

極微細超伝導線による超流動ヘリウム渦検出器の開発

大阪公立大学 大学院理学研究科

矢野 英雄

1. はじめに

超伝導マルチフィラメント線材は、電流によって発生する磁束の変動を抑え、超伝導状態が壊れるクエンチを抑制する。この特性のため、エネルギーロスの少ない電流の輸送や高磁場の生成に利用されている。フィラメントの一本一本は細く、また長距離にわたって途切れること無く電気抵抗0の状態を保つので、低温で使用するセンサーの材料としても適している。我々はこの特性を生かし、超流動ヘリウムの渦の検出に超伝導フィラメントを利用している。本稿では、我々が開発した超流動渦検出センサーを解説し、その動作原理や超流動研究への応用を紹介する。

2. 超流動ヘリウムの渦

超流動流体は粘性がない。粘性がないために棒でかき回しても流れが起きない。ところが超流動の渦は物体に付着する性質があり、棒の動きに伴って付着渦が動けば、超流動の流れを作ることができる。我々はこの性質を利用して超流動ヘリウムポンプを開発し、回転流や吸込流の研究を行い、また極微細超伝導線による超流動渦検出センサーを開発し、超流動渦の性質や超流動乱流を研究している。

超流動はその状態を保つ堅い性質を持つ。超流動を構成するヘリウム原子はそれぞれ波の性質を持ち、波が重なって一つの状態を形作り、超流動状態が実現する。そのために、いったん渦ができると渦芯を中心に超流動が周り続け、超流動渦は減衰しない。また超流動の流れには波の性質が反映し、波の位相が壊れないように流れるため、超流動渦は途切れることができない。この性質のために、渦輪のように渦芯の端がない形か、渦が壁で終端する形しか取ることができない。こういった性質から、超流動に浸した棒に渦が付着するという、水など粘性流体では見られない現象が起こる。

棒に付着した超流動渦をどう検出するのか？渦が付着すれば渦の超流動は棒とともに動くので、棒が感じる超流動の質量は増える。しかしその増加はごくわずかで、検出することは難しい。一方、棒が動けば棒の回りに運動と逆に動く超流動の流れが駆動され、その流れからエネルギーをもらって超流動渦の渦芯長さが伸びる。この渦の伸張は

棒の動きに逆らう力を生み、検出することができる。

そもそも超流動ヘリウムの渦はどのように発生するのか？超流動の渦芯半径は $0.1 \text{ nm}(=10^{-10} \text{ m})$ とヘリウム原子の直径より細く、ヘリウムの温度を下げて超流動になるとき、容易に渦が発生する。さらに温度を下げる過程で起こる熱流が超流動の流れを駆動し、さらに渦を発達させる。発生した渦は、前述の通り渦の端がない渦輪になるか容器の壁に付着する。渦輪は、スモークリングがリングと垂直方向に動くように回転流によって動き、容器や物体の壁にぶつかり付着し消滅する。物体の表面に渦芯よりも大きな凸凹があれば、図1のように渦が消えずに残り、安定に存在すると思われる。この渦が付着する物体が動けば、物体の動きと逆方向に超流動の流れが起こり、それが渦を伸張させる。伸張が起こる超流動流の速度は渦の長さ(図1の l)とだいたい反比例の関係にあり、物体の表面が滑らかで付着渦の長さが短いほど、渦の伸張が起こる超流動流は速くなる。

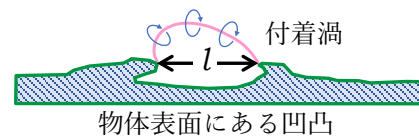


図1 超流動ヘリウム中の物体表面に付着し残留する超流動渦。渦芯直径より大きな凸凹に橋渡しするように付着すると、渦は途切れることができず、安定に存在する。

3. 超流動渦検出センサー

渦の検出には超流動渦に外部から流れのエネルギーを与えれば渦が伸張することを利用する。渦の伸張をエネルギーロスとして検出するために、その他のエネルギーロスを小さくしたい。電気抵抗が0となる超伝導線材はこの用途に適しており、またセンサー自身の質量を軽くし検出感度を上げるために、超伝導フィラメントの共鳴振動を利用する。

センサー自身のエネルギーロス軽減と検出感度の向上のために、マルチフィラメント線材から極微細超伝導線を作成した。販売されているニオブチタン合金のマルチフィラメント超伝導線材(銅クラッド)を、その直径が10分の1程度になるま

