

米国における研究と教育の経験

京都大学名誉教授・滋賀県立大学名誉教授

曾 我 直 弘

Research and Teaching Experience in USA

Naohiro Soga

Professor Emeritus, Kyoto University

Professor Emeritus, The University of Shiga Prefecture

1. 渡米の経緯と異なる研究機関での経験

博士課程二年の時に、アメリカン・スタンダード社が New Jersey 州に中央研究所を新設した際に、その Manager となった O. L. Anderson 博士から沢井郁太郎先生を通して、国際色豊かな研究グループを作るために日本からも無機材料博士課程修了者を採用したいとの申し出があった。田代仁教授と相談してそれに応じることとし、博士課程修了まで待ってもらって渡米し、Research Scientistとして高温発電ガラスコーティングやGeO₂系蛍光ガラスの研究を始めた。米国では博士号取得者と未取得者では待遇のみならず研究の主体性でも大きな差があることを知った。それは博士号取得には研究領域以外にも幅広い知識の習得が試されるので、新しい研究課題に取り組む能力があるということに気がついた。そこで、近くのラトガース大学で特別講義を聴いたり、学会のセミナーに出席して知識を広げる努力をした。入社後一年ほど経って、基礎研究に対する会社の支援が少し減ったこともあって優れた研究者が他

社に移り、Anderson 博士も古巣のベル研究所に戻り、同時にコロンビア大学ラumont地質研究所の特任教授となって従来の鉱物学の研究室を鉱物物理学に変える役割を担うこととなった。ポスドクとして一緒に研究しないかと誘われ、この国で生きていくには新しい分野の研究能力を高めるとともに競争的資金を獲得する仕組みを知る必要があると思い、参加した。結局、会社の研究所には二年間滞在したが、流動的な社会における個人と組織の関係や研究ノートなどの知的財産権保護に関することなど貴重な経験をすることができた。

2. 格子動力学との出会いと多結晶セラミックスの研究

ラumont地質研究所では、Anderson 博士の下で地震波による地球内部構造解明の基礎となる造岩酸化物や鉱物の弾性波の温度・圧力依存性に関する研究に携わった。熱的性質はなじみがあったが、弾性波や弾性率は未経験であったので、国立標準局（NBS 現在の NIST）の Spinner 博士の研究室に2週間滞在して、共振法による高温ヤング率と剛性率の測定技術を習った。当時ベル研究所では音波物性の研究が盛んで、弾性波を精密に計測する様々な手法の開発が行われていた。そこで、ベル研究所の非常勤

所員となり、より高温まで測れる弾性率測定装置の試作に取り組むとともに、音波物性を含む格子動力学 (Lattice Dynamics) を学んだ。

格子動力学では結晶格子を構成する原子やイオンが外力によって振動する状態を取り扱うが、そこでの質量、距離、バネ定数は化学における原子量、原子間距離、化学結合力に対応している。しかし、応力や歪はベクトル量のために弾性定数はテンソルとなって、独立な弾性定数の数は結晶の対称性で決まり、最も単純な立方晶系でもその弾性的性質を記述するには C_{11} , C_{12} , C_{44} の3つの定数が必要となる。しかし、結晶粒子がランダムに並ぶ多結晶体では構成粒子の結晶系に関わらず等方性となり、2つの弾性定数で足りる。地震波のp波とs波もそれにあたり、これらを造岩鉱物の弾性定数から求めようとすると、全ての方向に等応力を仮定する Reuss モデル、等歪を仮定する Voigt モデル、あるいは両者の平均をとる Hill モデルが用いられるが、モデルによって得られる値が異なるために一元的に決められず、さらにその圧力や温度依存性の取り扱いにより複雑となる。これを避けるために等方性セラミックス多結晶体を用いて実測しようというのが研究の狙いであった。

3. 固体の状態方程式と高温弾性率

高温・高圧状態にある地球内部の密度や地震波速度の変化を知るにはその構成物質の状態方程式が不可欠である。金属やアルカリハライドなどに対しては Grüneisen の状態方程式が用いられているが、それは振動の非調和項の大きさを表す Grüneisen パラメータが温度によらず1~2のほぼ一定値をとるに基づいている。従って、地殻やマントルを構成する酸化物やケイ酸塩についても Grüneisen パラメータが同様にほぼ一定であることが実証できれば Grüneisen の状態方程式が適用できるはずである。そこで、マグネシア、アルミナ、ケイ酸マグネシウムなどの緻密な試料を入手し、室温か

ら高温までの体積弾性率を測定し、比熱と熱膨張率の値を用いて Grüneisen パラメータを求めると、室温から高温までほぼ一定になることが分かった。また、Ta や W などの耐熱金属の測定から、Grüneisen の状態方程式が高温耐熱材料にも適用できることを確かめた。

