

# 宇宙へはばたくゼロ熱膨張合金

藤井 啓道, 大野 晴康

低熱膨張合金として知られるスーパーインバー合金は、精密機器や計測機器等に広く用いられているが、宇宙空間で使用される望遠鏡等の構造部材としては性能が十分ではなかった。我々は、精密な成分調整技術やマイクロ組織制御技術を駆使することにより、宇宙望遠鏡に求められる超低熱膨張、低温安定性、経時寸法安定性を兼ね備えたスーパー・スーパーインバー合金を開発した。本稿では、開発に関わる研究成果とともに低熱膨張合金の今後の展望を述べる。

## はじめに

宇宙望遠鏡やセンサの構造部材は、高い寸法精度と熱的寸法安定性が求められる。そのため、これらの構造部材には低熱膨張合金として知られるインバー合金が用いられている。インバー合金の歴史は、1897年にスイスの Guillaume 博士が Fe-36mass%Ni 合金 (以下、mass%は単に%と表記する) の熱膨張が室温付近でほとんど0になることを発見したことに端を発する。その熱膨張率は、純鉄の1/10程度の  $1.2 \times 10^{-6}/\text{K}$  であり<sup>1)</sup>、温度に対して熱膨張が invariable (不変) であることが Invar (インバー) の語源となっている。インバー合金の発明に関わる一連の研究成果は、当時科学上の重大な課題とされた精密測量分野の問題を解決する革新的な発見として評価され、1921年に Guillaume 博士に対してノーベル物理学賞が授与された。1927年には、増本博士によって磁気物性の観点から Fe-Ni 系合金の低熱膨張の起源が説明され、この理論に基づき超低熱膨張特性を有する Fe-Ni-Co 合金が開発された<sup>2)</sup>。この合金は、スーパーインバー合金と名付けられ、熱膨張率はインバー合金より1桁小さい  $5 \times 10^{-7}/\text{K}$  以下であると報告されている。増本博士の研究以降、インバー効果と磁気物性が密接に関わっていることが認識され、これまで様々な解釈が提唱されてきた<sup>3)~9)</sup>。インバー合金は、これらの研究とともに発展を続け、発明

から約1世紀を経て精密機器、制御機器、構造部材等の様々な分野で応用されるようになっていく。

冒頭に述べた宇宙産業に目を向けると、位置天文学の分野において、インバー合金の高性能化は超高精度観測を実現するための喫緊の課題となっている。国立天文台の推進する小型 JASMINE (Japan Astrometry Satellite Mission for Infrared Exploration) 計画では、赤外線を用いた超高精度観測によって、天の川銀河の構造を解明することを目指しており、望遠鏡構造部材としてスーパーインバー合金が採用されている<sup>10)</sup>。しかしながら、従来のスーパーインバー合金の熱膨張率  $5 \times 10^{-7}/\text{K}$  程度では、構造設計の要求を満足することはできない。そこで、我々は材料成分およびマイクロ組織の精密制御技術によって、従来のスーパーインバー合金よりさらに1桁熱膨張特性を向上させた宇宙産業向け第3世代低熱膨張合金「スーパー・スーパーインバー合金」を開発した。この合金は、宇宙空間における低温使用にも耐え、製造から運用終了まで寸法が安定しているという特性も有している。

本稿では、小型 JASMINE 計画の一環で開発したスーパー・スーパーインバー合金に関する研究成果を紹介し、低熱膨張合金の将来展望を述べる。

## スーパーインバー合金の マイクロ組織と熱膨張特性

インバー合金の低熱膨張は、温度が上昇する

際に、原子の格子振動による自然熱膨張と強磁性体の有する自発体積磁歪の消失による体積収縮が打ち消しあうことにより発現すると理解されている<sup>11)</sup>。そのため、インバー特性を改善するためには、材料の強磁性が消失するキュリー温度や飽和磁化等の磁性に関わる特性を精緻に制御することが鍵となる。Fe-Ni系合金では、インバー特性が生じる組成近傍において飽和磁化の値が急激に低下することが知られている<sup>12)</sup>。また、同じ組成域において、キュリー温度もNi量に依存して著しく変化する<sup>13)</sup>。つまり、従来のスーパーインバー合金の特性を革新的に向上させるためには、そのマイクロ組織と熱膨張特性を正しく理解した上で、精緻に成分調整や組織制御を行っていくことが必要となる。本節では、一般的なスーパーインバー合金のマイクロ組織と熱膨張特性を紹介する。