で細く引き延ばす。この方法でフィラメント直径は2~3 μm まで細くなり、また延伸させることでフィラメントの表面は滑らかになる。それを半円状に曲げて銅クラッドを溶かし、フィラメントが1本になるまで剪定する。このように作成したセンサーを図2に示す。半円状に張ることによって半円の面と垂直方向の1方向に安定に固有振動する。

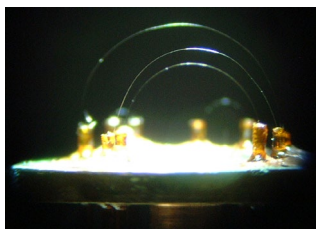


図2 極微細超伝導線による渦検出センサー。直径2~3 μm の超伝導線を1mm程度の幅で半円状に張る。図は複数のセンサーをセットにした検出装置の写真である。

このセンサーを磁場中に置き、固有周波数の交流を超伝導線に流すことで、ローレンツ力により共鳴振動させる(図3a)。液体ヘリウムの中で振動させると、ヘリウムの粘性によって振動が抑制され、振動のエネルギーロスとして現れる。振動ワイヤーが超伝導であるため、ワイヤー内の電気抵抗によるエネルギーロスはなく、エネルギーロスは粘性抵抗をそのまま反映する。ヘリウムの温度が下がれば超流動状態になり、温度が下がるにつれて粘性抵抗がなくなる。絶対零度付近では、粘性抵抗はほぼゼロになり、ワイヤー内部の摩擦によるエネルギーロスだけが検出される(図3bのA)。この状態での振動のQ値は2,000程度と大きい。振動するワイヤーへ外部から超流動渦をぶつければ渦はワイヤーに付着し、振動とは逆に動く超流動流で渦が伸張を始める。渦の伸張は振動のエネルギーロスとなり、図3bのBのように振動ワイヤーの速度減少として検出される。

ワイヤーの振動によって伸張された渦は、振動が停止すると減衰し消滅する。しかし図1のようにワイヤー表面に凹凸があれば渦は安定に存在し、付着渦として残留する。次にワイヤーを振動させると、渦の長さ(図1の l)に対応する振動速度

以上で渦の伸張が始まる。我々が製作した方法はワイヤー表面を滑らかにし、0.1 μm 程度の凹凸に収まる。このためワイヤー速度が1m/sと速い振動でも、付着残留渦の伸張は起こらない。この性質を利用して、我々は超流動乱流の研究を行ってきた¹⁾。

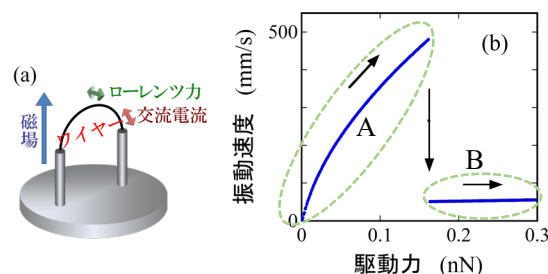


図3(a)渦検出センサーの振動操作。(b)超流動ヘリウム中のワイヤーの応答。駆動力を増加させながら、振動速度を測定している。ワイヤー速度が遅いと渦は伸張しないが(A)、渦輪がぶつかり付着すると渦の伸張でエネルギーロスが起こり、速度が低下する(B)。

4. 超流動乱流研究への応用

超流動は、前節で説明した波の性質があるために、その流れは乱れにくい。しかし渦があると渦芯を循環する流れが超流動の流れを乱し、超流動渦がタングル状態で集まると超流動の乱流を形成する。超流動乱流は超流動渦のみで構成されるため、粘性流体よりもシンプルな流れの構造を持ち、乱流の中の渦の役割を知るための格好の研究対象となる。例えば、超流動乱流の寿命は粘性流体の乱流寿命と似た傾向を示し、流れのランダム性が乱流の性質を反映している事が分かる。また超流動乱流から渦輪が放出される超流動にしか現れない性質があり、渦輪を検出することで乱流の状態を研究することが可能となる。これらの詳細は参考文献1を参照されたい。

