

「極限環境状態における現象」

平成7年度採択研究代表者

近藤 建一

(東京工業大学応用セラミックス研究所 教授)

## 「衝撃波面形成過程と新化学反応プロセス」

### 1. 研究実施の概要

衝撃波面は、超高压力・超高温・超加速度に加え、それらが空間的・時間的に極端な勾配をもった独特なパルス反応場とみることができる。すなわち、凝縮系物質中での衝撃波面の形成は、原子または分子が1 ns (10億分の1秒)以下の時間で極めて大きな加速 ( $10^{13}\text{m/s}^2$ ) を受ける過程で起こり、その初期の励起過程は純粋に力学的なもので、原子や分子の移動とエネルギー移動・変換速度との競合もしくは釣り合いの問題と関係していて、レーザー化学などが対象としている熱的励起あるいは光吸収励起による応答過程とは著しく異なっている。ここには、未開拓でユニークな励起機構・反応機構が存在することは間違いない。したがって、強い圧縮パルスを物質に加えて衝撃波を発生させ、その波面の形成過程や伝播特性を調べることによって、物質に内在しているにもかかわらず、通常の方法では知ることができない、非線形な物性やユニークな化学反応性を顕在化させることができると信じられる。

本研究は、この未開拓の極限環境を定量的に計測・表現し、新物質創製の新しい方法論の構築を目指している。研究開始からこれまで、赤外光からX線域に亘る新しい実時間衝撃波診断技術と新しい衝撃波の発生方法の開発を行い、さらに炭素をセンサー物質としてその物質応答を凍結・評価している。特に、フェムト秒ハイパワーレーザーを用いて強力なX線パルスの発生を行うことができるようになり、さらに、そのパルスと同期した衝撃圧縮状態を実現させ、ピコ秒時間分解型X線回折実験やプラズマ生成過程のピコ秒時間分解型影絵撮影を行うことができるようになった。今後、衝撃圧縮状態だけでなく、一般の光、熱、電場、磁場などの急激な環境変化に対する、原子レベルでの物質応答測定へ応用ができるようにシステムの改良を進めていく。

### 2. 研究実施内容

本年度は、大阪大学レーザー核融合研究センターの巨大レーザー激光12号のマシナタイムが割り当てられ、6週間のレーザー照射実験を行った。本年度の研究で

は、以下の通りほぼ順調に進展している。

## (1) 標準物質の状態方程式と圧力スケール

### (1.1) テラパスカル領域の状態方程式研究

#### (1.1.1) ガス銃による標準物質の状態方程式

ガス銃による対称衝突実験では、補正を必要としない本源的な状態方程式パラメーターを取得できる。そのため、より高速域を目指した三段式軽ガス衝撃銃の試射を行い、動作特性最適化パラメーターを探索している。ヘリウムガスを用いた二段式モードにおいて、6.5km/s の飛翔体速度を達成した。これは、これまででない高効率の装置であることが分かった。

#### (1.1.2) レーザーによるフライヤー加速

阪大レーザー研の巨大レーザー GM-II を用いて、Ta 箔を 10km/s まで、また、激光 XII 号を用いて、Ta 箔を 20km/s まで加速することができた。このフライヤーの平面性は極めて良好であり、高速電子や X 線による予備加熱を避けて、正しい状態式実験を行うことが可能となった。また、2 ビームの部分コヒーレントレーザー (PCL) 光照射によって、平面性が高く、かつ計測有効面積が広いレーザー直接衝撃法を確立した。ここでは、同レーザーによる直接衝撃で、Cu を標準とした間接測定によって、Ta 中に 1.7TPa 以上の衝撃圧力を記録した。

#### (1.1.3) X線サイドライトによる比体積の直接測定

水素のような高圧縮性物質の高圧力領域測定では、比体積の直接測定を行わなければ、測定精度が激減する。そのための準備実験として、激光 XII 号によって X 線サイドライトを発生させ、ナイフエッジによる半影法を試みて成功した。

### (1.2) 衝撃温度の精密測定法の確立と圧力スケールの検証

赤外(7-12 $\mu$ m)の 2 バンド高速放射温度計が完成して、四塩化炭素の衝撃温度測定を行った。S/N 比で決まる 500K を下限とする測定が可能で、7GPa 付近の相転移を見出した。また、近赤外・可視の 4 バンド高速放射温度計が完成して、四塩化炭素の衝撃温度測定を行い、液体試料では固体の場合のような異常な発光が見られず、計算温度との良い一致が認められた。