図1は、スーパーインバー合金の(a)鍛造材および(b)鍛造材のマクロ組織写真である。どちらも温度830℃の溶体化熱処理および315℃のひずみ取り熱処理を行った後の組織を示している。この合金は、基本的には面心立方構造のオーステナイト相の単相組織となることが知られており、写真からもオーステナイト相以外の組織は観察されなかった。両者の写真を比較すると、鍛造材では塑性加工と再結晶により形成した微細な等軸の結晶粒が観察されるのに対し、鍛造材では溶融-凝固過程に形成した粗大な柱状晶が観察される。この組織の違いが熱膨張特性にどのように影響するかを理解するため、両者の熱膨張特性を比較する。図2は、高精度熱膨張計で測定したこれらの合金の熱膨張曲線を示している。鍛造材と比較すると、鍛造材の方がわずかに熱膨張量が小さくなっていることが確認できる。インバー合金の熱膨張率は、原子空孔、転位、結晶粒界等の格子欠陥密度に影響される可能性が指摘されている<sup>14)15)</sup>。そのため、鍛造材においては、結晶粒微細化により密度が増加した結晶粒界の影響により、熱膨張率がわずかに変化したと推察される。しかしながら、両者の熱膨張率は、著しい差が出るほどの変化は確認されず、ともに $7 \times 10^{-7}/K$ 程度であった。これらの結

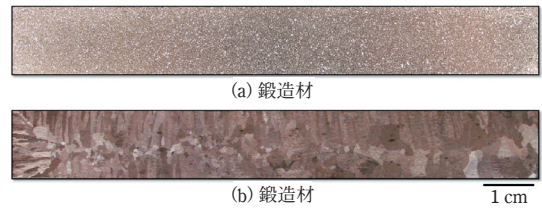


図1 光学顕微鏡観察によって得られたスーパーインバー合金の(a)鍛造材および(b)鍛造材のマイクロ組織写真。

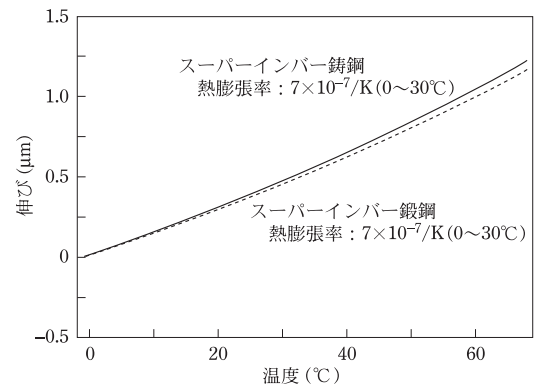


図2 スーパーインバー合金の鍛造材および鍛造材の熱膨張曲線。

果に基づけば、結晶粒径制御や欠陥導入等のマイクロ組織制御では飛躍的に熱膨張率を低減することは難しいと予想される。

ところで、増本博士がスーパーインバー合金を初めて報告した論文では、すべての試験片の熱膨張率は $5 \times 10^{-7}/K$ 以下となっており、いくつかの試験片では $10^{-7}/K$ 以下の値を示したとされている<sup>2)</sup>。しかしながら、現在製品化されているスーパーインバー合金では、ほとんどが $5 \times 10^{-7}/K$ 前後の熱膨張率であり、開発当時の飛躍的な特性向上は見られない。また、低熱膨張を阻害するマルテンサイト相の形成温度( $M_s$ 点)は、どの製品においても $-23^\circ C$ 程度となっており、室温付近での使用が想定されている。そのため、 $10^{-7}/K$ 以下の熱膨張率を安定して維持したまま、宇宙空間の低温使用に耐え得るスーパーインバー合金は開発されていない。増本博士は、当時Ni量を0.5%の精度で変化させて実験を行っており、これより

