランクの定数 h が常に登場する[1]。この量子渦の振る舞いが、系の次元性、例えば2次元とか3次元とか、と絡んで超流動や超伝導の性質の多くを支配している。制御された量子渦を超流体の中につくり出す装置が、

回転する低温装置、回転クライオスタットである。本稿はわが国で初めての回転クライオスタット(写真1)による量子液体研究の始まりを紹介するものである[2]。この装置は希釈冷凍機温度あるいはそれ以下の温度で働くものの中では世界最高速迄の回転状態で精密測定ができる。超流動についての実験的研究の歴史が浅く、やりたくてもできなかった1960年代70年代に活躍された大先輩の先生方のお話を伺っていた筆者の一人が、約10年前にこのような活動の準備を始めたのであるが、今、ようやく技術的困難を乗り越えて幾つかの面



写真1 世界最高速の毎秒1回転の速度で回転する回転クライオスタット

白い結果の始まりをご紹介できるようになった。その内容が副表題の「多孔質ガラス中のヘリウム薄膜の2次元-3次元超流動転移と量子渦のダイナミクス」についてである。

電荷を持たないヘリウムの超流動研究には、音波や、粘性率測定、超流動密度測定などに、電荷を持った系とはかなり違った手法が必要とされる。我々は、これまで高感度捻(ねじり)振り子による測定[3]と、超流動流れを熱的手法で作成し、超流動流速の関数として超流動流の振る舞いを観測する「有効熱伝導率法」[4]を研究手段とし、固体表面に吸着させた数原子層程度までのHe薄膜の超流動及び量子渦系の研究をしてきている。

写真のこの装置の特色は、高速回転と、高精度の回転と温度制御で、どちらも、 10^{-4} の精度が得られることを報告している[5]。これは、独自に開発したジュールトムソン予冷稀釈冷凍機[6]と、高精度の回転架台によって実現されている。こうした技術的基盤の下に、回転下で、静止下と違わぬ或いはそれ以上の高精度での捻り振り子法による超流動実験が出来るようになった。以下、具体的に述べたい。が、ご理解いただくために若干の前置きをさせていただこう。

尚、世界最初の回転超流動実験は、1950年代にOsbornによって行われた。超流動とは何か?という議論の中でランダウが超流動を説明する ^4He 中の素励起の分散関係を予言し、「ランダウの臨界速度以下では、超流動が、粘性の全くない流体であり、容器を回転しても液体は静止している」ことが主張されていた。これが本当かどうかを調べるのがOsbornの回転実験であったが、回転容器中の超流動Heの液面は常流体のそれと変わりがなかった。即ち超流動液体ヘリウムは容器と一緒に回転しているのが見られた。これは後に、量子渦糸の存在で説明される事になる。この例が示すように、回転場下の超流動実験は、大方の予測とは、大いに異なる現象を見出す歴史の連続であるように筆者には思われる。

回転する超流動容器の実験は絶対温度1K程度までは、クライオスタット自体は静止した状態で、容器のみを回転させて行われていることが多い。それ以下の温度での研究には、稀釈冷凍機など ^3He を使う必要がある。より低温ではいっそう冷凍能力が小さくなるので、クライオスタット全体を回転させる事が一般的である。回転クライオスタットは、米国のDonnellyのグループ(オレゴン)、Glaberson(ラトガース現イスラエル),Packard(バークレー),Reppy(コーネル),の各グループで建設され、後者2者と欧州のヘルシンキ工科大、マンチェスター大の物などではp波クーバー対から成る超流動 ^3He の超流動と渦状態が研究されている。現時点で世界で数台が稼働している。

2. 稀釈冷凍機温度で起こる ^4He 薄膜の超流動転移

超流動が研究されだした古い時代から非常に薄いHe薄膜が超流動を示すことが知られていた。が、この超流動の性質が、バルクのHeの超流動と大変異なることがKosterlitz - Thoulessの理論的研究[7]によって明らかにされたのは、1972年以降である。量子化した渦・反渦の対の形成によって、長距離相関を保つというこの超流動のメカニズムで2次元独特の超流動転移が説明された。この超流動の特徴の一つは、膜厚、(或いは膜の密度と言うべきか)に比例した転移温度と超流動密度を持つことで、厚みの調整で2K近傍からミリケルビンまでその転移温度が変えられることで

あろう。従って、 ^4He の超流動であるが稀釈冷凍機温度からが主要な研究温度範囲となる。1原子層の厚みの He が超流動になるのは、約1Kであり、10分の1原子層の He 薄膜が超流動になるのは約100mKと考えて大きな間違いはなかろう。10分の1原子層とは一体何のことかとお思いの方もあろうかと思うが、これは、低温になる程 He 原子のドブロイ波の波長が伸びていくことを考えれば、その重なりが出来るあたりで超流動が起こると考えれば理解できる。更に、希薄にして行く事で希薄ボーズ粒子系を作る事が出来ると考えられている[8]。今後の研究によって「ボーズ凝縮と超流動との関係」を議論する事のできる系の一つであろう。

厳密なことを言うと、様々な非結晶性固体表面に吸着される He 原子の、はじめのおおよそ1.5ないし2層に相当する He は、超流動性を示さない。その上に形成される薄膜が超流動になると考えられており、上の議論はこの超流動膜についての議論である。この非超流動膜が、どの様になっているかは、未解明の大変興味深い問題である。観測手段が、あまりなかった時代には、固体相と考えれば済ます事もできたが、それでは済まなくなってきたいて、興味深い現象が起こっているようである。

大変理想的な、2次元系から出発して、3次元の超流動を人工的に作り出し、量子渦系の基礎を研究しようと言うのが、次節の話題であり、実際に我々が取り組んでいる系である。

3. 多孔質中の He 薄膜の超流動

3次元の超流動、超伝導は、大局的にボーズ粒子 ^4He 原子或いは、電子や、 ^3He 等のフェルミ粒子のクーバー対のボーズ凝縮と絡んだ現象と理解することが出来る。ボーズ凝縮は3次元の系で起こるが、2次元の系では起こらないと考えられている。そこで、系の次元性と、超流動特性、特に量子渦(ボルテックス)のダイナミックス、そして超流動密度の温度依存性などを2次元性と3次元性を合わせ持ち、これらを調節可能な系で研究する事が極めて重要となる。アルカリ原子のレーザー冷却によるボーズ凝縮に関する研究でも系の次元性と量子渦について盛んに議論されているが、実験的にはまだまだ多くの課題があると聞いている。我々は、孔径が揃っていて、

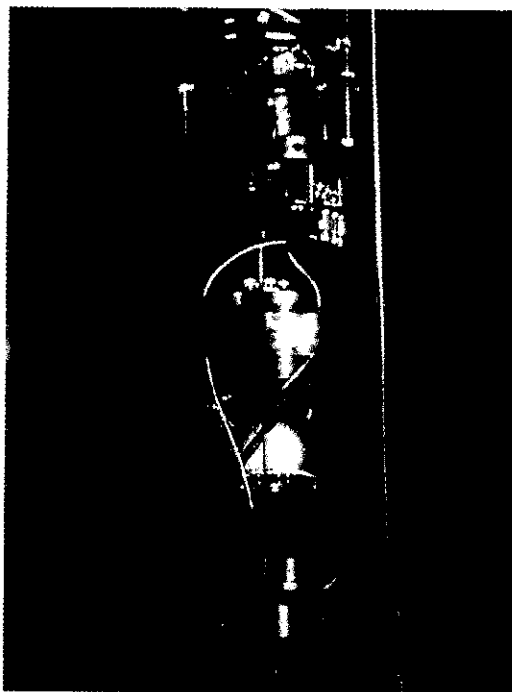


写真2 高感度捻り振り子は、稀釈冷凍機の混合室からぶら下がった、2つの銅のブロックと細いステンレスパイプからなる「メカニカル・フィルタ」の下端に取り付いている。その周辺に駆動用、観測用の電極が配置されている。

50から100,000オングストローム程度までの多孔質ガラスを基板に用い、その多孔質表面に吸着させた単原子層前後のHe薄膜の超流動特性を研究してきている。薄膜の2次元性と3次元的つながりが孔径によって調節できる系である。

2次元超流動薄膜の特色の一つは、その超流動転移温度 T_c が、膜の厚みに比例する事は述べたが、更に2次元超流動は、「量子化した渦・反渦の対の形成によって、長距離相関を保つ」という超流動のメカニズムに起因する独特のエネルギー散逸が、 T_c 近傍でのその交流応答に現れる[9]。即ち、捻り振り子のQ値の負のピークとして観測される。

一方、超流動の3次元の性質は、3次元渦糸の存在、超流動転移に伴う比熱ピークの存在、超流動3次元巨視的相関を壊す臨界速度の存在が議論されてきた[4,10]。

今回紹介する結果は、いずれも孔径1ミクロンの基盤上のHe薄膜についてのものであるが、超流動転移温度の孔径依存性を調べる研究結果[3]から、捻り振り子法で見られる超流動転移温度は孔径に依存しない孔径領域にある。即ち、転移温度 T_c に関しては平らな膜の応答と等しくなる。

4. 高感度捻り振り子実験

我々が、超流動特性と量子渦糸のダイナミックスの研究に多用しているのが、表題の高感度捻り振り子を用いた実験(写真2)である。これは、捻り棒の先に、試料を入れた錘(おもり)が着いたもので、振動のQ値が、約 10^6 、振幅の安定度が、 10^{-4} である。条件を限れば、もう少し良い値が得られる。我々は主に、位相を制御した一定ドライブモード(ポジティブ・フィードバック)で使用し、振り子の共鳴周波数(周期)と、振幅の微小変化から、それぞれ超流動密度と、系のエネルギー散逸の計測をしている。

これまでの文献に現れた、低温で用いられるこのような機械的振動子実験では、長時間に亘っての繰り返し実験で、不規則な経時変化があり再現性が得られないことが記述されているが[11]、我々は、この点でも大きな前進を見ており、測定結果の系統的比較が出来るようになってきた。この事情は月日を経ても、又回転下でも変わらない。これを達成

