

衝撃波面形成過程と新化学反応プロセス

—衝撃物質科学の新しい領域と発展—

近藤 建一 東京工業大学 応用セラミックス研究所 教授

はじめに

物質を1千万気圧(1TPa、テラパスカル)を越える圧力で圧縮すると、どの物質でも原子当たりの体積は同じようになって、原子の個性が失われてきます。このような超高压力の極限状態は、衝撃圧縮法によってのみ実現することができます。また、その圧力値が、質量、運動量、エネルギーの3保存則のみによって決定されるので、圧力目盛りの一次基準となっていることもあって、定量を旨とする科学にとって衝撃圧縮法は極めて重要な意義があります。

一方、衝撃圧縮はパルス的ですから、物質がパルスの刺激に対してどのような応答をするのかというダイナミクスの視点からも、衝撃圧縮法は重要な研究手法となっています。特に衝撃圧縮波のフロント面は、超高压力、超高温、超加速度と、それらが空間的にも時間的にも大きな勾配をもった反応場となっており、パルスの刺激に対して、物質が応答している最中の振る舞いを見せているところであり、未開拓の極限環境とすることができます。

本研究では、衝撃圧縮の本質でありながら、これまでブラックボックスとされてきた、衝撃波面における励起機構・緩和機構を明らかにするために、その診断に必要となる赤外光からX線域に亘る新しい短時間単発不可逆現象の診断技術の開発を行い、衝撃圧縮のその場観測に応用して、衝撃波面とその背後の現象を実験的に明らかにすることを目的としました。さらに、テラパスカル台の圧力を実現・計測するための技術開発も目的としました。

研究組織は、東京工業大学、物質工学工業技術研究所、大阪大学の各研究室グループから構成されています。主な研究成果は以下の通りです。

主な研究成果

1. フェムト秒テラワットレーザーを用いたピコ秒パルスX線源の開発

フェムト秒(1fs, 1000兆分の1秒)領域の極短パルスレーザー光を集光して金属に照射すると、単位面積当たりのパワー(パワー密度)が $10^{17}\text{W}/\text{cm}^2$ レベルに達し、光の強い電場に金属中の電子が揺さぶられて高温(高速電子)になり、その電子と原子核との衝突によってプラズマが生成される段階的加熱現象が起こります。高速電子は金属と衝突して連続的スペクトルのX線を放射する(制動放射)だけでなく、金属中の内殻電子を励起して線スペクトルの特性X線を強く放射することがわかりました。ターゲット金属を変えるとX線管球と同様に任意の波長のX線をピコ秒オーダーのパルス幅で発生し得る装置となりました。利用できるパルス当たりのX線量は放射光施設よりも1桁以上も多いのです。

この極短パルスレーザーと物質との相互作用は、強光子場科学や高強度場物理と呼ばれる未知の科学領域に踏み込んだものであり、X線発生機構に直接関

係する実験データや飛行時間型荷電粒子測定を通して、いくつかの新しい現象が見出されました。圧力の側面から見ると、100TPaに相当します。

2. レーザーショックとピコ秒時間分解X線回折・X線ラジオグラフ

このレーザーを1部分岐して、光励起やレーザーアブレーションの反作用を利用した衝撃高圧パルスの発生を行うための励起(ポンプ)光として用い、X線をプローブ光とするいわゆるポンプ・プローブ型の時間分解X線回折実験や時間分解影絵写真撮影実験を行うことができました。タイミング時間変化は光が走る距離を変えて行います。シリコン単結晶の一端に300 psに伸張したポンプレーザーを照射し、誘起された結晶の歪みを回折X線の角度と強度の変化として60 ps毎に記録した、時間分解X線回折図(X線回折のストロボ写真に相当)が得られました。各時刻の回折パターンを動力学回折理論で解析すると、最高2.5GPaの弾性的衝撃圧力パルスがレーザーによって発生し、結晶中を音速で進展している変化過程やその後の膨張過程を知ることができました。つまり、結晶中を伝わっている強い音波そのものを格子レベルのストップモーションとして逐次見ることができた訳です。