高精度に Ni 量の成分調整を実施すれば、安定して  $10^{-7}/\text{K}$  以下の熱膨張率を示し、低  $M_s$  点を有する合金を開発できる可能性があると考えられる。これが実現されれば、熱膨張特性に関しては、スーパーインバー合金が宇宙望遠鏡の構造部材としての要求を満たす性能が得られることとなる。

### 第3世代低熱膨張合金「スーパー・スーパーインバー合金」の開発

小型 JASMINE 計画における望遠鏡構造の設計では、従来のスーパーインバー合金の熱膨張率である  $5 \times 10^{-7}/\text{K}$  程度では要求を満足することはできない。そのため、安定して  $10^{-8}/\text{K}$  オーダーの熱膨張率を有する合金開発が必要となる。これまでの低熱膨張合金の歴史では、Fe-Ni 系のインバー合金から一部の Ni を Co へ置換することにより、熱膨張率を 1 桁低減させた第 2 世代 Fe-Ni-Co 系スーパーインバー合金へと開発が進められてきた。スーパーインバー合金が開発されて 90 年近く経過した現代では、材料の製造技術や分析技術が著しく発展しているため、材料のマイクロ組織や成分を精緻に制御することにより、さらなる熱膨張率の低減が可能となると期待される。また、衛星搭載

機器においては、深宇宙の環境に晒された場合に備え、放射冷却によって  $-123^\circ\text{C}$  近くまで温度が下がることを想定しなければならない。上述の通り、従来のスーパーインバー合金は、温度  $-23^\circ\text{C}$  程度まで冷却されると、熱膨張率の高いマルテンサイト相の形成が進行するため、宇宙空間での使用には適していなかった。以上の背景に基づき、極低温域まで使用が可能であり、安定して  $10^{-8}/\text{K}$  オーダーの熱膨張率を実現する第 3 世代低熱膨張合金の開発を試みた。

はじめに、Fe- $x$ %Ni のインバー合金を用いて、熱膨張率を上昇させるマルテンサイト相の形成量と Ni 量の詳細に検討した。Ni 濃度は、滴定法を用いた化学分析により絶対量を測定し、0.1%の精度での調整を実現した。図 3 は、液体窒素を用いて、温度  $-196^\circ\text{C}$  で冷却処理を行った Fe- $x$ % Ni 合金の室温におけるマイクロ組織を示している。Ni 量が 32.3~34.3% の合金では、高密度にマルテンサイト相が形成していることが確認できる。それに対し、Ni 量が 34.6% になると、マルテンサイト相は著しく減少し、35.1% においては全く形成しないことが明らかになった。これは、インバー合金組成域におけるマルテンサイト形成が、Ni 量に対して極めて敏感であり、Ni 量の増加とと