するには、実は、1Kポットを持たないJT予冷タイプの稀釈冷凍機的设计からの長期的準備が必要であった[6]。

ここで紹介する図は、全て数月から半年に及ぶ連続運転の中でとられた'多孔質ガラス(試料孔径約 $1\mu\text{m}$ 、表面積約 1m^2)中のHe薄膜試料'を入れた捻り振り子データを表示している。

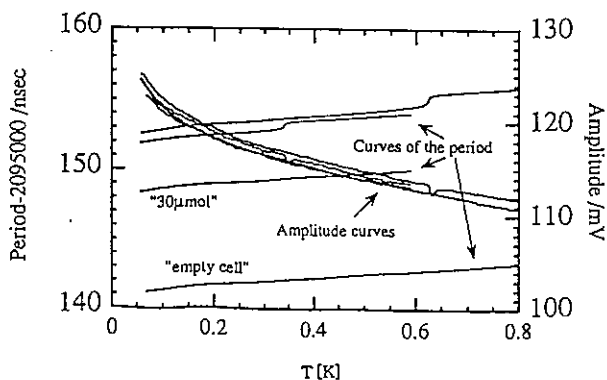


図1. 捻り振り子の周期変化(左目盛り)及び、振幅変化。常流動状態の周期変化は、導入したHeの全量に比例して平行移動しているのが確認された。また、振幅の変化(Q値の変化)を詳しく見ると、興味深い膜厚依存性が見出された。図4参照。

図1は捻り振り子の共振の周期2095000ナノ秒の内の20ナノ秒(周期の $1/10^5$)の変化を縦軸(左メモリ)に取り、振り子の振幅をAC電圧で検出したもの(右メモリ)を表している。一番下に見える周期線は振り子が空の時のものであり、次いで約30マイクロモルのHeを凝縮させた場合、さらに、46, 50.5マイクロモルのHeを吸着させた場合の周期線が見える。厚い二つの膜が超流動になるのが低温側のある温度で周期が短くなることから見る事ができる。これは超流動になったヘリウムが振り子の有効質量を軽くしているということである。このような再現性のあるデータを高精度に計測する事は、これ迄この種の実験を試みた誰にも至難の業であった。

図4は振幅のデータ及び周期変化の0.50Kでの膜厚依存性を示している。 n_c は高温からの外挿で、超流動の出現し始める膜厚である。この膜厚を境に振幅の膜厚依存性が変わっている。これは先に述べた非超流動層の振る舞いに関係していそうである。さて、図2及び図3の周期の超流動転移による変化を詳しく見るとHe全質量変化の内の約1/3のみが周期の変化に寄与することに気付く。そうでなければ、 n_c 以上の膜に対して $T=0K$ の周期は膜厚に依らないはずである。これは、先に述べたこの孔径が超流動転移温度をきめるには、十分大きくて孔径には依存しないの対比される。というのは超流動成分

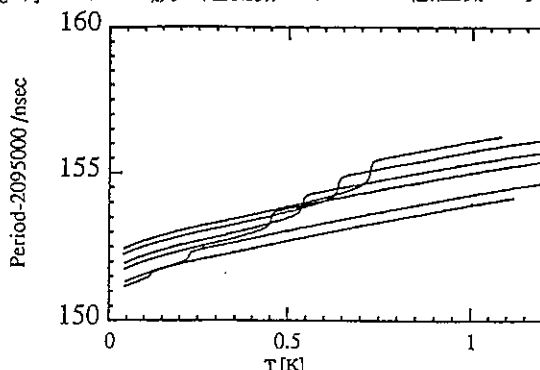


図2. 超流動を示すHe薄膜の捻り振り子周期変化の詳細。もし全ての超流動膜が、振り子に追随しないとすれば、超流動状態の周期シフトは、 $T=0K$ で一致するはずである。ところが、超流動になっても周期が上昇するのは、超流動成分が、振り子の有効質量を増やしているという事である。約1/3のフィルムのみが、振り子に追随しない事が、グラフから読みとれる。

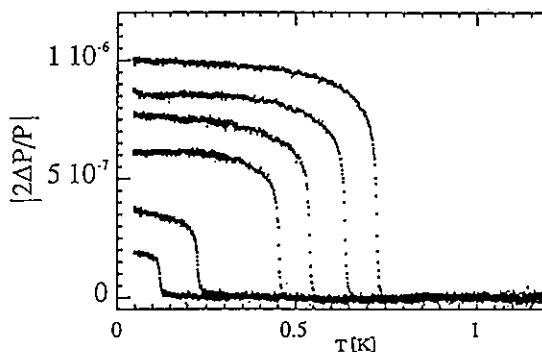


図3. 図2の超流動転移に対応する周期変化の絶対値 $|\Delta P/P|$ 。従って図1, 2とは変化が逆になっている。なお、 ΔP は周期変化のデータから常流動に対応する周期線を差し引いて得られる。常流動のバックグラウンドは、空セルのデータを平行移動して得られる。この平行移動量を図4にプロットしてある。線形関係が綺麗に得られている。

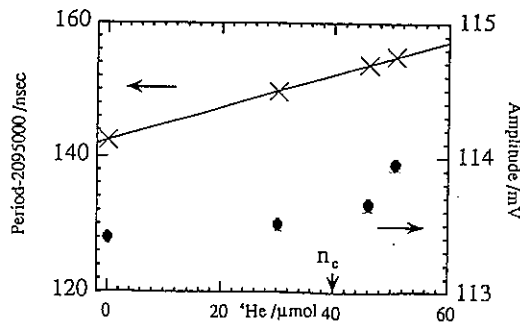


図4. 導入He量 n に対する、常流動周期線の平行移動量: x印(左目盛り)及び振幅の変化。前者が全領域にわたって n に比例するのにに対し、後者は超流動の出現し始める膜厚 n_c 近傍から増加するのが見られた。則ち、この膜厚より厚くなると、系のエネルギー散逸量が減少する事が判る。図1から判る様に、超流動転移の前で変わらない事から、超流動以外の原因で n に依存して散逸量の減衰が起こっている事を示している。

の約1/3のみが周期の変化に寄与するのは、多孔質の3次元壁のためと考えられ、多孔質中のHe薄膜である事が露に出ている。つまりTcは2次元渦対メカニズムで決まるが、超流動になってもx,y,zのうちの一成分だけが振子から分離した運動をするようになると考えられる。実は高精度の測定が出来るようになってくるとこれ迄分かっているつもりであった事が、必ずしも自明でない事に気付く。捻り振子実験が、実際何を観測できるのかは、これからの実験の進展によって更に理解が進むものと期待している。

さて、捻り振子は、通常数百から数千ヘルツ程度の周波数で動かしている。実際の実験は、振子子のQ値が大きいことから、ゆっくりと温度をスウィープしながら行う。図3は図2の周期データから膜厚に比例したバックグランドを差し引いて、比較のため $2\Delta P/P$ で整理し、その絶対値を取ったもので、超流動密度の温度変化を6種のHe薄膜について図示している。2次元膜の特徴、転移点近傍での垂直的で超流動膜厚に比例する超流動密度変化が示されている。

5. 3次元量子渦の生成と集団運動

ではこの系の3次元性はどこに現れているのだろうか？ これを見るために我々は3次元量子渦の集団運動に着目して研究をすすめている。もっとも、2次元性との関係はこれから解き明かそうと考えている訳です。

3次元渦糸の集団運動としては渦格子と乱流状態がある。バルクの超流動He実験でこれらは研究されてきた。多孔質中のHe薄膜系では何が3次元渦糸をなすかと言えば、孔の壁を循環する孔渦(pore vortex)が線状に繋がったものから成ると考えられる。回転状態では、バルクの液体He中と同様に渦格子が出来ていると考えられる。これに対し、ある臨界的速度を超える超流動DC流れの中では孔渦の絡み合いが出来て、超流動乱流が出来る事も考えられよう。

処で、渦糸と相互作用する、3次元的繋がりを持った超流動薄膜の系の中の素励起とは、即ちバルク中のフォノンとか、ロトンに対応するものは、何であろうか？ 2次元渦励起はTc近傍で大きな数密度を持つが、Tc以下で急速に減少すると考えられる。3次元的励起としてはロトンに対応するのは、最小の孔渦からなる渦輪であろうか？ フォノンも同様に考えられよう。これらに超流動流れの量子化の条件が絡んでいるはずだが、この我々の多孔質中のHe薄膜の系が自由にパラメータを変えられる人工的な超流体である事を武器として研究を進めようとしている。

6. 回転下の実験と3次元量子渦格子の凍結と、融解転移

我々の用いている超流動He薄膜は単原子膜、或いは単原子膜よりも薄い膜であるので、明らかに2次元性を持っている。静止下の実験で見たように超流動密度が超流動膜厚に比例する事、 T_c で超流動密度に跳びが見られる事、更に T_c 近傍のエネルギー吸収ピークがこれを表している。もし我々の系が3次元的長距離相関を持った超流動であるなら、この系を回転させることによって、3次元的な渦糸を作ることが出来るはずである。少数個の内から、3次元超流動転移温度以下で超流動渦格子を形作る事が期待される。また、温度をある3次元秩序の消える転移温度以

上にすれば量子渦格子は解けてしまうはずである。ただ、ここで注意しておくべき事は、均一な回転場下の回転対称容器中の超流体は、回転軸方向と垂直の平面内の2次元系とも見える事である。

図5は、超流動転移温度約0.63Kの多孔質ガラス中He薄膜の静止状態での捻り振子実験の結果である。横軸に温度、縦軸に超流動密度変化に対応する周期変化と系のエネルギー散逸のピークが示されている。Tc=0.63K以下で超流動密度の増加(振動周期の低下)が見られる。一方、Q値の減少のピークがこのTc付近で見える。このピークは、この超流動膜の

2次元性に纏(まつ)わるもので、渦対の運動が振り子に追従できなくなる過程から更に渦対が解離していく様を表している。この1回の温度スイープは、この温度範囲に亘って、約20時間を要してゆっくり行われた。この静止ピークの位置は超流動密度のあらわれだす温度にある事が見て取れる。更に、