5. 参考文献

- 1) 矢野英雄：ながれ 35 (2016) 435

高温超伝導 SQUID 磁気免疫検査定量化に向けた 磁気ナノ粒子フェムト秒レーザー分散法の開発

岡山大学 大学院ヘルスシステム統合科学研究科

紀和 利彦

1. はじめに

免疫検査は、抗原抗体の特異反応を利用して、タンパク質などの生体関連物質、高分子を検出する手法である。疾患の進行を特定するための標的範囲の拡大を支援する抗体の同定、がんや自己免疫疾患、呼吸器疾患、内分泌疾患、腫瘍疾患などの病気の診断などの医療創薬分野のほか、環境・食品分析などに活用されている。現在実用化されている技術としては、ELISA(Enzyme-Linked Immuno Sorbent Assay)法や蛍光法、免疫クロマトグラフィー法などの方法があり、特定の抗原に対する抗体の検出を、試薬を用いて測定する。これらの手法では認識物質である抗体と検出対象である抗原が結合する反応を検出するが、反応後の未結合抗体を洗い流し取り除く工程が複数必要である。このことは、不十分な洗浄による検出感度低下や工程の増加による検査時間の増加を引き起こす。これに対して、磁気免疫検査では、結合反応した磁気ナノ粒子(Bound)と未結合の磁気ナノ粒子(Free)の交流磁場に対する応答の違いから区別すること可能である。従って、洗浄による B/F 分離を行うことなく抗原を検出することができ、迅速簡便な検査が可能であると期待されている。実際に、九州大学の圓福らは高温超伝導 SQUID を用いた検出で B/F 分離することなく pg オーダーの検出を実現している^{1,2)}。一方で、交流磁場に対する磁気ナノ粒子の応答は、磁気ナノ粒子の凝集による体積変化によっても変化する。特に生体関連物質の計測では、試料溶液中にナトリウムイオンなどのイオンを含むため、粒子表面の電荷が遮蔽され、凝集が促進する。抗原抗体反応による応答の変化と凝集による応答の変化を区別することが困難であるため、応答から抗原量を計測するなどの定量検査に課題があった。これに対して我々のグループでは、フェムト秒レーザーを磁気ナノ粒子に照射することで非熱的に再分散させることで抗原抗体反応による応答のみを計測する手法を開発している。

2. 高温超伝導 SQUID 磁気免疫検査装置

図 1 は高温超伝導 SQUID 磁気免疫装置の外観図である。また図 2 は、内部の構成図である。装置は、2 つの円筒型磁気シールドで構成されている。左側のシールドは高温超伝導 SQUID モジュールであり、浸漬冷却用の液体窒素デュアが中に設



図 1 高温超伝導 SQUID 磁気免疫装置の外観

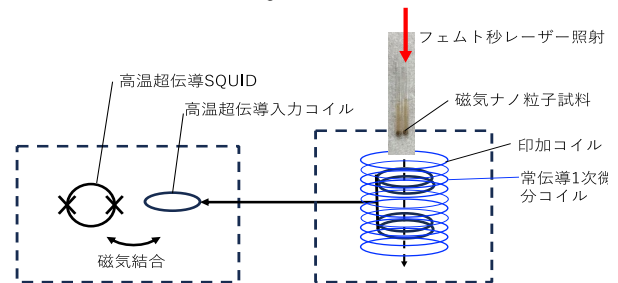


図 2 高温超伝導 SQUID 磁気免疫装置の概念図

置されている。また右側のシールドには、磁気ナノ粒子に磁場を印加する印加コイルと磁気ナノ粒子の磁化による磁場を検出する常伝導 1 次微分コイルが同軸上に設置されている。印加コイルは、周波数 1.06 kHz、振幅 8mT の磁場を印加した。この 2 つのコイルの中心軸上を測定サンプルが通過する。高温超伝導 SQUID で最終的に検出された信号は、印加磁場に対する第 3 次高調波成分がバックル検波され、複素信号として出力される⁴⁾。高温超伝導 SQUID は、ランプエッジ型ジョセフソン接合をもつ DC-SQUID (超伝導センサテクノロジー株式会社 (SUTEC) 製) を用いた。ジョセフソン接合は $\text{La}_{0.1}\text{Er}_{0.95}\text{Ba}_{1.95}\text{Cu}_3\text{O}_y$ (L1ErBCO) / $\text{SmBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ (SmBCO) で構成されている。HTS-SQUID は、同じチップ上に積層された平面型グラディオメータに接続した。本研究では、磁気ナノ粒子の拡散を促進するために、印加コイルに同軸上に光ファイバーを挿入し、フェムト秒レーザーをサンプルへ照射する機構を作製した。光ファイバーは非磁性であり、磁場計測に影響を与えることなく、磁気ナノ粒子を分散させることができる。光ファイバーとして、コア径 $105 \pm 3 \mu\text{m}$ のマルチモードファイバーを用いた。また、レーザー光源