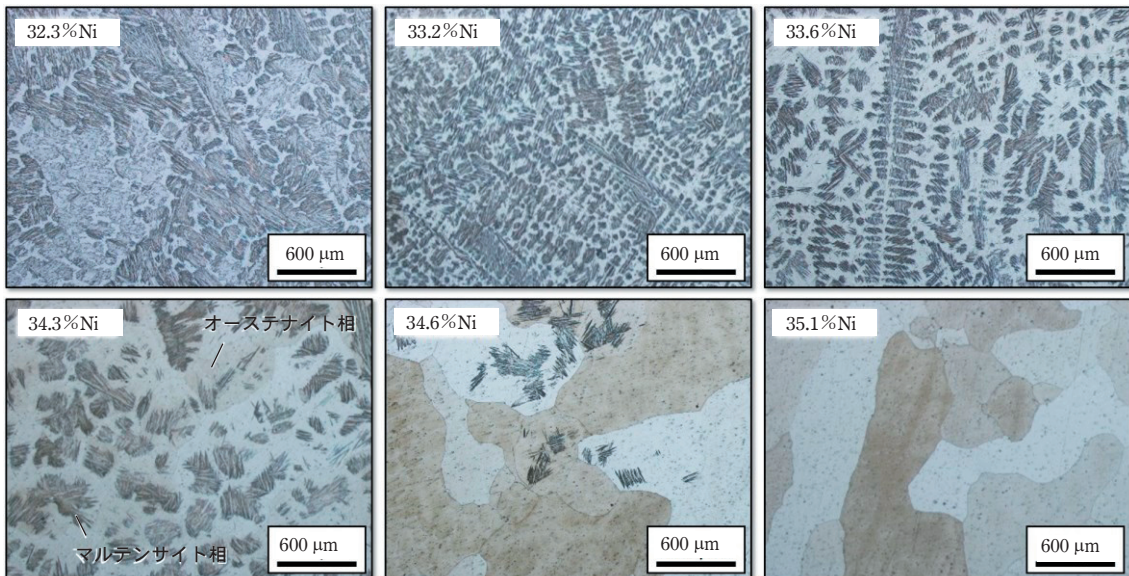


図 3 温度 77 K で冷却処理を行った Fe- $x$ %Ni 合金の室温におけるマイクロ組織写真。



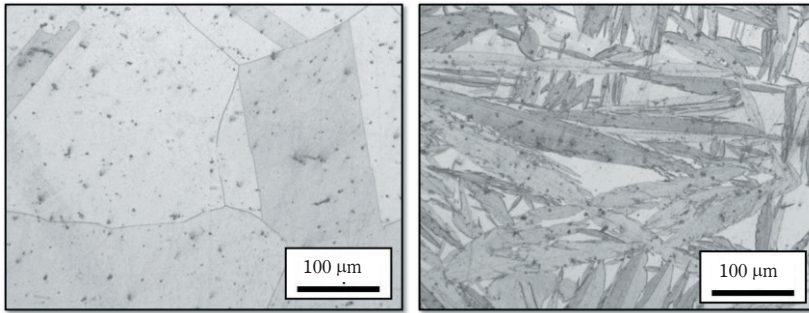


図4 温度 143 K で冷却処理を行った (a) 従来のスーパーインバー合金および (b) 成分調整により低  $M_s$  点を実現したスーパーインバー合金のマイクロ組織写真。

もに  $M_s$  点が低下することを示唆している。この結果に基づき、スーパーインバー合金でも Ni 量を 0.1% の精度で調整し、従来よりも Ni 量をわずかに増加させることによって、熱膨張特性を維持したまま  $M_s$  点を著しく低下させることに成功した。図 4 は、(a) 従来のスーパーインバー合金 (以下、従来材) と (b) 成分調整により低  $M_s$  点を実現したスーパーインバー合金 (以下、開発材) を  $-130^\circ\text{C}$  で冷却処理した後、室温でマイクロ組織を観察した結果である。従来材では、高密度にレンズ状のマルテンサイト相が形成しているのに対し、開発材では全く形成していないことが確認できる。続いて、これらの材料の冷却時における熱膨張特性を調べると、図 5 に示す曲線が得られた。従来材は、 $0^\circ\text{C}$  より冷却していくと、マルテンサイト相の形成により、 $-45^\circ\text{C}$  付近から急速に膨張が始まっていることが分かる。それに対し、開発材では  $-100^\circ\text{C}$  まで寸法はほとんど変わらず、低熱膨張が維持されていることが明らかになった。

