

「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、超高圧力・超高温度・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。本研究は、この未開拓の極限環境を定量的に計測する技術を開発し、新物質創製の新しい方法論の構築を目指している。

本年度の最大の成果は、本研究課題の中核として準備を進めてきた衝撃圧縮中の時間分解型X線回折実験に成功したことである。すなわち、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、そのX線パルスと同期した衝撃圧縮状態をシリコン結晶中に実現させ、ピコ秒時間分解型X線回折実験を行うことができた。衝撃波の進展に伴って、時々刻々と変化している結晶格子歪みパターンをストロボ断層写真のように回折パターンが得られたことになる。その結果、埋め込み型センサーや観測窓界面の擾乱が全くない、衝撃波の純粋な時間進展過程の実時間その場観察を行うことができた。この技術は、衝撃波の診断だけでなく、相転移や化学反応の過渡現象を追究するための新しいツールとしても期待される。

また、ナノ秒レーザーを用いた衝撃圧縮中の時間分解型ラマン散乱実験技術が確立した。テフロン<sup>®</sup>の過渡状態のラマンスペクトルが得られ、量子科学計算から、その過渡状態は炭素間の化学結合が一時的に切断されたものと解釈することができた。さらに、フラーレンをセンサー物質として衝撃圧縮回収実験を行って、その物質応答を凍結・評価している。一方、状態方程式に関する研究では、新しい衝撃銃を用いた飛行板衝突による従来型の衝撃圧力の領域拡大を試みるとともに、圧力目盛(スケール)基準となっている食塩の熱放射測定から圧縮状態の検討を行った。また、核融合研究用巨大レーザーを用いた衝撃圧縮技術と実時間診断技術の開発を試みた。

## 2. 研究実施内容

本年度の主な研究成果を以下に示す。

### 2.1 パルスX線発生機構

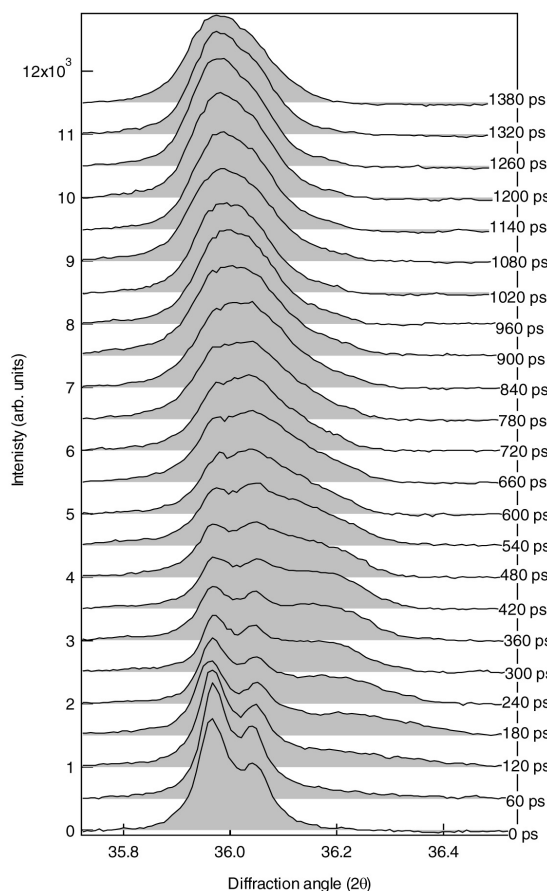
フェムト秒ハイパワーレーザーによるX線発生機構については、全く新しい研究分野であり、世界的に見ても、実験データもほとんどない状態である。本研究では、X線回折へ応用することが目的であるので、その機構解明について十分な時間を割くことができない。しかし、X線発生に対するレーザー光の偏光依存性と放射角度分布の測定、多重照射による増倍現象の発見、放射スペクトル測定によるカットオフ波長が存在することの発見、およびそのPIC (particle-in-cell) シミュレーションモデルの構築など、重要な研究成果が得られている。