ピークの低温側の傾斜がかなり鋭い事が見える。このような測定を回転状態で行ったらどうなるであろうか？

この系が、稀薄な3次元超流動と見なせるならば、3次元的渦格子が出来よう。毎秒1回転の回転速度で、我々の試料、直径15mmの円筒中に約 10^4 の量子渦糸を作り出すことに相当しているが、すると渦間の平均距離は約100ミクロンと考えられるので、我々の系は十分に均一な系と見なせる。図6は上記静止状態の測定に加

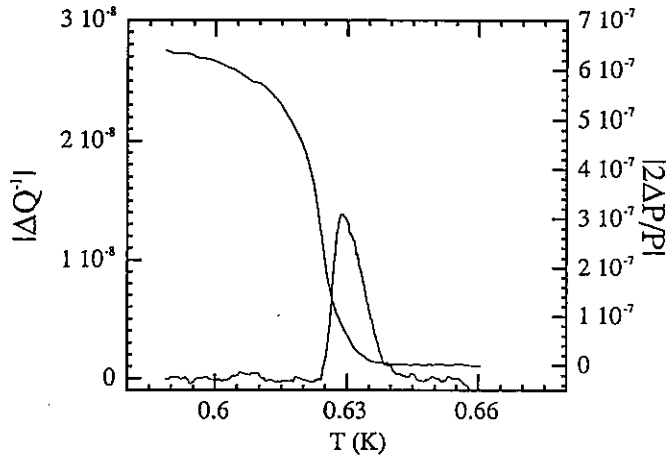


図5. 静止状態での超流動転移温度近傍の捻り振子実験の結果。図3. に比べTcの極近傍の狭い温度領域を示している。右目盛りの周期変化と左目盛りのQ値(振幅の変化を比較しやすいように規格化したもの)の逆数の変化量は、それぞれ絶対値で表している。従って、図1,図2とは変化が逆さまになっている。この範囲の温度スイープに約20時間必要。

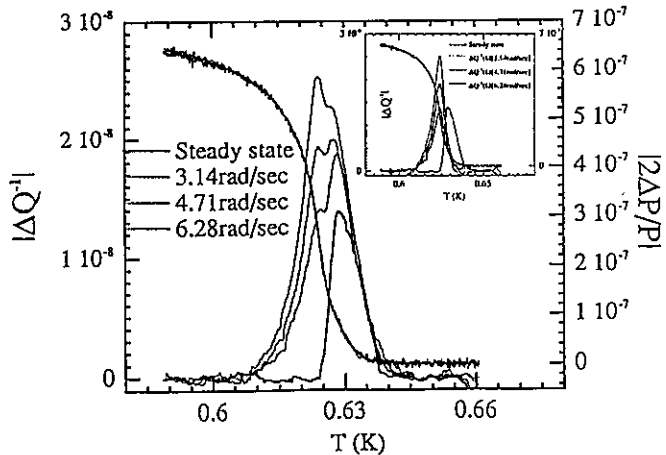


図6. 図5. と同様の捻り振子実験結果。但し、静止状態に加え、表記の角速度での回転状態での測定結果。インサートは、回転状態のQ値の逆数の変化量の絶対値の結果から、静止状態の結果を引いたもの、及び静止下のデータを別々に表示している。超流動密度及び静止下のピークはそのまま変わらないが、その低温側に新たに回転角速度 Ω に比例する高さを持つピークが現れるのが見出される。このピークは、超流動密度の変化の中間点付近に出来ている。2つのピークの振舞いの違いからその起源が議論出来る。

え、表記の毎秒 1 回転 (radian/sec) までの回転速度下での結果をプロットしたものである。

温度スイープの条件は4つのスイープに対して同一である。静止状態のピークの低温側に回転速度につれて大きくなるもう一つのピークが現れてくるのが見られる。回転速度に比例して大きくなるこのピークは超流動密度変化が最も急な温度に位置している。これは静止下のピークが超流動密度が発生し始める位置に出来るのと対照的である。静止条件下で見られるピークが、薄膜超流動を担う渦対

の生成—解離に伴うもので、3次元的相关が出来るまでの間の温度範囲で2次元渦対の存在を示す証拠に対応する[12]。

一方、回転速度と共に大きくなるピークは、回転下での3次元渦格子の凍結—融解現象の揺らぎによると考えられる。図7は、二つのピークを3次元的にプロットしてみたもので、両者の違いが、別の角度から見えようか？ これらを支配するパラメーター、孔の形状、その繋がり具合、膜の厚みなどによって、2次元性の領域の大きさ、3次元性の強さなどを制御出来るのではなからうか？ こうして様々な渦状態が構成出来るものと考えている。現在、様々な条件を変えて、定量的な研究が進行し始めているところである。

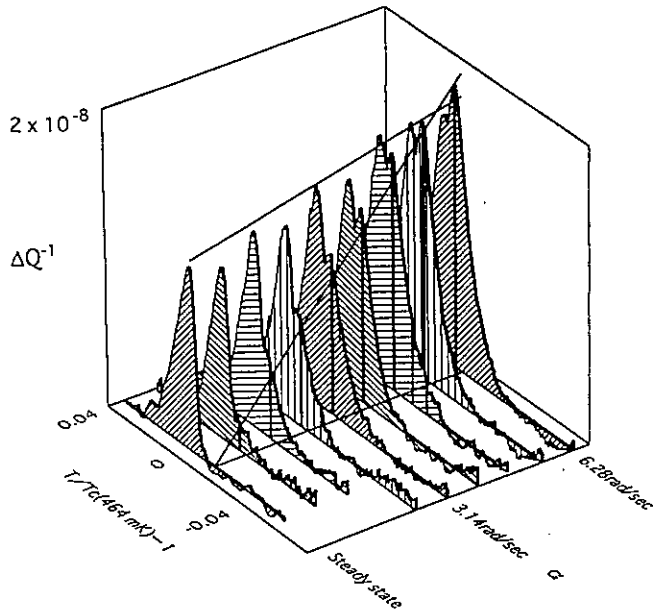


図7. 図6.とは別なシリーズの回転ピークの観測結果。T/Tc(464mK)-1と、回転角速度 Ω の関数としてエネルギー散逸ピークを3次元的にプロットしたもの。2つのピークの違いが、お分かりいただけようか。

7. もう一つの量子渦糸の集団運動：乱流転移

捻り振子の実験とは別に、超流動流れをつくり出し、その振舞いを調べる実験を、膜厚を変えた多孔質中He薄膜の系で我々を行っている。1原子層程度の膜厚と温度領域によって、超流動流れの状態が大変変化する事を見出した。そのなかで、ある膜厚である臨界的な流速が存在して、これを超すと、系の時定数が著しく長くなるように変わると共に、流速を減少させると、これとは逆に同じプロセスをずっと短い時間で遷移するという現象を見出した。これはもう少し解析をすすめる必要があるが、バルクの超流動対向流乱流で見られる現象に大変似ている。系に

このような長い時定数を持つ現象が他に考えられないので、量子渦状態の変化に対応したものを見出したと考えている。特徴的時定数が、バルクの超流動乱流で見られるものより遥かに長いので、むしろ動的過程がずっと良く観測される。もし、これが3次元渦の絡み合いによって出来る乱流現象であれば、回転運動によって作られる渦の秩序状態、渦格子と対比して研究できるものと期待している処である。我々の系では常流動成分は基板に固定されていると考えられているので $v_n=0$ と考えられる。これ迄の超流動対向流乱流理論は、有限の v_n を想定しており、状況が大いに変わってこよう。なお、バルクの超流動乱流についての長年の懸案であった2つの乱流状態 T-1,及びT-2状態の存在と、臨界流速についての解明を行う提案の仕事が最近報告された[13]。また、この原稿執筆中に、超流動乱流のワークショップが、R.J.Donnellyのもとで開かれ、そこでも超流動乱流についての新しい展開が議論されている。量子渦系の相互作用を議論するのに、古くからのVinenの相互摩擦の式[1]からの出発だけでは済まされない様になって来ているようだ。熱励起による渦の発生から量子的発生過程も重要な議論として重きをましつつある[14]。

8. おわりに

我々のところでの量子渦科学研究は、未だ、よちよち歩きでしかないかも知れないが、実は大変大きな、技術的進歩を成し遂げてきた。ボーズ凝縮状態での渦系の存在と振る舞いが、関心を集めているが、孔径の小さい多孔質中の極薄いHe薄膜の系は、希薄ボーズ粒子系と考えられ、そこでの量子渦系の研究はホットなテーマである。又、超流動層乱流転移の本格的解明、複数の次元性を合わせ持つ系での量子渦状態の基礎研究に大いに貢献して行きたい。勿論ゆくゆくはHe膜の上に浮かんだHe膜系や制限空間中の ^3He など内部自由度を持つ超流動系をも展望してゆきたい。が、回転実験は容易ではない。これまで、我々の周辺で、いや、何処でも、あまり経験した事のない多くの失敗をくり返し、今ようやく何処にもまけない新しい実験環境と、新しい知見を見出し始めている。これは、物性研が、学部の研究室と同じ事をやるべきではないとの外部意見、及び筆者のひとりの強い意志からでもあった。ただこれを更に活かすには、正直の処、物性研でのただの短期的利用にとどまらない国内外との共同研究の進展が期待される。

「量子渦物理の新展開」と題して物性研短期研究会がこの8月に予定されているが、そこでは、低温物理、宇宙論、宇宙の創成のメカニズムから流体力学までの多様な分野の研究者が集い、量子渦の物理とのかかわりから議論する。このような試みは、初めてのものであるが、今後の発展が期待されている。

謝辞

ここに述べた多孔質中のHe薄膜の捻り振子実験は1987-1990年、の当時北大理学部の渡辺昂、和田信雄（現東大総合科学）の両先生、そして物性研小川信二教授、大学院生白浜圭也氏（現物性研）との共同研究としてスタートしたものであった。筆者の一人に共に研究する機会を提供された関係者に感謝するものです。