ここで、熱膨張率の値に目を向けると、Ni 量をわずかに増加させることにより、 $M_s$  点を低下させることは可能となったが、スーパーインバー合金の最適組成からは Ni 量がわずかに外れるため、宇宙望遠鏡の構造材として要求される  $10^{-8}/\text{K}$  オーダーの熱膨張率は達成されなかった。そのため、インバー型合金の熱膨張率に影響を及ぼすとされる Ni のマイクロ偏析に着目した。旗手らによると、一般的なインバー鋳鉄における Ni の分配係数 (凝固過程における溶融部の Ni 濃度に対する凝固部の Ni 濃度の比) は、1 よりも大きくなる<sup>16)</sup>。つまり、Ni 濃度は初晶オーステナイト相で高くなり、

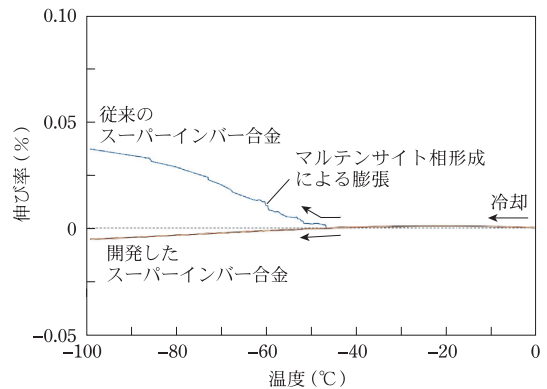


図5 (a) 従来材および (b) 開発材の熱膨張曲線。

最終凝固部において低くなる。逆に、低炭素のインバー鋳鋼においては、分配係数は  $0.95\sim 0.98$  程度と報告されており<sup>17)</sup>、本研究における開発材も同様の値を示している。以上のように、インバー型合金においては、最適な Ni 量を添加していても、微視的には Ni 濃度のゆらぎが大きく、局部的に組成が変化する。最適組成から外れたマイクロ領域においては、当然熱膨張率は局部的に上昇し、材料全体の平均熱膨張率も上昇する。以上を考慮すると、最適組成に近い組成のスーパーインバー合金においては、適切な熱処理によって Ni のマイクロ偏析を低減し、濃度の均質化を行うことにより、熱膨張率を低減することが可能となる<sup>16)</sup>。図 6 は、電子線マイクロアナライザ (Electron Probe Micro Analyzer : EPMA) により測定した均質化処理前後の開発材における任意の領域の Ni 濃度分布を示している。均質化処理によって濃度分布は平坦となっており、マイクロ偏析が低減されていることが確認できる。実際に、Ni 濃度の最大値と最小値の