衝撃波面が形成される厚みはX線パルスの幅、すなわち9psに相当する80nmよりも薄いことがわかりました。波面の中の変化を観測するためには、より短時間のX線パルスの発生を必要とします。X線発生機構そのものが明確にならないと理論限界予測が困難ですが、技術的な短パルス化の目処は得られています。しかし、サブピコ秒のX線幅の計測には、新しい計測技術を開発しなければならないという極限技術特有の問題が起こることは当然のことです。

レーザーアブレーションの現象はレーザーと物質との相互作用によって衝撃波を発生させる重要な機構ですが、このピコ秒のX線パルスを用いて、アブレーション現象の時間分解X線影写真(ラジオグラフ)を取ることができました。その結果、1600km/sを越える超高速の電子が先に放出され、100km/s程度のイオン・プラズマが遅れて放出されることがわかりました。

3. レーザーショックのナノ秒時間分解ラマン測定

ダイヤモンドアンビルセルが超高圧力実験の世界観を変えたように、様々な研究分野でポピュラーなテーブルトップ(卓上型)パルスレーザーを衝撃実験やパルス励起実験に用いることができると、圧力や温度、光などのパルス刺激に対する物質の動的な応答を調べる研究が普及するのに貢献すると思われます。

ここでは、ナノ秒YAGレーザーの基本波を衝撃波の励起(ナノショック)に用い、分岐した2倍高調波をラマン散乱のプローブ光に用いるポンプ・プローブ時間分解ラマン測定技術を開発しました。1J級のレーザーで0.1TPaが可能ですが、良質の平面衝撃波を発生させるところに苦勞がありました。

テフロンを試料としてこの実験を行ったところ、2.3GPa程度の低い衝撃圧にもかかわらず、衝撃圧縮中だけに存在するラマン線が見られ、炭素の結合が過渡的に切れた反応中間体が存在することが見出されました。また、ベンゼンを試料として偏光ラマン散乱の実験を行ったところ、1.6GPaの衝撃波面と並行にベンゼン分子が配向する現象が見出され、ベンゼン分子面内伸縮振動を緩和さ

せながら時間とともに安定な分子配置に至る過程が存在することがわかりました。このような低い衝撃圧でも、破壊力学などで重要な粘弾性体の力学的性質を表現するためには、高速化学反応プロセスを加味しないと正しい振る舞いを表現し得ないことがわかります。

4. 広帯域放射温度計測とNaCl圧カスケール

衝撃圧縮状態の計測において、最も困難なもののひとつに熱的計測があります。熱電対のような温度計を挿入すると、擾乱が生じたり、媒体とセンサーとの間の熱伝導時間が問題となったりするからです。したがって放射温度を計測することになりますが、短時間の放射に十分な感度がある検出器は可視光領域に限られていて、ルミネッセンスなど非平衡放射の影響を強く受けていたのが実情です。

ここでは、赤外線検出器の応答速度とアンプの利得の妥協点を探り、結晶格子の熱振動と直接関係する $10\mu\text{m}$ 帯で、その波長域に透明な物質の 500K までの低い衝撃温度の時間分解測定が可能となりました。四塩化炭素に適用した例では、計算温度と良い一致が見られ、感度や精度が良かったために、微少な変化から重合反応を検出することが出来ました。同様に、食塩結晶の測定に用い、結晶の塑性域や相転移中での非熱的エネルギー局在の存在が明確になり、一様・平衡を仮定した NaCl 圧カスケールの補正值を再検討する必要があることが明らかとなりました。また、このエネルギー局在中心と核生成のカップリングによる熱局在中心が相転移の最中に生成する反応機構も明らかになりました。

5. 三段式軽ガス衝撃銃による飛翔体の超高速加速

圧力の一次基準となる衝撃データを得るには、保存則以外の仮定を含ませないために、穏やかな加速を受けた物質同士の対称衝突実験が欠かせません。二段式衝撃銃は、現在の衝撃圧縮法の中で、その役割を果たすために最も理想に近いものです。しかしながら、加速ガスの臨界音速以上の加速ができない物理的限界と飛翔体の破壊や装置の破壊を防ぐ工学的限界をクリアしながら超高速まで加速する装置には、新しい概念が必要です。