回転下での超流動実験をするための下準備は実はそれ以前から進めていたものである。回転可能な1Kポット無しの稀釈冷凍機の考案1983-86年、1988年-1990年

度科研費（試験研究B）によって可搬型の新しいタイプの稀釈冷凍機の開発、1990年—1992年度科研費（一般研究A）によって回転稀釈冷凍機の建設が、実施され、今日に至った。この間、数多くの方々の御協力を得た。又、外国人研究員Vladimir Kovacik, Maxim Zalalutdinov両博士、助手柄木良友、技術官五十嵐武、大学院生上野剛、飯田毅、矢野達也、木本賢治の各氏、その他の研究室メンバー及び外来研究者の活躍はこの研究に欠かせないものであった。記して感謝します。又、この系での特異な現象はじめ、量子渦の物理について常に相談に乗っていただいた箕口友紀（東大総合科学）、坪田誠（大阪市立大学）、山田一雄（名城大）の各先生にお礼申し上げます。

参考文献

- [1] 長岡洋介「極低温の世界」（岩波書店）の解説などの他、山田一雄、大見哲巨共著「超流動」培風館、新物理学シリーズ、3. R.J.Donnely, "Quantized Vortices in He II", Cambridge Studies in Low Temperature Physics. ; N. Bontemps, Y. Bruynseraede, D.Deutscher and A Kapitlnik eds., "The Vortex State", NATO ASI Series C, V.438 (1994)等の教科書を参照。
- [2]例えばM.K.Zalalutdinov,V.Kovacik,M.Fukuda,T. Igarashi, and M.Kubota, "Rotation-induced vortices in superfluid ^4He films on porous substrate", Czechoslovak J. Phys. 46,Suppl. S1 (1996) 39 ; ibid S1 (1996) 143; and M. Fukuda, et al. to be published in JLTP (1998).
- [3] K. Shirahama, et al.Phys.Rev. Lett. 64,1541,(1990).; M.Kubota, Surface Science, Vol.283 (1993)404-413.
- [4] M.Kubota, T.Iida, G.Ueno, V.Kovacik, M.Fukuda, T.Yano, and M.Zalalutdinov, "Thermal Conductivity Study of Thin He Films Adsorbed in Porous Glasses with Well Controlled Pore Size",J.Low Temp.Phys.,Vol.101,Nos.1/2, 265-270,(1995); M. Kubota, T. Yano, T. Iida, G. Ueno, V. Kovacik, and M. K. Zalalutdinov, "Mass transport in thin superfluid ^4He films in porous media", Czechoslovak J. Phys. Vol.46,Suppl. S1 437, (1996); and to be published in JLTP(1998).
- [5] 福田宗行, 他1998年度春季低温工学・超電導学会講演概要集D2-4,及び、to be published in Proc. ICEC17,1998.
- [6] 五十嵐武, 他1998年度春季低温工学・超電導学会講演概要集,D2-3,「寒剤を用いない超低温稀釈冷凍機の開発III」又D2-2参照、及び、to be published. 回転冷凍機については、M.Kubota, et al. Physica B194-196 (1994) 797; V.Kovacik, et al. J.Low Temp.Phys., 101, 567 (1995); S1 143.
- [7] J. M. Kosterlitz and D. J. Thouless, J. Phys. C, 6, 1181 (1973); and Prog. Low Temp. Phys. B, 7, 373 (1978); J. M. Kosterlitz, J. Phys. C, 7, 1406 (1974).
- [8] J.D. Reppy, " ^4He as Dilute Bose Gas", Physica 126B(1984)335-341.
- [9] V. Ambegaokar,B.I. Halperin, D.R. Nelson, and E. Siggia, Phys. Rev. B21, 1806 (1980). AHNS80と呼ぼうか, Bishop and Reppy, Phys. Rev.B22,5171 (1980).
- [10] T. Minoguchi and Y. Nagaoka, Progr. Theor. Phys. Vol. 80, 397 (1988).
- [11] Richardson &Smith " Experimental Techniques in Condensed Matter Physics at Low Temperatures" Addison Wesley 1988. 日本語の解説としては、白浜圭也「ねじり振り子法を用いた物性測定」、固体物理 30, No.6, 532 (1995).
- [12]M.Fukuda, M.Zalalutdinov, V.Kovacik, T.Igarashi, and M.Kubota, "AC flow effect on a vortex state in thin ^4He superfluid films on porous glass", Czechoslovak J.Physics.Vol46 Suppl. S1 143,(1996)
- [13] D.J. Melotte and C.F. Barenghi, "Transition to Normal Fluid Turbulence in Helium II", Phys. Rev. Lett. 80, 4181, (1998).
- [14] M. Tsubota, Y. Yasui and W. Ogura, " Quantum Statistics of Three-dimensional Vortex Filament in Superfluid ^4He ", to be published in JLTP Nov. (1998); ほかreferences there in.

低温におけるアルミニウム合金の粒界破壊

工学系研究科材料学専攻 倉本 繁

(内線7156, kuramoto@preston.mm.t.u-tokyo.ac.jp)

菅野 幹 宏

(内線7155, kanno@fox.mm.t.u-tokyo.ac.jp)

1. はじめに

アルミニウム合金は非磁性かつ高比強度で低温脆性を示さず、さらに加工性が良好であることから、オーステナイト系ステンレス鋼ほどではないにしても、低温実験機器を作製する際に用いる材料としては馴染み深い材料であると思う。実用的な観点からは、アルミニウム合金の低温での応用の最も代表的なものは LNG (約110K) タンカー用のタンク材であり、現在までに多くの使用実績がある。また将来的には、2020年の実現を目指す地球環境保全を目的とした国際水素エネルギーシステム構想 (WE-NET 計画) において、液体水素 (約20K) の海上長距離大量輸送を可能にするためのタンカーの開発が待たれており、タンク用材料として実績のあるアルミニウム合金が候補材料として挙げられている。このように低温用材料としてのアルミニウム合金の用途は今後確実に拡大していくものと考えられる。

しかし、アルミニウム合金は条件によっては低温で粒界破壊をとともなう脆化を示す場合があり、実用上問題となることもある。多くの場合は金属組織の制御により回避できるものではあるが、粒界破壊の本質的なメカニズムは今だに解明されていない。そのような状況を鑑みて、筆者らは低温における強度および靱性に優れるアルミニウム合金を開発するための基礎的指針を得るため、アルミニウム合金の低温における変形および破壊挙動に関する検討を行ってきた^{[1]~[6]}。本稿ではこれまでに筆者らがこれまでに検討した内容のうち、アルミニウム合金の低温での粒界破壊と粒界近傍の組織との関係に関する研究結果を紹介すると共に、粒界割れと不純物との関係について検討した最近の結果も紹介し、最後に今後の研究の展望について述べたいと思う。

2. 低温で観察される2種類の粒界破壊

時効硬化型アルミニウム合金は粗大な結晶粒を有する場合、低温に限らず室温でも粒界破壊に基づく低延性を示す場合が多い。また、比較的低倍率で観察すると粒界破面は滑らかな平面で構成されているように見えるが、高倍率で観察すると粒界破面の微視的様相は時効の進行とともに変化することが報告されている。例えば、Al-2.8%Li-0.3%Mn合金の粒界破面には時効時間が非常に短いと直線状の段差すなわちレッジが観察される (レッジ型粒界破壊) のに対し、時効時間が長くなるとディンプルが観察される (ディンプル型粒

界破壊) ことが報告されている⁷⁾。そこで、筆者らは3種類の時効硬化型アルミニウム合金を用いて低温での引張試験を行ない、粒界近傍の組織および粒内変形組織と粒界破壊の微視的様相との関係について詳細に検討した⁸⁾。使用した試料の組成と製造条件の一覧を表1に、その結果の一部を図1～図3に示す。

表1に示した熱処理条件はこれらの合金を最高強度状態で使用する場合の標準的な条件であるが、Al-Zn-Mg合金に関しては粒界近傍の組織を変化させることを目的として、これとは別に溶体化処理後に250°C、1時間の直接焼き入れ処理を行った試料(DQ/agedと表記)も作製した。

表1 試料の組成 (mass %) と製造条件.

Alloy	Zn Mg Cu Li	Solution treatment	Aging
Al-4.5%Zn-1.5%Mg	4.56 1.44	450°C,1h	40°C,24h+120°C,48h
Al-5%Cu	4.92	540°C,1h	190°C,16h
Al-3%Li	2.99	540°C,1h	190°C,54h

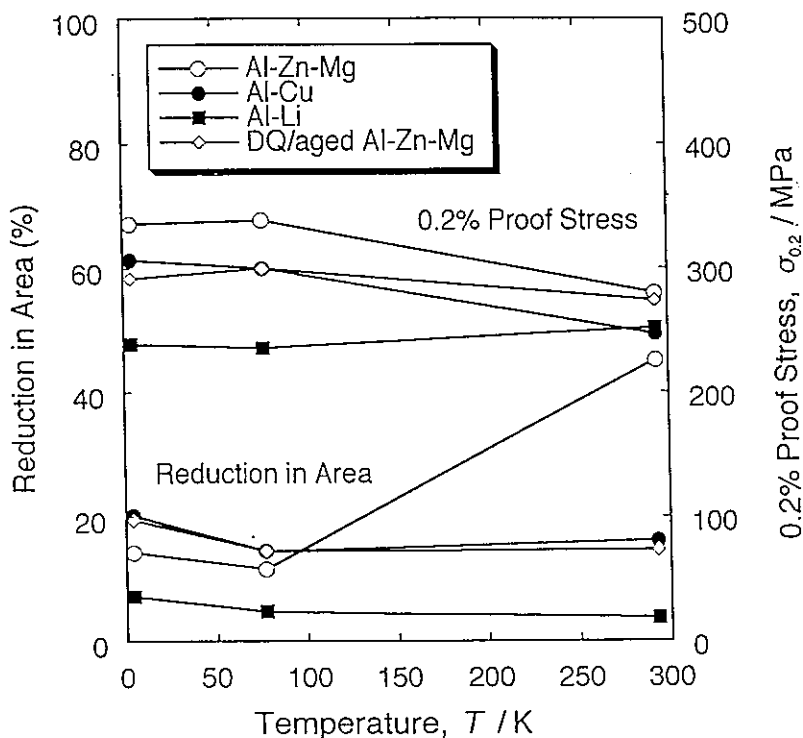


図1 機械的特性と試験温度との関係.