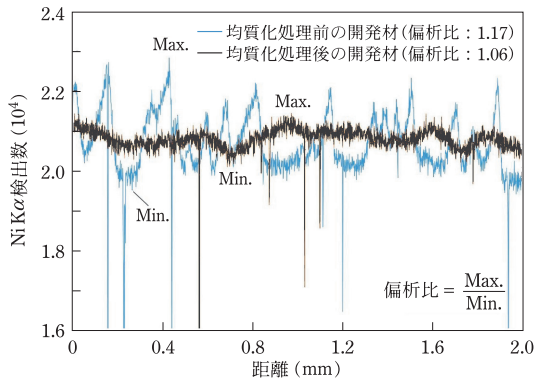


図6 均質化処理前および均質化処理後の開発材における任意の領域のNi濃度分布。

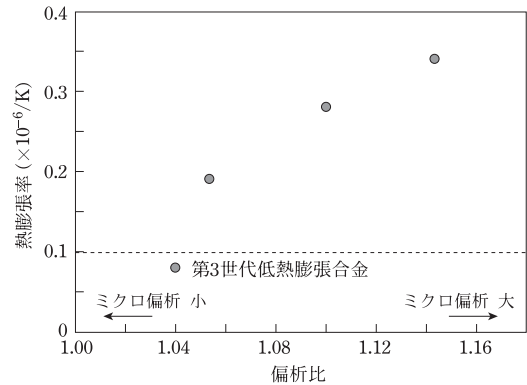


図8 開発材におけるNiの偏析比に対する熱膨張率の変化。

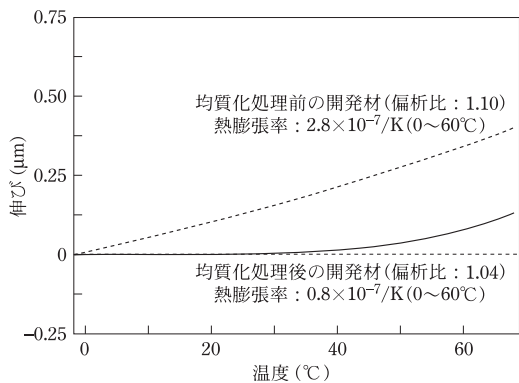


図7 均質化処理前および均質化処理後の開発材の熱膨張曲線。

比である偏析比を計算すると、均質化処理前においては1.17であったのに対し、均質化処理後では1.06となっており、数値からも明らかにマイクロ偏析が低減されていることが確認できる。なお、プロフィール中のNi量が著しく減少している箇所は、母相とは異なる硫化物相等の領域であるため、偏析比の計算においては無視をした。

図7は、均質化処理前後の開発材の熱膨張曲線を示している。均質化処理後においては、Ni濃度分布が均質化されたことによって、明らかに熱膨張率が小さくなっており、均質化処理前に $2.8 \times 10^{-7}/\text{K}$ であった値が $0.8 \times 10^{-7}/\text{K}$ まで改善された。図8は、偏析比に対する熱膨張率の変化を示している。偏析比を低減させると、明らかに熱膨張率

が減少することが確認された。また、偏析比を1.04程度まで低減させると、高い再現性で $1.0 \times 10^{-7}/\text{K}$ 以下の熱膨張率を得られることも確認され、超高精度を要求する宇宙望遠鏡構造部材として、実用に供する可能性が大きく膨らんだ。この合金は、第3世代の低熱膨張合金として、スーパー・スーパーインバー合金と名付けられ、位置天文学のキーテクノロジーの1つとして大きく飛躍することが期待されている。

## 宇宙望遠鏡への適用

衛星搭載の望遠鏡構造材料は、上述の熱膨張特性に加えて、製造から運用終了までメンテナンスが行えない宇宙空間で使用されるため、寸法の経年変化に対して高い耐性を有していることが重要となる<sup>10)</sup>。インバー合金の寸法の経年変化は、炭素の拡散現象と密接な関わりがあることが知られている<sup>18)19)</sup>。そのため、経年変化に作用する炭素の含有量をいかに抑えるかが重要となる。我々は、スーパー・スーパーインバー合金の寸法安定性を向上させるため、熱膨張特性と低温安定性を維持したまま、炭素含有量を0.02%以下まで抑えることに成功した。図9は、スーパーインバー合金の寸法の経年変化に対する炭素含有量の影響を示している。これらの結果は、本研究で作製した試料を用いて、産業技術総合研究所工学計測標準研究