### 2.2 ピコ秒時間分解型X線回折

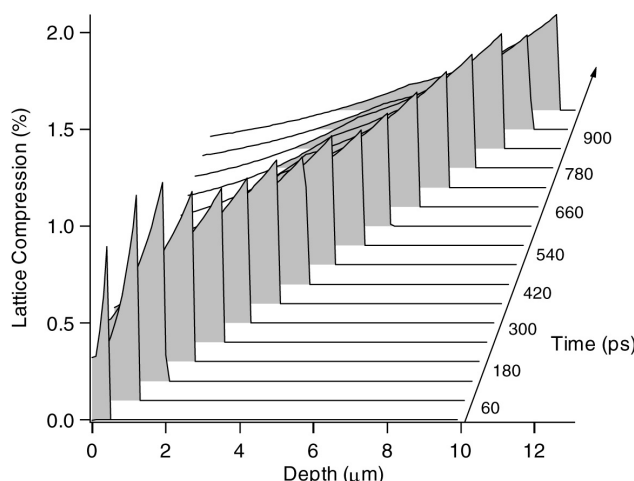
フェムト秒レーザーシステムの最終段増幅器からの出力は、300 psに伸長されており、そのビームを二つに分け、一方をパルス幅圧縮後プローブ用パルスX線発生に用い、他の一方を光学遅延線で遅延時間を調整した後に、衝撃波発生用ポンプ光とし、レーザー誘起衝撃波ポンプ・レーザー誘起X線プローブによるピコ秒時間分解型X線回折計を構築した。衝撃圧縮は不可逆過程であるから、常に新しい試料面を照射できるよう、試料駆動装置にシリコン単結晶をセットし、レーザー照射に同期して回転・並行移動させる必要があり、1  $\mu\text{m}$  台の安定性が測定精度に影響する。

第1図に、得られた60ps毎の時間分解X線回折図形を示した。レーザー誘起の衝撃圧力波が時間とともに波形を変えながら試料内部へ進行し、一方、プローブX線は試料の吸収係数に従った深さまで侵入しており、回折パターンには検出器のS/Nで決定される試料深さの格子から散乱されるX線が寄与することになる。

そこで、各時刻の回折パターンを動力学回折理論で解析した結果、試料表面から内部に亙る各時刻における格子歪み分布が確定され、全データのフィッティングから、第2図に



第1図

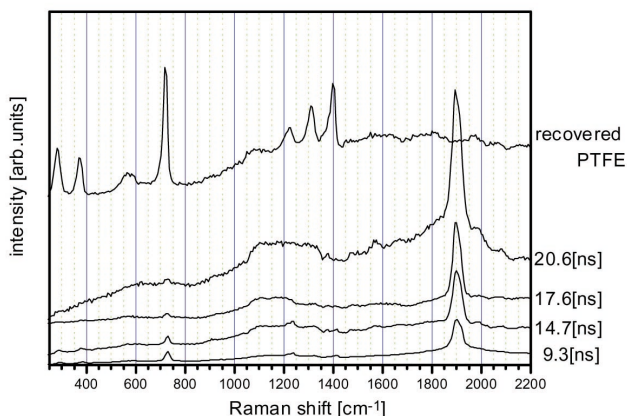


第 2 図

示すように、試料内部に向かって進展している衝撃波の歪み波形の時間分解プロフィールが得られた。得られた最大格子歪みは-1.05%であり、衝撃弾性限界以下であることがわかる。弾性衝撃波速度は9.4 km/sであり、対応する最高圧力は2.18 GPaである。衝撃波の進行に伴ってピーク値が減少しているのは、希薄波と呼ばれる背後からの膨張波の速度が速いためであり、一般の衝撃波理論と一致している。レーザー照射終了後に残留している結晶格子の膨張は、弾性引張波と熱膨張が重畳したものと考えられる。また、レーザー衝撃波の発生機構としてシリコンの誘電破壊についても検討した。

### 2.3 ナノ秒時間分解型ラマン分光

プラズマ閉じこめ型ターゲット構成を用いたレーザー衝撃圧縮発生およびナノ秒時間分解ラマン分光測定装置を開発し、衝撃圧縮下にある物質・材料の微視的状态（特に原子振動・結合状態）の動的変化をナノ秒の時間スケールで観測できるようになった。テフロン（PTFE）の衝撃圧縮実験を行った結果、第3図に示すように、約2.3GPaまでの衝撃高圧力状態において過渡的励起種の時間分解ラマン分光測定に成功し、衝撃圧縮による高分子の過渡的な結合切断反応が起こっていることがわかった。結合切断反応および生成種の振動数に関して、Gaussian 98 Wを用いて *ab initio* 分子