図1に各試料の機械的特性と試験温度との関係を示したが、延性 (Reduction in Area) に着目すると、Al-Zn-Mg合金の延性の試験温度による変化が注目される。この合金は室温では高延性を示すものの、低温では顕著に延性が低下する。このときのAl-Zn-Mg合金の破面を図2に示す。この合金は室温では粒内破壊となるが、低温では完全に粒界破壊へと破壊様式が変化する。図1で見られた温度低下に伴う延性低下はこのような破壊様式の変化と関係付けられる。そして低温での粒界破面を高倍率で観察すると、図2(c)に見られるように破面上にはレッジが観察される。一方、Al-Cu、Al-Li および DQ/aged Al-Zn-Mg合金では試験温度の低下とともに延性はむしろ僅かに向上する傾向にある。図3には代表例としてDQ/aged Al-Zn-Mg合金の破面観察結果例を示したが、これらの合金は試験温度に関わらず粒界破壊を示す。そして粒界破面を高倍率で観察すると、図3(c)に見られるようにディンプルが多数観察される。

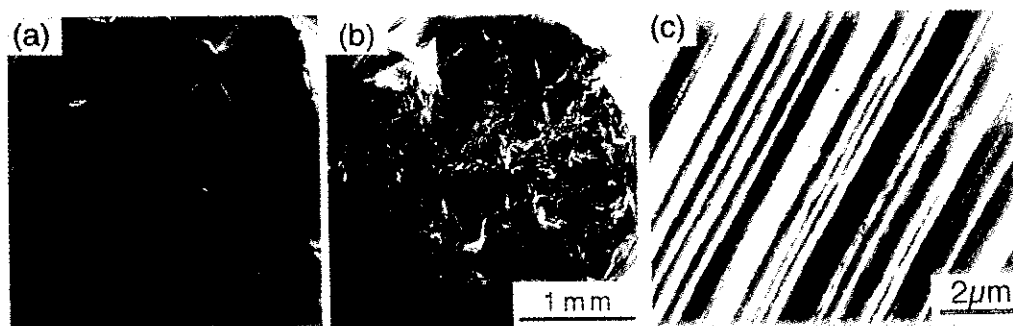


図2 Al-Zn-Mg合金の破面. (a), (c) 4.2K, (b) 室温.

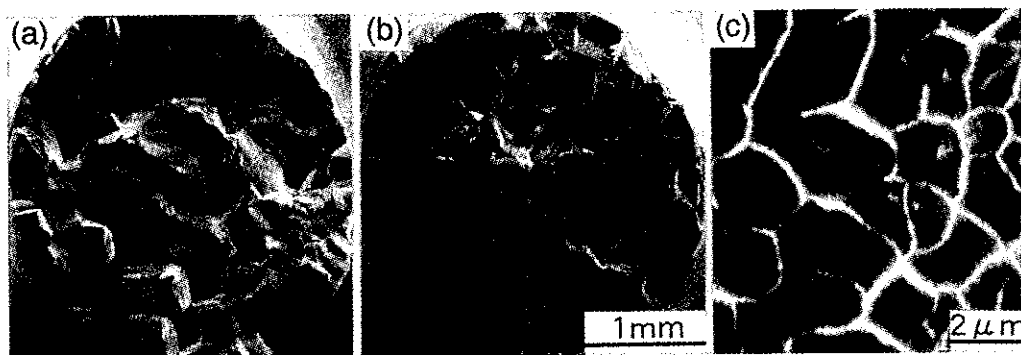


図3 DQ/aged Al-Zn-Mg合金の破面. (a), (c) 4.2K, (b) 室温.

3. 粒界近傍の金属組織と粒界破壊のメカニズム

以上のようなレッジが観察されるか、ディンプルが観察されるかといった粒界破面の微視的な特徴は、変形前の析出組織により大きな影響を受ける。ディンプル型粒界破壊を示すAl-Cu、Al-Li および DQ/aged Al-Zn-Mg 合金に比べてレッジ型粒界破壊となる Al-Zn-Mg 合金では粒界上析出相のサイズが小さく、またPFZ（粒界近傍の無析出帯）の幅が狭くなっている。これまでに室温における析出強化型アルミニウム合金の粒界破壊については実験的にも理論的にも多くの検討が行なわれてきたが¹⁰⁾、(1)粗大な粒界上析出相、(2)強度の低いPFZ内で生じる優先せん断変形、(3)粒内に発達する平面すべり、が粒界破壊と密接に関係していると報告されており、それらに基づいて粒界破壊の破壊プロセスを模式図として表すと図4¹⁰⁾のようになる。

図4(a)は粒内の平面すべりによって引き起こされる粒界への応力集中により、レッジ型粒界破壊が生じる場合を示している。一方、図4(b)に示したように粗大な粒界上析出相と幅の広いPFZが存在する場合には、破壊はPFZ内の微視的ボイドの連結によって起こり、結果として破面にディンプルが観察される。この機構においては、粒内に平面すべりが発達しても比較的幅の広いPFZの内部で局所的な歪の緩和が生じ、結果的に図4(a)の場合に比べて粒界への応力集中が軽減されるものと考えられる。粒界近傍の組織によってはこれら2つの機構が両方とも働き、粒界破面もレッジとディンプルの両方が観察される場合もある。

ディンプル型粒界破壊が温度によらず生じるのに対して、レッジ型粒界破壊が低温で起こりやすくなること（図2、3）は極めて興味深い現象である。この原因として、室温では粒界近傍で動的回復が生じることにより平面すべりによる粒界への応力集中が緩和され、レッジ型粒界破壊を起こさなくなるという考えを筆者らは提唱している¹⁰⁾。実際Al-Zn-Mg系合金においては、室温以下においても粒界近傍において動的回復が生じることが報告されている¹⁰⁾。ディンプル型粒界破壊の場合には、PFZ内の局所的な歪の蓄積量に依

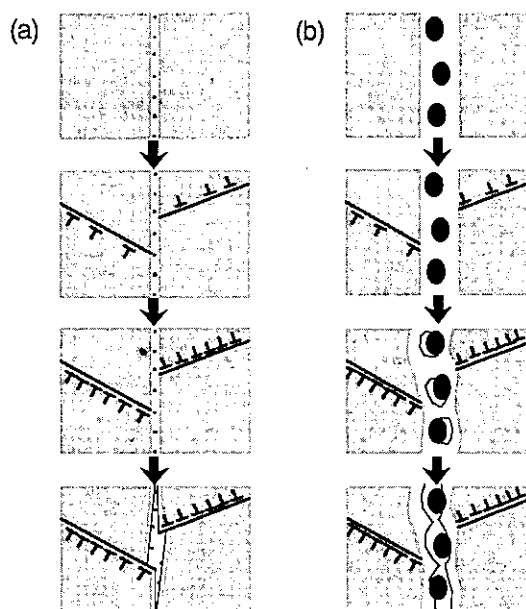


図4 粒界破壊の過程を表わした模式図.

(a) レッジ型, (b) ディンプル型.

存して破壊プロセスが進行し、平面すべりの影響が比較的小さいことから、試験温度の影響を受けにくいものと考えられる。

4. 極微量不純物と粒界破壊

前項で述べたように、アルミニウム合金の低温における粒界破壊と粒界近傍の組織との関係はある程度明らかにされたとして良い。しかし、結晶粒界の界面はく離強度に影響を及ぼすと考えられる不純物の挙動に関しては、比較的含有量の多い元素に関しては報告例があるものの、極微量の不純物に関してはこれまでに充分には検討されてこなかった。この原因の1つとして、極微量の不純物の影響に関して論じるには従来の材料の製造技術や分析技術の精度では不十分であったことが挙げられる。しかし、ごく最近筆者らは各種アルミニウム合金の粒界破壊に及ぼす不純物の影響を広範囲に検討した結果、Al-Mg系合金の高温における粒界破壊に不純物ナトリウムが甚大な影響を及ぼしていることを明らかにした^[10]。その結果を図5に示す。製造時に地金やつぼを起源とするナトリウムを極限まで減らすことにより、ナトリウム含有量が0.01molppmの試料を製造可能であることを確認し、さらにこのとき粒界破壊が完全に抑制されることを見出した。この現象は従来Al-Mg合金の本質的な特性である考えられていたが、不純物を制御することにより粒界破壊を完全に抑制できることが明らかとなったわけである。

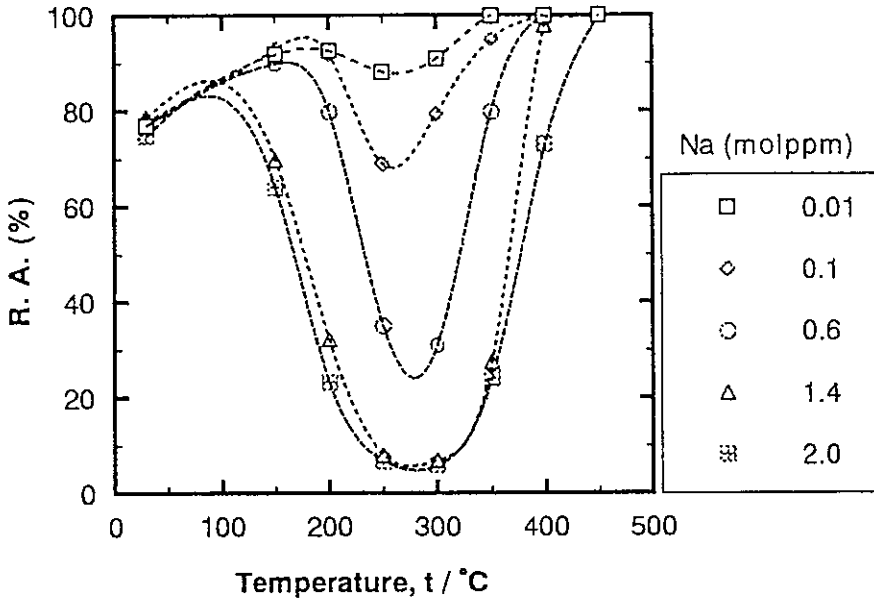


図5 Al-5%Mg合金の高温延性に及ぼす極微量ナトリウム量の影響

5. 今後の展望

室温や低温におけるアルミニウム合金の粒界破壊も、その破壊プロセスは異なるもののAl-Mgの高温脆化現象と同様に合金の本質的な性質であると考えられることが多かったようである。しかし、レッジ型粒界破壊にせよ、ディンプル型粒界破壊にせよ、最終的には界面はく離により粒界破壊が生じることから、粒界に存在する極微量不純物元素が重要な役割を果たしている可能性は大きい。今後、液体水素タンカー等の構造材料としてアルミニウム合金の低温での使用が拡大していくことを考慮すると、低温での粒界破壊に及ぼす極微量不純物の影響について明らかにし、不純物に着目した粒界破壊を抑制する方法についても検討していく必要があると考えられる。