ここでは、動作モード限界の仮説を立てて、一層の高加速の方法を探りました。すなわち予備加熱段を有した三段式軽ガス衝撃銃の試射を行いながら問題点を探索し、さらに二段式軽ガス銃の動作状態を見なおすことにより、NASA のような大型のものでないコンパクトな装置で、秒速 8.9km を達成することができました。国内では大型装置でも 7km/s を越えた例がなく、世界 2 位の記録といえます。この速度で白金同士を衝突させると、丁度 1 TPa となります。

6. 巨大レーザー装置による衝撃圧力計測と飛翔体加速

より高い圧力は、地下核爆発実験か巨大レーザーによって実現されています。本研究でも、大阪大学の核融合研究用激光 XII 号ガラスレーザーによって、極めて平面性の良い衝撃波の発生技術を達成し、タンタル中で 1.7TPa を達成・計測しました。しかし、レーザーによる単純な衝撃圧縮は、衝撃波に先行する高速電子による事前加熱の問題があり、一次基準データとはなり得ません。

そこで、本研究では、レーザーを用いて可能な限り穏やかな飛翔体加速をさ

せて衝突させる衝撃圧力発生法に焦点を絞りました。その結果、タンタル箔を秒速 23km まで平面状に安定して加速することに成功しました。この方法の利点によって、欧米の研究者が同種の方法を採用し始めました。また、大阪大学レーザー核融合研究センターの改組に伴う中心テーマの一つとなっています。

7. 衝撃圧縮凍結法による炭素の変化

衝撃圧縮に伴う加熱は避けられないものですが、衝撃波の反射を用いた段階的圧縮によって加熱の程度を抑制したり、圧縮中の伝熱冷却によって急冷したりすることができる、SCARQ と呼ぶ技術が筆者によって開発されています。特に、炭素は結合の多様性の興味や急冷凍結の容易さから、それらの研究のセンサー物質としても重要な意味があります。

ここでは、 C_{60} フラーレンがダイヤモンドへ代わる途中の状態を急冷凍結したアモルファスダイヤモンドやナノ結晶ダイヤモンド、炭素融液からの球状炭素相などを合成し、そのバンド構造などのユニークな特性を評価しました。また、冷却速度を変化させることによって、凍結のための臨界条件を明らかにすることができました。

拓かれた新しい領域

以上のように、本研究では、技術オリエンテッドなブレークスルーすべき課題を設定して、それらをほぼクリアすることができました。これらの技術は既存の衝撃波科学分野の未踏領域へ踏み込むツールとなっただけでなく、メゾスコピックドメインにおける物質ダイナミクスや強光子場科学などの新しい領域への扉を技術的に開くことができました。

一般に、物質の構造や物性は電磁気的な相互作用に支配されていますが、その二次的効果として、物理的・化学的を問わず、原子位置の移動による歪みやエネルギーが音速もしくは非線形音速（衝撃波）によって伝播する普遍的機構が存在します。従来の衝撃科学はそれらの伝播を連続体として取り扱ってきましたが、同じ速度の現象であっても、原子・分子レベルの微細な機構解明を行うために、より小さな時間分解能で診断する技術が必要であったわけです。

本研究で得られた技術は、まさにメゾスコピックドメインのダイナミクスに迫ることができるものです。すなわち、様々な機能材料や物性の探索に際して、原子集団の安定性を周波数領域の振動分光ではなく、時間領域で直接診断することができます。しかも、繰り返しレーザー衝撃圧縮法によって、合成条件探索を高効率で行うことも可能です。おりしも計算機やアルゴリズムの進歩で第一原理的分子動力学計算がピコ秒台で可能になっていて、新しい物質が計算機によって提示されています。本研究で得られた技術は、まさに計算機がもたらすバーチャルな世界と観測されるリアルな世界を繋ぐ技術といえましょう。

最後に、ご支援を頂いた科学技術振興事業団と筑波極限事務所の皆様、領域アドバイザー各位、各研究機関の事務局各位に、研究チームを代表して心から謝意を表します。