## (2) テーブルトップレーザーによる超高压力・超高温パルスの発生と計測

### (2.1) レーザーの時間空間プロファイルの制御

テーブルトップシステムでは、将来の普及の意味でも、簡便な方法で時間空間プロファイルを制御する必要がある。マルチレンズアレーでの空間制御を行ったが、充分とは言えず、ランダムフェーズプレートなどを検討中である。

### (2.2) ピコ秒 X線パルスの発生と繰り返し衝撃圧縮とポンプ/プローブ計測

新たに設置したフェムト秒テラワットレーザーシステムのピコ秒ビームを一部分岐し、真空チャンバー内でフェムト秒パルス圧縮して集光し、種々の金属ターゲット

トに照射する実験を行ったところ、プラズマラインよりもむしろ、中性の特性 X 線が強く放射されることが分かった。パルス幅は 6ps 程度である。明らかに高速電子による内殻励起に伴うものであり、偏光依存性、照射角度依存性、エネルギー密度、表面状態、空間放射プロフィールなど、発生機構を検討するためのデータを蓄積している。

また、一部分岐した 300 ピコ秒ビームを真空チャンバー内でアルミ箔に集光して衝撃波を発生させ、側方からその前後の状態の影絵写真をピコ秒パルス X 線で記録したところ、高速電子の発生からプラズマプルームの発生までの様子を時間分解撮影することができた。

発生しているピコ秒パルス X 線によって、シリコン単結晶からの回折 X 線がダイオードアレイセンサによって記録され、100 回程度の積算によって、銅の  $K\alpha_1, K\alpha_2$  を分離して精密に測定することが可能となった。この状態で、300 ピコ秒ビームでシリコン表面を加熱し、熱膨張に伴う変位過程を観測することができた。すなわち、ピコ秒時間分解型ポンプ/プローブ X 線回折システムの骨格が完成し、衝撃波面計測のみならず、さまざまなパルス刺激（圧力、熱、電場、磁場、光）に応答する結晶格子の変化を時間分解観測することが可能となったといえる。

#### (2.3) レーザーラマン分光と繰り返し衝撃圧縮ポンプ/プローブ計測

ナノ秒 YAG レーザーの高調波を励起光源とし、また同レーザーの基本波を衝撃波発生ドライバーとして、衝撃圧縮中のテフロン箔の自発ラマン散乱スペクトルを CCD カメラを用いて時間分解記録することができ、過渡状態の新しいピークを見出した。

### (3) 超高压パルスに対する物質応答と新物質探索研究

#### (3.1) 計算機シミュレーション

16 台のパソコンを連結して、Beowulf システム（並列スーパーコンピュータ）を構築した。1GFLOPS を達成しており、レーザー誘起衝撃波の発生と伝播について、一次元流体計算によって実験の設定を行っている。

#### (3.2) in-situ 計測

衝撃誘起分極や圧力誘起相転移の検出実験の準備を進めている。

#### (3.3) 回収実験

アルミニウム箔およびシリコン板に、ナノ秒、ピコ秒、フェムト秒の各レーザービームを照射して衝撃波を伝播させ、背面でのスポール現象を捉え、計算機シミュレーションとの対応関係を検討した。スポールは衝撃破壊の基本的過程のひとつであり、宇宙ステーションでの安全性などで今後一層重要となることが予想される。これまでは 1 ショット毎の実験であったのに対し、レーザー衝撃法では、コンビナトリアル的高集積実験を容易に行うことができた。