参考文献

- [1] G. Itoh, S. Kuramoto and M. Kanno: Aluminum Alloys '90 (International Academic Publishers), 1990, 575.
- [2] S. Kuramoto, G. Itoh and M. Kanno: Sci. and Eng. of Light Metals (Japan Institute of Light Metals), 1991, 217.
- [3] S. Kuramoto, M. Kanno and G. Itoh: ALUMINIUM ALLOYS Vol.2 (The Norwegian Institute of Technology, Dept.of Metallurgy and SINTEF Metallurgy), 1992, 197.
- [4] 倉本, 伊藤, 菅野: 日本金属学会誌, 57(1993), 1130.
- [5] 倉本, 伊藤, 菅野: 日本金属学会誌, 59(1995), 381.
- [6] S. Kuramoto, G. Itoh and M. Kanno: Metal. and Mater. Trans. A, 27(1996), 3081.
- [7] T.H. Sanders, Jr., E.A. Ludwickzak and R.R. Sawtell: Mater. Sci. Eng., 43(1980), 247.
- [8] A.K. Vasudévan and R.D. Doherty: Acta Metall. 35(1987), 1193.
- [9] W.A. Swiatnicki, M. Styczynska and M.W. Grabski: Acta Metall. 33(1985), 1643.
- [10] 堀川, 小用, 倉本, 菅野: 軽金属学会第93回秋期大会講演概要, 1997, 337.

磁場により引き起こされる種々の現象

工学系研究科応用化学専攻 廣 田 憲 之

(内7202, thirota@hongo.ecc.u-tokyo.ac.jp)

北 沢 宏 一

(内7201, teckita@hongo.ecc.u-tokyo.ac.jp)

1.新磁気科学という分野

近年、「新磁気科学」と称する分野が形成されつつある。「新磁気科学」とは、従来は磁場の影響が小さいために注目される事の無かった反磁性や常磁性の物質自体や、それらを用いた化学反応などの各種プロセス、あるいは、生体を対象とし、それらに対する静磁場の影響を評価する分野である。これまで、磁場中での性質、あるいは工学的応用が盛んに議論されてきた対象は、強磁性体や超伝導体などの材料が中心だったが、超伝導磁石関連技術の発達に伴い、大空間に強磁場を発生させる事が容易になったため、その対象が広がったものである。最近までに国内メーカー数社によってなされた冷凍機冷却式超伝導磁石の開発には目をみはるものがあり¹⁾、安価で操作の容易な強磁場磁石が広く研究者に行き渡る土壌を作った。これによって、次第に新磁気科学分野の興味深い現象が報告されるようになり、他分野から、また、一般の人々からも注目を集めはじめている。ごく最近では、いくつかの雑誌で新磁気科学に関連した研究の特集が組まれたり²⁻³⁾、関連する記事が取り上げられたりしている⁴⁻⁶⁾。また、学会における発表の件数も徐々に増加している。これらの中でも紹介されているように、最近この分野で磁場効果が報告されているトピックスとしては、電気化学反応⁷⁻¹¹⁾や、溶液からの析出反応¹²⁾、ラジカル反応¹³⁻¹⁵⁾、相転移¹⁶⁾、微生物の成長¹⁷⁻¹⁹⁾、赤血球や高分子・タンパク質結晶などの配向²⁰⁻²²⁾、モーゼ・増強モーゼ効果²³⁻²⁶⁾や、磁気浮上^{27,28)}などが知られている。これらの中で、メカニズムが明らかになっているものに関して見てみると、その基本原理は、ローレンツ力による流体的な効果、ラジカルのスピン状態への効果、熱力学的エネルギー変化による効果、磁氣的異方性のための配向効果、磁場の不均一による磁気力に限られている。ファンタスティックな報告がなされる例もあるが、その多くは現象の観測のみに終始し、信憑性に疑問が持たれる。複雑な系に磁場を印加して、磁場効果を探索するのも一つの手法だが、これでは、メカニズム解明は困難を極める。信頼性の低いデータの報告は、かえって、この分野の発展を阻害すると考えられることから、我々のグループでは、できる限り基本的な要素過程に磁場を印加し、磁場効果を見出してゆこうと考えてきた。

今回は、新磁気科学について紹介する機会を与えて頂いた。スペースの問題もあり、ここで新磁気科学すべてを概観することはできない。そこで本稿では、我々のグループのこれまでの取り組みを中心に紹介することを通して、我々の新磁気科学に対する捉え方について述べたい。

2. モーゼ効果と増強モーゼ効果

超伝導磁石の水平室温ボアに水槽を差し込み、水を入れて観察すると、磁場中心部で水面がへこむ現象の観測が上野・岩坂により報告されたのは1994年のことである²³⁾。Fig. 1 は中心部に10 Tの磁場を印加した時の(a)純水及び(b)硫酸銅水溶液の液面形状変化である²⁴⁾。このような液体表面形状の変形は、超伝導磁石で発生させた磁場の強度が、コイル中心が最大で、ボア軸に沿って両側に離れるにしたがって減衰するために観測されたもので、重力と磁気双方のポテンシャルエネルギーを考慮すれば、定量的説明が可能となる。これは原理的には、磁化率測定法の一つであるGuoy法と同様の考え方であり、それ自身に新しい物理はない。しかし、2点間の液面の高低差のみを見るGuoy法に対し、この現象のように、液体表面全体の変形を見ることは、新しい概念と捉えることができ、新規の展開を期待させる。そのような観点から、我々はこの現象を旧約聖書の故事に因み「モーゼ効果」及び「逆モーゼ効果」と命名した。

磁場強度 $B=0$ とできる磁場中心から十分に遠い位置を液体表面の高さの基準として $h=0$ とすると、液面高さはボア軸上の位置 x の関数として次式のように表すことができる。

$$h(x) = \frac{\chi}{2\mu_0\rho g} B(x)^2 \quad (1)$$

ただし、 χ は液体の体積磁化率、 μ_0 は真空透磁率、 ρ は液体の密度、そして g は重力加速

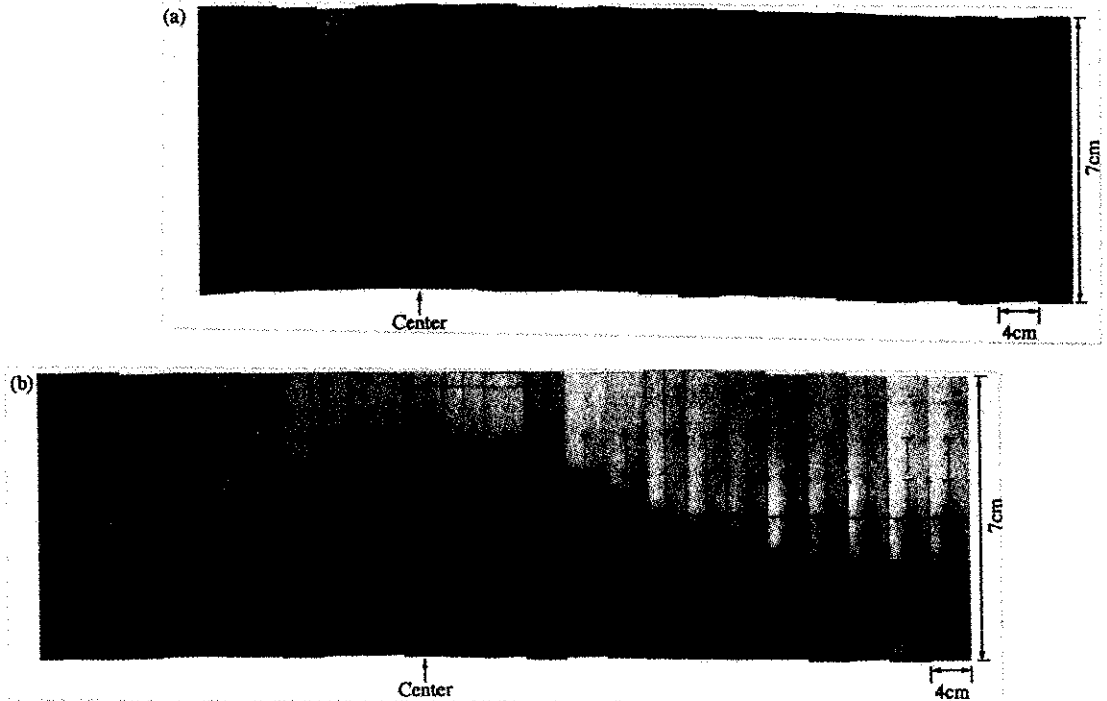


Fig. 1 モーゼ効果と逆モーゼ効果。超伝導磁石のボア中に置かれた水槽中の(a)純水及び(b)硫酸銅水溶液の形状変化。磁場は中心で10 T印加しており、両端に行くに連れて次第に減衰する。

度である。水や硫酸銅水溶液など、反磁性・常磁性液体の体積磁化率の大きさは SI 単位系では 1×10^{-5} (無次元) 程度でしかないため、(1)式右辺の係数部分は小さく、10 T というかなり強力な磁場を印加してはじめて、40 mm 程度の変形が観測できた。永久磁石によって得られる 0.5 T 程度の磁場では、その効果は 400 分の 1、すなわち 0.1 mm 程度の変形しか生じない。