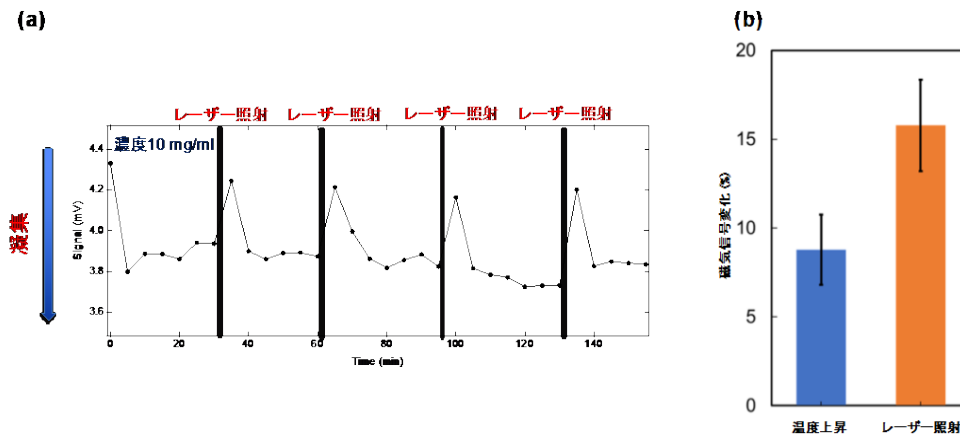


図3 レーザー照射による磁気ナノ粒子分散 (a)経時間変化 (b) 温度上昇とレーザー照射による磁気信号変化比較

として、パルス幅 150 fs, 中心波長 1560 nm, 平均出力 150 mW, 繰り返し周波数 70 MHz のフェムト秒レーザーを用いた⁶⁾。磁気ナノ粒子としては、複数の直径数十 nm のフェライトをポリグリシジメルタクリレートで被覆したものをを用いた。全体の粒径は 180 nm 程度であった。また、研究グループが別途開発した高温超伝導 SQUID を用いて計測した磁気ナノ粒子の磁化曲線の特異値分解による最小二乗法フィッティングにより求めたフェライトコア径は、 17.7 ± 0.38 nm であった。

3. 実験結果・考察

図 3(a)は、フェムト秒レーザー照射によって磁気ナノ粒子が再分散し、磁気信号が回復する過程を示している。磁気ナノ粒子を純水で希釈し鉄濃度を 10 mg/mL に調整したのち、測定を開始した。0 min で調整後、凝集により急激に信号が低下していくことが分かる。これに対して、赤線は、レーザーを照射した時間を表している。レーザー照射により磁気ナノ粒子の分散が促進され、信号が回復していることがわかる。放射温度計を用いた測定では、レーザーを 60 s 照射した時のサンプルの温度上昇は、2 K であった。図 3(b)は、温度が 2 K 上昇した時の磁気信号変化と、レーザー照射による磁気信号変化の比較である。レーザー照射による回復率が約 15.8%であるのに対して、温度上昇による回復率は約 8.8%であった。この結果は、レーザー照射により温度影響以上に効率的に分散が促進されていたことを示している。磁気ナノ粒子の分散状態を調整直後へと回復させることで、再現性の良い磁気信号検出が可能となり、確度の高い定量計測が可能となる。

4. まとめ

本研究では、高温超伝導 SQUID を用いた磁気免疫装置で定量計測する上で課題である磁気ナノ粒子の凝集に対して、フェムト秒レーザー照射により効果的に促進させられることが示された。今後、実際の抗原に対して、定量性の評価を実施していくことで、定量磁気免疫計測を実現する。

5. 参考文献

- 1) K. Enpuku, K. Soejima, T. Nishimoto, and H. Tokumitsu: *J. Appl. Phys.*, **100** (2006) 054701
- 2) 円福啓二：臨床検査, **50**(12) (2006) 1509-1518
- 3) K. Jinno, B. Hiramatsu, K. Tsunashima, K. Fujimoto, K. Sakai, T. Kiwa, K. Tsukada : *AIP Advances*, **9**(12) (2019) 125317
- 4) T. Mizoguchi, A. Kandori, R. Kawabata, K. Ogata, T. Hato, A. Tsukamoto, S. Adachi, K. Tanabe, S. Tanaka, K. Tsukada, K. Enpuku: *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, **26**(5) (2016) 1602004
- 5) S. Adachi, K. Hata, T. Sugano, H. Wakana, T. Hato, Y. Tarutani, K. Tanabe: *Physica C*, **468**(15-20) (2008) 1936-1941
- 6) K. Kishimoto, H. Kuroda, M. Tsubota, K. Yamashita, J. Wang, K. Sakai, M. Ma. Saari, T. Kiwa, K. Tsukada: *ACS Applied Nano Materials*, **5** (2022) 17258-17263
- 7) M. M. Saari, Y. Tsukamoto, T. Kusaka, Y. Ishihara, K. Sakai, T. Kiwa, and K. Tsukada: *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, **394**, (2015) 260-2