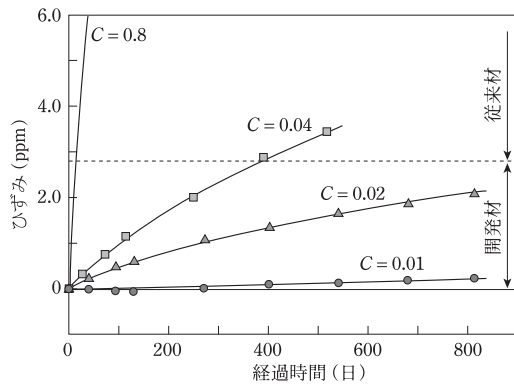


図9 スーパーインバー合金の寸法の経年変化に対する炭素含有量の影響。

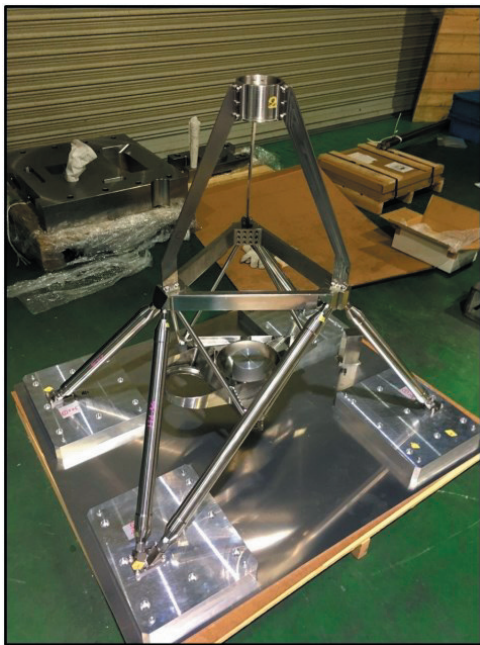


図10 小型JASMINE計画で用いられる宇宙望遠鏡。

部門において測定を行っており、現在も測定を継続している。炭素含有量を極限まで低減したスーパー・スーパーインバー合金は、従来の合金と比較して経年変化が著しく抑制され、その変化量は1年間で60 nm程度であることが確認されている。これによって、超低熱膨張、低温安定性、寸法安定性の全てを兼ね備えた材料開発が実現し、小型JASMINE計画の宇宙望遠鏡構造部材としてスーパー・スーパーインバー合金が採用されることと

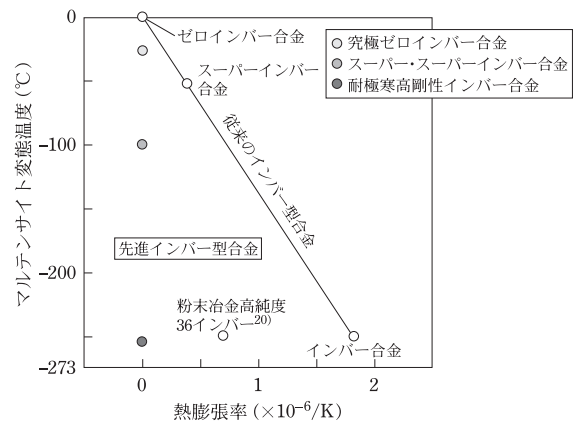


図11 各種インバー型合金の熱膨張率と $M_s$ 点の関係。先進インバー型合金の比較として、粉末冶金高純度36インバー<sup>20)</sup>も示している。

なった。図10に示す通り、小型JASMINE望遠鏡の構造は静定のトラス構造であり<sup>10)</sup>、すべての部品にスーパー・スーパーインバー合金が用いられている。

## おわりに

インバー合金は、発見から120年を経た現代においても幅広い分野で活躍している。精密機器や計測機器の発展とともに、様々な特性を有するインバー型合金が登場し、添加元素を中心とする合金系の探索やマイクロ組織制御に関する検討が精力的に行われてきている。その結果、インバー型合金の使用温度域は大きく拡大し、機械特性や加工性は著しく改善され、活躍の場を宇宙空間にまで広げようとしている。また、学術的な視点から見ると、インバー効果発現機構に関する議論は今なお世界中で続いており、多くの興味深い命題が残されている。

図11は、各種インバー型合金の $M_s$ 点と熱膨張率の関係を示している。新報国製鉄では、本稿で紹介したスーパー・スーパーインバー合金以外にも、耐極寒高剛性ゼロ膨張合金や究極ゼロ膨張合金等の世界最高水準の低熱膨張合金も開発しており、精緻な成分調整およびマイクロ組織制御技術によって、ニーズに応じた様々な低熱膨張合金を提

供することが可能である。我々は、これまでの研究で築き上げた学術基盤の上に、長年培われた世界最高峰の精錬技術や鑄造技術を積み重ねることにより、低熱膨張合金開発の未踏の頂へと歩を進めている。