しかし、条件次第では永久磁石程度の磁場によって変形を大きくすることができる。式(1)では、液体自身の効果のみを考え、周囲の環境、この場合は表面と接する気体、については考慮されていない。気体の存在も考慮すると、式(1)は以下のように変形できる。

$$h(x) = \frac{(\chi_A - \chi_B)}{2\mu_0(\rho_A - \rho_B)g} B(x)^2 \quad (2)$$

ただし、 χ と ρ の添え字 A, B はそれぞれ液体と気体を指している。

気体の密度は液体のそれよりも 3 桁小さく、体積磁化率の大きさは空気の場合、水に比べて 1/25 程度である。このため、液体の表面の変形を観測した場合、その大きさは気体の組成などを変化させることでやや大きくすることもできるが、ごくわずかなものでしかない²⁹⁾。しかし、(2)式は液体間界面の変形の場合にも適用でき、その右辺分母の $\rho_A - \rho_B$ は、密度の近い 2 液体を用いることでゼロに近づけることができる。すなわち、(2)式右辺の係数を大きくできる。したがって、磁化率の小さい反磁性・常磁性の液体であっても、密度の近い 2 液体の場合には、その界面は、0.5 T の永久磁石でも大きく変形するはずである。実際、Fig. 2 に示されているような界面形状が得られた²⁵⁾。これを、増強モーゼ効果と呼んでいる。永久磁石で液体の形状が変形する様子は、視覚的にもおもしろく、一般の人からも興味を引くようで、いくつかの科学館などで展示として採用されている。以上のような液体形状の変形効果の知見を生かせば、これまでとは逆に、いかなる強磁場でも変形を起こさないようにしたり、あるいは、化学反応の制御など各種のスイッチとして適用が可能になったりするのではないかと期待している。

3. 磁場による重力の制御

前節では、モーゼ効果・増強モーゼ効果をエネルギーの釣り合いによってみてきた。しかし、これを液体の形状変形の視点で見ると面白い。通常、液体の表面は、その液体に働く重力の方向を法線とする面に形成される。したがって、モーゼ効果で観測された液体形状の変形は、重力方向の場所依存を見ていたと考えることができる。ただし、ここでいう重力方向とは、みかけの重力方向とでも言うべきもので、重力と

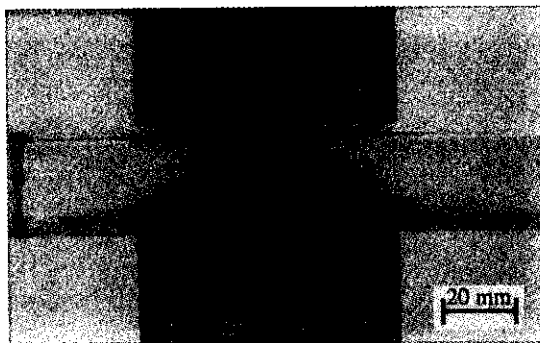


Fig. 2 永久磁石で観測された密度の近い 2 液体界面の形状変形 (増強モーゼ効果)。永久磁石は Ne-Fe-B 系で中心磁場が 0.56 T。

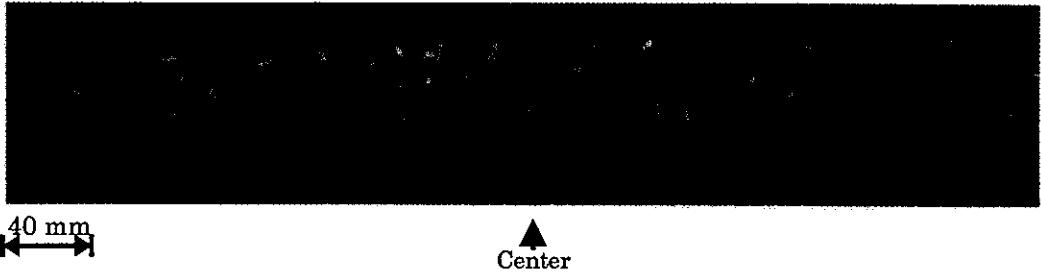


Fig. 3 中心で 10 T の磁場を印加した超伝導磁石のボア中で発芽させたきゅうりの芽。完全遮光下、27.0 °C で発芽させた。芽は磁場中心の方向に向かって傾いている。

磁場が不均一であるために液体に対し水平方向に働く磁気力との合力の方向である。これを別の視点で見る面白い実験が他にもある。

通常、植物の根は重力の方向に沿って下向きに、芽は重力と反対の方向に成長する。超伝導磁石の室温水平ボア中に、今度は、園芸用土壌をつめ、きゅうり (*Cucumis sativus* L.) の種をまいた発芽容器を入れる。中心で 10 T の磁場を印加し、27°C、遮光下で約 3 日間発芽させた後の芽の様子を写真撮影したものが、Fig. 3 である³⁰⁾。図中の Center が磁場中心の位置を示している。無磁場において発芽させた場合には、発芽の方向に系統的な変化は見られないが、磁場中で発芽させた場合は、Fig. 3 に見られるように磁場中心の左右 150 mm 程度までのきゅうりの芽が、磁場中心に向かって傾いている。これは、きゅうりの重力感知機構に対して磁気力が作用し、重力と磁気力の合力の方向を、みかけの重力方向として認識したために生じたものであると考えられ、解析の結果も定性的にこれを支持している。すなわち、きゅうりの芽が疑似重力の方向を可視化していると見ることもできる。

ここまでは、水平方向に磁気力を作用させ、擬似的な重力の方向を変化させた例を紹介してきた。垂直方向に磁気力を作用させると、今度は擬似的重力の大きさを制御できる。1991 年、グルノーブルの 27 T ハイブリッド磁石で反磁性体の磁気浮上のデモンストレーションが行われ、磁石上部の磁場勾配部で、水やプラスチック、木片などの浮上が確認された²⁷⁾。磁気力の大きさは、物質の磁化率のほか、磁場勾配と磁場の積 $B \cdot dB/dz$ の大きさに比例するが、たとえば水を磁気浮上させようとする、 $B \cdot dB/dz$ は $1400 \text{ T}^2/\text{m}$ 程度必要になる。一般的な空心コイルで磁場を発生させる場合にこの値を達成しようとする、20 T を超えるようなハイブリッド磁石が必要となってくる。このような環境を持っているところは、例えば国内では東北大、金材研など、世界でも数カ所に限られてしまう上、その運転には莫大なコストが必要である。磁気浮上の面白味・有用性は、宇宙の無重力環境で行われていた各種の実験を行ったり、浮遊溶融体から高純度の結晶を成長させるといった材料プロセスに用いるなど幅広い分野に適用できる点にある。しかし、これらへの利用を考えたとき、装置が限られている事、コストがかかる事は大きな障害となる。もっと普遍的な磁石で浮上が実現できなければ、磁気浮上利

用の研究は進展しないと考えられる。そこで、我々のグループでは、広く普及している 10 T 程度の超伝導磁石（これらの $B \cdot dB/dz$ は $400 \text{ T}^2/\text{m}$ 程度）による、水などの磁気浮上条件について検討してみた。そして、浮上環境の酸素圧力を大きくする事で、小型超伝導磁石による磁気浮上に成功した³¹⁾。これは、常磁性の酸素が磁場中心に向かって引きつけられる事で、みかけ上重くなることを利用しており、我々はこの方法を「磁気アルキメデス浮上法」と呼んでいる。この方法では反磁性に限らず、常磁性の物質でも浮上させる事が可能で³¹⁾、浮上の適用範囲が広がった。この手法の導入により、幅広い研究分野に物質浮上が適用される事が容易に予想され、実用的にも十分に魅力を備えた技術と発展してゆくと期待している。

以上に紹介してきたように、3 次元的に磁場の勾配を利用すれば、擬似的な重力の大きさや方向を制御する事が可能になる。このような手段として磁場をとらえてみることは新たな実験の武器を与えるであろう。

4. 各種プロセスに対する磁場効果

前節までは、反磁性・常磁性の物質に働く磁気力の効果を直接見る事象を概観した。これ以降は、反・常磁性の物質を用いたプロセスへの磁場影響についていくつか紹介したい。

(a) 水の蒸発現象

中心で 8 T の磁場を印加した超伝導磁石の水平室温ボア内を恒温に保ち、そこに水を入れた小さな容器を設置し、水の蒸発速度を重量変化から評価した。その結果、磁場で蒸発が促進される現象が見出された。蒸発速度は $B \cdot dB/dz$ が最も大きな位置付近で最大になり、この位置では Fig. 4 に示すように無磁場の場合と比較して約 3 倍となった。

さらに詳細な実験により、この現象は磁気力の作用により水面上の空気に対流が誘起されたと考えるメカニズムで説明することができた^{32,33)}。この効果は、単純な水面上だけではなく、例えば植物の種子からの水分蒸発といった生体現象でも確認された³⁴⁾。この結果は、生体を磁場で扱う実験において、水分の蒸発という二次的な効果を通して生体への磁場の影響が観測される可能性を示唆するものである。また、有機溶媒等の水以外の液体でも見出されており、蒸発が関与する実験では、これを念頭において実験を進めることを提唱するところである。

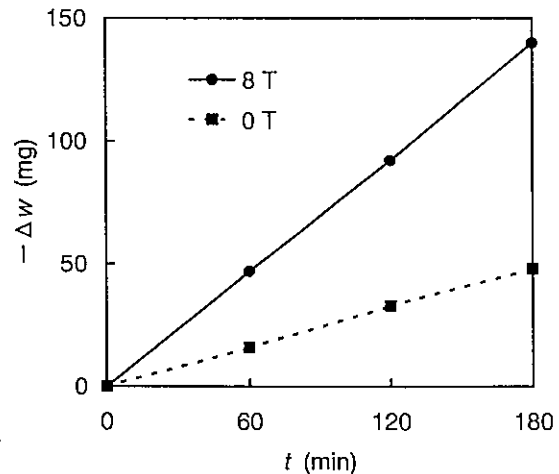


Fig. 4 水の蒸発量の時間変化への磁場の影響。8 T の磁場を印加した場合の方が蒸発が速くなっている。測定温度は $25.0 \text{ }^\circ\text{C}$ 。

(b) 酸素ガスの水への溶解

あらゆる生物は水中に溶けた酸素を有効に活用している。肺において血中に酸素が取り込まれるが、これも水への溶解プロセスを途中に含むと見る事ができるだろう。水中への酸素溶解過程は、生物にとっても重要な物理化学現象である。