一方、セラミックス多結晶体の高温ヤング率については Wachtman らが温度の逆数を変数として2つの定数を用いる経験式を提案していた¹⁾。そこで、上記の研究中に Grüneisen の状態方程式の比熱の温度依存性の項をエンタルピーに置き換えて高温での体積弾性率を計算し、温度の逆数を変数として図示すると、Wachtman らの式と同じ形となることを見出した。ポアソン比の温度依存性を加味してもヤング率が同様となることから、経験式の2つの定数はデータ整理のための実験値ではなく、セラミックスの物性と関係すること、さらには力学量である高温弾性率が熱量であるエンタルピーをもとに推定出来ることを示した²⁾。これが評価され、American Ceramic Society の1968年度 Ross-coffin-Purdy 賞を受けた。この賞はそれまでに Kingery 教授や Stookey 博士など著名な方々も受賞されているので、その後の研究に大きな励みとなった。

ラモント地質研究所ではこれら以外にもアポロ計画で持ち帰る月の岩石の弾性率や音速を測定するプロジェクトにも加わった。ヒューストンにはそれらを保管する NASA の研究所があり、ライス大学が宇宙科学科を新設したので、その助教として1967年に赴任した。

4. 相対状態方程式の検証を行う

ライス大学では地球や天体の内部の状態の解明につながる研究とともに、関連する講義も行ったが、授業中に大学院生から出される様々な質問に応えるために準備に相当の時間を費やした。具体的には、直接調べることが出来ない地球や天体の内部の組成や状態を地震波や重力などの地球物理学的観測データから推察すること

である。そのために Anderson 博士はシリカ、マグネシア、アルミナなどの酸化物や各種ケイ酸塩の体積弾性率をイオン対体積の関数として両対数で表示すると -4 の勾配を持つ一本の直線となることをもとに化学組成をバイパスできる相対状態方程式を提案していた³⁾。しかし、アルカリハライドのような同じ電荷を持つ一連の化合物の体積弾性率を内部エネルギーと関係づけると、体積とは -4 ではなく $-4/3$ 乗の関係になるはずである。そこで、CaO や ZnO などの2価酸化物多結晶体をホットプレスで作り、体積弾性率を測定したところ、予想通りに体積と $-4/3$ 乗の関係になることを確かめた。

一方、体積弾性率と体積が -4 乗の関係となる相対状態方程式は平均原子量がほぼ20の酸化物やケイ酸塩で成り立ち、それ以外の酸化物でもほぼ同じ平均原子量を持つものをつなぐと、同様に -4 乗の勾配を持つ並行線で表示できることが分かった。また、個々の酸化物の圧力や温度による体積弾性率の変化と体積変化との関係が相対状態方程式に近くなることも確かめた³⁾。以上の結果は、これらの酸化物では陽イオンが小さく、酸素イオンの隙間に入るために陽イオンの置換や圧力・温度変化による内部エネルギーの変化が酸素イオン間の距離や配位数の変化に大きく支配されるためと思われる。

5. 地球内部の組成や状態変化を調べる

ライス大学でのもう一つの課題は、苦土かんらん石と鉄かんらん石との固溶体と考えられているマントルにおける両者の比である。上記の弾性率と体積の2つの関係式で平均原子対体積を密度と平均原子量に置き換えると、弾性波速度は密度の1.5乗に比例し、平均原子量の2乗に反比例する。そこで様々な平均原子量を持つ酸化物や鉱物の等方性縦波および横波速度を求め、平均原子量を変数とした弾性波速度と密度との関係式を導出した。この関係式を、地球内部における縦波および横波速度と密度の関係を

示した Press のモデル⁴⁾と重ね合わせることで平均原子量の変化を知ることが出来る。その結果、700 km 以下のマントル底部の平均原子量の値は縦波速度から 22.9 ± 0.3 、横波速度から 23.9 ± 0.3 となり、マントルが苦土かんらん石と鉄かんらん石の固溶体であるとする、両者の割合は四対一程度であることが推察できた。また、地下100 km から200 km に存在する地震波の低速度層は Na, K, Ca などの平均原子量を増加させる組成変化と関係があることや、400 Km と 670 km の深さで地震波速度が急激に増加するのは、圧力誘起による相転位と関係があることも示唆した⁵⁾。

6. おわりに

8年間の米国の研究では主として地球物理学に関わったが、そこに固体化学の視点を取り入れることで新しい知見を得ることができた。石英型およびルチル型の GeO_2 の熱伝導率を測定して低圧型 SiO_2 のデータをもとに高压型の熱伝導率を推測し、従来の予測値より遥かに高いことを示したのも同型異質の比較手法を使ったもので、分野融合の成果といえる。

なお、これらの研究は NFS や NASA の地球科学分野の支援で推進したが、帰国後は功刀教授を始め、学内外の無機工業化学分野の先輩方のご理解とご支援を得て、滞米中の固体地球物理学の研究を通じて学んだ様々なことを材料化学、特にガラスの研究において活かすことが出来たことに感謝している。

文献

1. J. B. Wachtman, Jr, *et al.*, *Phys. Rev.*, 122, 1754-1759 (1961)
2. N. Soga and O. L. Anderson, *J. Am. Ceram. Soc.*, 49, 355-359 (1966)
3. O. L. Anderson and N. Soga, *J. Geophys. Res.*, 72, 5754-5757 (1967)
4. F. Press, *Phys. Earth Planet. Interiors*, 3, 3-22 (1970)
5. N. Soga, *J. Geophys. Res.*, 76, 3983-3989 (1971)