第 3 図

軌道法による理論計算を行った。高分子であるテフロンは $C_{10}F_{22}$ 分子でモデル化した。計算で得られたラマンスペクトルはテフロンのスペクトルと良く一致しており、 $C_{10}F_{22}$ が良いモデルとなっていた。また、生成するラジカル種および2重結合を1つもつ分子種について計算をおこない、実験で得られたスペクトルと比較検討した結果、過渡的状態では $C_2F_4$ が生成している可能性が高いことがわかった。

#### 2.4 圧力標準物質の状態方程式

赤外 (7-12  $\mu\text{m}$ ) の2バンド高速放射温度計および近赤外・可視の4バンド高速放射温度計が完成して、圧力目盛の基準となっている食塩の放射スペクトル及び輝度温度の測定を行い、衝撃温度とその不均一性について検討を行った。四塩化炭素の衝撃温度測定では、計算温度との良い一致が認められたのに対し、固体の場合では25GPaの相転移点以下では、計算温度及び各波長での輝度温度が一致せず、深刻な不均一性が存在すること、およびルミネッセンスの重畳が起きていることがわかった。

三段式衝撃銃の最高発射速度の検証実験では、各要素の機械駆動部分でトラブルが発生し、動作タイミングに必要な改修を行った。また、二段式モードでの発射試験では、ヘリウムによる6 km/s以上の速度が安定して得られている。飛行体の傾きなど、安定性の改善を行っており、さらに、ファイバーラインセンサーを開発中である。

#### 3. 主な研究成果の発表 (論文発表)

K. A. TANAKA, K. KONDO and M. YOSHIDA: "IV-03 EOS related experiments using laser induced shock waves," Annual Prog. Rep. 1998, Inst. Laser Engr., Osaka Univ., (1999) 13.

Y. SASATANI, K. TANAKA, M. YOSHIDA, M. NAKANO, H. TAKENAKA, N. OZAKI, T. NORIMATSU, K. NAGAI, K. NISHIHARA and K. KONDO: "EOS Measurement of polystyrene by Laser-driven Shock Waves," Annual Prog. Rep. 1998, Inst. Laser Engr., Osaka Univ., (1999) 101-102.

Y. HIRONAKA, T. TANGE, T. INOUE, Y. FUJIMOTO, K. G. NAKAMURA, K. KONDO and M. YOSHIDA: "Picosecond Pulsed X-ray Diffraction from a Pulsed Laser Heated Si(111)," Jpn. J. Appl. Phys., 38[8] (1999) 4950-4951.

K WAKABAYASHI, K. G. NAKAMURA, K. KONDO and M. YOSHIDA: "Time-resolved Raman spectroscopy of polytetrafluoroethylene under laser driven shock-compression," Appl. Phys. Lett., 75[7] (1999) 947-949.

Y. FUJIMOTO, Y. HIRONAKA, K. G. NAKAMURA, K. KONDO, M. YOSHIDA, M. OHTANI and H. TSUNEMI: "Spectroscopy of hard x-rays (2-15 keV) generated by focusing tera-watt laser on metal targets," Jpn. J. Appl. Phys., 38[12] (1999) 6754-6756.

近藤建一，中村一隆，弘中陽一郎，丹下知之，井上智春，吉田正典: "極短パルス X線の発生と衝撃・高速現象への応用," 非破壊検査, 48 [7], (1999) 407-413.

H. HIRAI, M. TERAUCHI, M. TANAKA K. KONDO: "Band gap of essentially four-fold coordinated amorphous diamond synthesized from C60 fullerene," Phys. Rev., B60[9] (1999) 6357-6361.

H. HIRAI, M. TERAUCHI, M. TANAKA, K. KONDO: "Estimating band gap of amorphous diamond and nanocrystalline diamond powder by electron energy loss spectroscopy," Diamond and Related Materials, 8 (1999) 1703-1706.

K. A. TANAKA, M. HARA, N. OZAKI, Y. SASATANI, S. I. ANISIMOV, K. KONDO, M. NAKANO, K. NISHIHARA, H. TAAKENAKA, M. YOSHIDA and K. MIMA: "Multi-layered Flyer Accelerated by Laser Induced Shock Waves," Phys. Plasmas, 7[2] (2000) 676-680.