超伝導磁石のボア中に純水をおくと、酸素の常磁性のために、気相の酸素圧力が若干増加し、これが水中溶存酸素濃度の平衡値をわずかにずらすと予想される。この変化の大きさは熱力学的に計算することができるが、4 T の磁場下でも 0.01 % 程度の増加でしかない。ところが、これまでしばしば数 10 % にもおよぶ増大が報告されている。この事実がもし本当であれば、生物への磁場影響あるいは、水中における材料プロセスなどに大きな影響を与える事になり、その真偽が重要になってくる。

我々は、実験環境を制御し次のような方法で酸素の溶解現象を観測した。まず超伝導磁石中に密閉した恒温室を作り、その中に予め脱気した水を入れた小さなセルを置く。そこに、純酸素ガスを導入して水と接触させ、一定時間経過後に取り出して、電気化学的溶存酸素センサーで酸素濃度を計測した。実験の結果、確かに熱力学的に予想されたように、十分長時間にわたって水と酸素を接触させた後の平衡溶存酸素濃度には有為差は見られなかった。しかし、平衡に到達するまでの溶解速度には大きな促進効果が認められたのである。速度の定義や段階にもよるが、速度の増大は 2-3 倍程度にもなる³⁵⁾。すなわち、平衡には影響を与えないがそのカイネティクスに影響を与えるのである。効果は 2 T 程度から有為差が認められ、10 T まで増大していく。この現象のメカニズムは、現在までのところ、水中の酸素濃度の不均一による磁化率勾配と磁場の不均一により、水中に対流が生じたためではないかと考えている。

生物のほとんどは、水を介して酸素による代謝を行っている。したがって、多くの生物実験で磁場効果があるとされた現象では、前記の蒸発速度とならんで水への酸素溶解速度に対する磁場効果も考慮されねばならないことは明らかである。

これまで、反・常磁性物質の単純なプロセスに対し磁場効果が確かにあるとして広く認められるようになったものはまだ少ない。その例として挙げられるのは、冒頭でも触れた、スピン化学あるいは磁気化学として知られるラジカルスピン対を経由する反応¹³⁻¹⁵⁾、燃焼炎や煙の付近での気体の対流への効果^{36,37)}や、青柿らによって体系化された MHD 効果として知られる電気化学プロセスへの磁場効果^{7,11)}などであろう。MHD 効果は溶液中で電気化学反応を行なった際に、マクロに電流が流れると、ローレンツ力のために溶液中での物質分布が変化することにより観測される効果だが、最近、青柿らは、マクロに電流が流れない過程においても、局所的に漏れ出す電流によってマイクロな部分で MHD 効果が起こり、腐食や金属めっき等に大きな影響が観測される事を見出した³⁸⁾。彼らはこれをマイクロ MHD 効果と命名している。今後は、この例や本節で見てきた例のように、既に知られた基本原理をどのようなスケールでどのような系に適用するのか

といった、原理と現象の複合のさせ方次第で、思いがけないプロセスにおいて、興味深い磁場効果が見い出されてゆくのではないだろうか。

5. おわりに

現在、磁場効果の基本原則として既に確立されたものは、冒頭でも述べたように、限られたものでしかなく、新しい基本原則があるのかどうかはわからない。しかし、既に知られた基本原則でも、現象との複合の仕方によっては、技術的に有用であったり、興味深い現象となりうるようである。工学系の我々にとっては、各種プロセスに対し、磁場を適用する事でその制御を行なう事は非常に興味深い。そこで扱う、物理化学的な基本過程に対する磁場影響を評価する事は、おそらく、生物影響などを検討する際にも重要な手がかりとなるのではないだろうか。

新しい基本原則を探索するにしろ、新しい応用を模索するにしろ、今後「新磁気科学」分野が更なる発展を遂げるためには、個々の研究者の努力はもちろんだが、分野の垣根を越えた情報交換・議論の場が持たれることが重要だと考えられる。この様な考えから、昨年秋には、科学技術振興事業団の「各種反応・プロセスにおける磁気効果に関する研究」プロジェクトの主催で第 1 回新磁気科学シンポジウムが開催され³⁹⁾、この春にはそのプロシーディング集も刊行された。今後、この様な場を利用し、活発な議論が行なわれることで、新磁気科学分野が発展してゆく事を期待したい。

References

- 1) 超電導コミュニケーションズ vol. 7, No. 2 (1998)など参照
- 2) 化学工業 vol. 48, No. 10 (1997).
- 3) 日本金属学会誌 vol. 61, No. 12 (1997).
- 4) 上野照剛: 日本応用磁気学会誌, 19, 677 (1995).
- 5) 谷本能文, 曹 紅: 日本応用磁気学会誌, 21, 14 (1997).
- 6) 宮越順二: 日本応用磁気学会誌, 21, 1070 (1997).
- 7) K. Kitazawa, S. Asakura, K. Fueki and T. Mukaibo: *J. Electrochem. Soc. Jpn.* 37, 45 (1969).
- 8) R. Aogaki, K. Fueki and T. Mukaibo: *Denki Kagaku*, 43, 504 (1975).
- 9) R. Aogaki, K. Fueki and T. Mukaibo: *Denki Kagaku*, 43, 509 (1975).
- 10) R. Aogaki, K. Fueki and T. Mukaibo: *Denki Kagaku*, 44, 89 (1976).
- 11) R. Aogaki, T. Negishi, M. Yamato, E. Ito and I. Mogi: *Physica B* 201, 611 (1994).
- 12) I. Mogi, S. Okubo and Y. Nakagawa: *J. Phys. Soc. Jpn.*, 60, 3200 (1991).
- 13) 林久治: 現代化学: No. 5, 12 (1984).
- 14) U. E. Steiner and T. Ulrich: *Chem. Rev.* 89, 51 (1989).
- 15) 林久治: 分子磁性, p265-280, p319-334 (学会出版センター, 伊藤公一編, 1996).
- 16) Y. Matsumoto, I. Yamamoto, M. Yamaguchi, Y. Shimazu, and F. Ishikawa: *Jpn. J.*

- Appl. Phys.*, **36**, L1397 (1997).
- 17) K. Okuno, T. Ano and M. Shoda: *Biotechnol. Lett.*, **13**, 745 (1991).
 - 18) K. Okuno, K. Tsuchiya, T. Ano and M. Shoda: *J. Ferment. Bioeng.* **75**, 103, (1993).
 - 19) M. Okuda, K. Saito, T. Kamikado, S. Ito, K. Matsumoto, K. Okuno, K. Tsuchiya, T. Ano, and M. Shoda: *Cryogenics* **35**, 41 (1995).
 - 20) 山岸昭雄: 阪大強磁場 No. 7 p43 (1993).
 - 21) H. Sata, M. Yamato, and E. Ito: *Rep. Prog. Polym. Phys. Jpn.* **36**, 199 (1993).
 - 22) N. I. Wakayama, M. Ataka, H. Abe: *J. Cryst. Growth*, **178**, 653 (1997).
 - 23) S.Ueno and M.Iwasaka : *J. Appl. Phys.*, **75**, 7177 (1994).
 - 24) N. Hirota, T. Homma, H. Sugawara, K. Kitazawa, M. Iwasaka, S. Ueno, H. Yokoi, Y. Kakudate, S. Fujiwara and M. Kawamura : *Jpn. J. Appl. Phys.*, **34**, L991, (1995).
 - 25) 廣田憲之, 本間琢朗, 崎浜竜也, 酒井正格, 菅原宏治, 北沢宏一, 岩坂正和, 上野照剛, 横井裕之, 角館洋三, 藤原修三 : 日本応用磁気学会誌., **20**, 513 (1996).
 - 26) H. Sugawara, N. Hirota, T. Homma, M. Ohta, K.Kitazawa, H. Yokoi, Y. Kakudate, S. Fujiwara, M. Kawamura, S.Ueno and M.Iwasaka : *J. Appl. Phys.*, **79**, 4721 (1996).
 - 27) E. Beaunon and R. Tournier : *NATURE*, **349**, 470 (1991).
 - 28) M. V. Berry and A. K. Geim: *Eur. J. Phys.* **18**, 307 (1997).
 - 29) 中川準, 廣田憲之, 北沢宏一, 横井裕之, 加藤隆二, 角館洋三, 藤原修三 : 日本応用磁気学会誌., **21**, 761 (1997).
 - 30) 廣田憲之, 崎浜竜也, 中川 準, 北沢宏一, 横井裕之, 加藤隆二, 角館洋三, 薄葉 州, 藤原修三: 日本応用磁気学会誌, **22**, 829 (1998).
 - 31) Y. Ikezoe, N. Hirota, J. Nakagawa, and K. Kitazawa: *Nature*, **393**, 749 (1998).
 - 32) 中川準, 廣田憲之, 北沢宏一, 正田誠: 電気学会マグネティクス研究会資料, MAG-96-132
 - 33) 中川準, 廣田憲之, 北沢宏一, 正田誠, 荻原宏康 : 日本応用磁気学会誌 **22**, 825 (1998).
 - 34) 中川準, 廣田憲之, 北沢宏一 : 電気学会マグネティクス研究会資料, MAG-97-233
 - 35) 池添泰弘, 廣田憲之, 崎浜竜也, 茂木邦雄, 植竹宏往, 本間琢朗, 中川準, 菅原宏治, 北沢宏一: 日本応用磁気学会誌., **22**, 821 (1998).
 - 36) S. Ueno and K. Harada : *IEEE Trans. Magnetism*, MAG-23, 2752 (1987).
 - 37) 若山信子 : バウンダリー, p. 48 (1993).
 - 38) 篠原賢次, 青柿良一: *Proc. of SNMS'97*, p267 (1998).
 - 39) 第1回新磁気科学シンポジウム 埼玉, 浦和 1997年11月.

低温センターだより編集委員会

(1998. 8 現在)

編集委員長・センター長

内野倉國光 工・物工 (6845)

編集委員

蓑輪 眞 理・物理 (4133)

藤森 淳 理・物理 (4126)

村田道雄 理・化学 (4357)

為ヶ井 強 工・物工 (6846)

柴田浩司 工・金属工 (7147)

前田京剛 総・相関基礎 (93-6747)

西澤直子 農・農学国際 (7514)

大塚洋一 低温セ (2860)

島田 宏 低温セ (2861)