近年の産業技術の高度な発展に伴い、宇宙産業や半導体産業等の様々な分野において、ナノメートルスケールの位置や寸法の超高精度が求められている。高い寸法安定性を有する低熱膨張合金の生産技術は、上記の産業技術の発展を支え、豊かな社会の形成に大きく寄与すると考えられる。今後は、様々な視点から低熱膨張合金の特性発現機構やミクロ組織形成機構が議論され、学術基盤に立脚した合金開発が一層進むことが期待される。我々は、これからも低熱膨張合金の発展の一翼を担い、1世紀以上続く低熱膨張合金の歴史を未来へと紡いでいきたいと考えている。

## 謝辞

本稿におけるスーパー・スーパーインバー合金の開発に当たっては、国立天文台の宇都宮真博士より多大なるご支援を賜りました。また、スーパーインバー合金の寸法の経年変化の測定は、産業技術総合研究所工学計測標準研究部門において測定を行っていただきました。関係各位のご協力に深甚の謝意を表します。

## 参考文献

- 1) C. E. Guillaume: CR Acad. Sci., **125** (1897), 235.
- 2) H. Masumoto: Sci. Rep. Tohoku Imp. Univ., **I-20** (1931), 101.
- 3) E. I. Kondorsky, V. L. Sedov: J. Appl. Phys., **31** (1960), 331S.
- 4) R. J. Weiss: Proc. Phys. Soc., **82** (1963), 281.
- 5) 可知祐次: 固体物理, **3** (1968), 499.
- 6) T. Kakeshita, K. Shimizu, R. Tanaka, S. Nakamichi, S. Endo, F. Ono: Mater. Trans., JIM, **32** (1991), 1115.
- 7) D. G. Rancourt, M.-Z. Dang: Phys. Rev. B, **54** (1996), 12225.
- 8) J. M. Wesselinowa, I. P. Ivanov, P. Entel: Phys. Rev. B, **55** (1997), 14311.
- 9) T. Yokoyama, K. Eguchi: Phys. Rev. Lett., **107** (2011), 065901.
- 10) 宇都宮真: 金属, **89** (2019), 422.
- 11) 深道和明: まてりあ, **36** (1997), 1064.
- 12) 近角聰信: 強磁性体の物理(上), (1978).
- 13) Y. Tanji and Y. Shirakawa: Sci. Rep. Res. Inst., Tohoku Univ. Ser. A, Phys. Chem. Metall., **22** (1970), 135.
- 14) 近角聰信, 溝口正: 固体物理, **3** (1968), 67.
- 15) 中間一夫: 山陽特殊製鋼技報, **21** (2014), 39.
- 16) 旗手稔, 塩田俊雄, 炭本治喜, 中村幸吉: 鑄物, **67** (1995), 775.
- 17) 旗手稔, 炭本治喜, 中村幸吉: 日本金属学会誌, **54** (1990), 1036.
- 18) B. S. Lament, B. L. Averbach and M. Cohen: Trans. ASM, **43** (1950), 1072.
- 19) J. M. Steele, D. A. Thompson, S. F. Jacobs, D. L. Bass: Proc. SPIE, **1752** (1992), 40.
- 20) W. M. Sokolowski et. al: Ultrahigh-purity dimensionally stable invar 36, U. S. Patent 5, 476,633, 1995-12-19.

ふじい・ひろみち Fujii Hiromichi T.

2007 日本学術振興会特別研究員, 2008 ケンブリッジ大学客員研究員, 2009 東北大学大学院工学研究科ナノメカニクス専攻博士課程後期3年の課程修了, 同年 東北大学大学院工学研究科材料システム工学専攻助教, 2010 オハイオ州立大学客員研究員, 2019 新報国製鉄株主幹. 博士(工学). 専門: 鉄鋼材料, 電磁気学, 接合工学.

おおの・はるやす OHNO Haruyasu

1993 新報国製鉄株入社. ガラス成形用金型材や極低熱膨張合金等の高機能鉄鋼材料の開発に従事. また, 鉄鋼材料の各種特性評価技術により品質管理業務にも従事. 専門: 鉄鋼材料, 機械工学, 品質管理.