### 3. 研究成果の発表 (論文発表)

- H.HIRAI and K.KONDO: New Materials of Carbon, Amorphous Diamond and Nanocrystalline-Diamond Ceramics, from C60 Fullerene, 5th NIRIM Int. Symp. on Advanced Materials (ISAM' 98), (1998)pp193-196.
- H.HIRAI and K.KONDO: A WIDE VARIETY OF CARBON BEHAVIOR - AMORPHOUS DIAMOND FABRICATED FROM C60 FULLERENE BY SHOCK COMPRESSION AND RAPID QUENCHING-, Shock Compression of Condensed Matter-1997, edited by Schmidt/Dandekar/ Forbes, AIP Conf. Proc. 429, Woodbury, N.Y., (1998)pp675-680.
- Y.HIRONAKA, M.F.NICOL and K.KONDO: SHOCK INDUCED POLARIZATION IN SOME LIQUIDS, Shock Compression of Condensed Matter-1997, edited by Schmidt/Dandekar/ Forbes, AIP Conf. Proc. 429, Woodbury, N.Y., (1998) pp773-776.
- M.YOSHIDA, Y.FUJIMOTO, Y.HIRONAKA, K.G.NAKAMURA, K.KONDO, M.OHTANI and H.TSUNEMI: Generation of picosecond hard x-rays by tera watt laser focusing on a copper target, Appl. Phys. Lett., 73[17], 2393-2395 (1998).
- K.KONDO, M.YOSHIDA and K.A.TANAKA: Shock-Wave Dynamics and Stimulated New Chemical Processes, Proc. 3rd Japan-China High Pressure Seminar (1998) pp.su1-su4.
- M.YOSHIDA, K.WAKABAYASHI, N.KOZU, M.HARA, K.A.TANAKA and K.KONDO: Flyer Acceleration by Laser Plasma, Proc. 3rd Japan-China High Pressure Seminar (1998) pp.su5-su8.
- Y.FUJIMOTO, Y.HIRONAKA, K.NAKAMURA, M.YOSHIDA, M.OHTANI, H.TSUNEMI and K.KONDO: Target material dependence of hard x-ray generation by femtosecond laser irradiation, Proc. Int. Conf. On Optical Technology and Image Processing in Fluid, Thermal, and Combustion Flow (VSJ-SPIE98), (1998) pp.AB115-1-8.
- Y.HIRONAKA, Y.FUJIMOTO, K.NAKAMURA, K.KONDO and M.YOSHIDA: Intensity Enhancement of Pulsed X-Rays Generated from Metal Target Irradiated by Femtosecond Laser, Proc. Int. Conf. On Optical Technology and Image Processing in Fluid, Thermal, and Combustion Flow (VSJ-SPIE98), (1998) pp.AB116-1-4
- M.YOSHIDA, Y.FUJIMOTO, Y.HIRONAKA, K.G.NAKAMURA, K.KONDO, M.OHTANI, K.HAYASHIDA and H.TSUNEMI, Derivation of an x-ray

- spectrum from charge-coupled-device (CCD) image data, Proc. Int. Conf. On Optical Technology and Image Processing in Fluid, Thermal, and Combustion Flow (VSJ-SPIE98), (1998) pp.AB119-1-5.
- 小倉俊幸, O.V.ファティアノフ, M.F.ニコル, 近藤建一: 赤外放射温度計の製作と衝撃温度測定への応用, 火薬学会誌, 59[6], 310-315 (1998).
- T.KOHAM, H.TAMURA and K.KONDO: Spallations of Silicon and Aluminum Induced by Short-Pulsed Laser, Time Dependent Mechanical Response of Engineering Ceramics, in CSJ Series 4, Trans Tech Publ., Zuerich, Switzerland, (1998) pp.117-119.
- Y.HIRONAKA, Y.FUJIMOTO, K.G.NAKAMURA, K.KONDO and M.YOSHIDA: Enhancement of hard x-ray emission from a copper target by multiple shots of femtosecond laser, Appl. Phys.Lett., 74[12], 1-3 (1999).
- Y.HIRONAKA, T.INOUE, Y.FUJIMOTO, K.G.NAKAMURA, K.KONDO and M.YOSHIDA: Time-resolved x-ray shadowgraph experiment of laser ablation of aluminum using laser-induced picosecond pulsed x-rays, Jpn. J. Appl. Phys., 38[3], L242-244 (1999).
- K.KONDO, H.HIRAI and M.YOSHIDA: Amorphous and Nanocrystalline Diamond Synthesized by SCARQ: Shock Compression and Rapid Quenching, Ceramic Engineering and Science Proceedings: 22nd Annual Conference on Composites, Advanced Ceramics, Materials and Structures, 19 [4], 433-444 (1998).
- 平井寿子, 近藤建一: フラレンから透明な結晶ダイヤモンドプレートの合成, NEW DIAMOND, 14[2], 24-25 (1998).
- 近藤建一, 中村一隆, 吉田正典, 田中和夫: 衝撃波研究の新展開, 生産と技術, 109-112 (1999).
- 中村一隆, 弘中陽一郎, 藤本靖, 丹下知之, 井上智春, 近藤建一, 吉田正典: フェムト秒レーザー誘起プラズマによるパルス硬 X 線発生とピコ秒時間分割 X 線回折, 表面科学, 20[3], 48-51 (1999).