

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 6 月 4 日現在

機関番号：14401

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2017

課題番号：15K13609

研究課題名(和文) 超高压縮異常格子状態の発現と観察

研究課題名(英文) Generation and observation of anomalous lattice dynamics at extreme compression

研究代表者

尾崎 典雅 (Ozaki, Norimasa)

大阪大学・工学研究科 准教授

研究者番号：70432515

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)：パワーレーザーとX線自由電子レーザーを同時に用いたポンププローブ実験により、超高速圧縮下の異常格子状態の発現と観察を行なった。フェムト秒時間分解のリアルタイムその場観察により、極端条件下の格子ダイナミクスを明らかにしていくことを目指して研究を遂行した。グラファイトにおける層間の異常短縮と、それに伴って六方晶構造のダイヤモンドが生成することが明らかになった。新たな手法とメカニズムで新物質が生成できる可能性を示した。

研究成果の概要(英文)：Anomalous lattice responses under extreme compressions were generated and observed by pump-probe experiments using high-power lasers and an X-ray free electron laser. The femtosecond-resolved, in-situ and real-time observations allowed us to understand the dynamics of lattice at the extreme conditions. We revealed that the inter layers of graphite was compressed anomalously and that the creation of hexagonal diamond was induced by the compression. We demonstrated the possibility of creation of new material with these new technique and mechanism.

研究分野：高エネルギー密度科学

キーワード：高エネルギー密度科学 極限科学 物質ダイナミクス 超高压 高強度レーザー 一軸圧縮 超高速

1. 研究開始当初の背景

通常、物質は固有の弾性限界となる応力値を有し、この値を境に弾性変形状態から塑性変形状態へと転移すると考えられている。しかしながら申請者らをはじめ、最近のレーザーショック圧縮実験における高時間分解速度干渉計測の結果は、 10^8 s^{-1} 超の超高ひずみ速度のショック圧縮波前駆部に、音速で伝搬するにもかかわらず弾性限界を超えた応力の状態、いわば“異常弾性圧縮格子状態”の存在が示唆されている。このことは、極端に速い変形場にある結晶格子において、既存のショック物理や材料力学の範疇を超えた高エネルギー密度の異常格子状態が生成可能であることを示唆している。これを決定づけるためには、超高速格子圧縮の方法に加えて、ピコ秒を超える時間分解能を有する格子状態直接観察が必要となる。レーザーショックの方法が著しい発展を見せる一方で、超高ひずみ速度下の格子状態を直接観測する術はこれまで皆無であった。近年登場してきた高エネルギー・高輝度、極短パルスの X 線自由電子レーザー (X-ray free electron laser, XFEL) はこのような状態を観察するための最適なツールであると言ってよい。本研究ではこの状況を鑑み、短パルスパワーレーザーを利用した超高速圧縮法と、X 線自由電子レーザーを利用した超高速 X 線回折法を世界に先駆けて組み合わせ、この超高速変形場の極限的な物質の振舞いを顕在化させ、過渡的格子状態をシングルショットその場観察することで、異常格子状態の発現と観察、およびその理解に挑戦した。

2. 研究の目的

超高速パルス圧縮の過渡的過程において、結晶が経る可能性のある異常格子状態を直接的に観測し基礎的に理解することを目的とする。一軸コヒーレントに印可されるパワーレーザーショックの超高速性が、結晶格子におけるエネルギー散逸の時間スケールを超えるような場合に、通常知られている個々の材料の降伏応力を遥かに超える弾性圧縮的な格子状態が発現する可能性がある。本研究では、パワーレーザー超高速圧縮と X 線自由電子レーザーを用いたポンプ・プローブ実験において、異常格子状態を発現させるとともに、フェムト秒時間分解 X 線回折イメージングによるリアルタイムその場観察でその過程を明らかにしていく。超高速変形に依存して現れうる非平衡非定常な未知物質状態生成および制御の可能性を示す上で必要不可欠な基礎的知見を得ることを目標に挑戦的研究を行う。

3. 研究の方法

パワーレーザーを 10^{13} W/cm^2 程度までのエネルギー密度で物質に照射し、超高歪み速度の衝撃波 (レーザーショック) を物質内部に駆動・伝搬させた。この衝撃波の破面前駆部分

を、格子レベルで厳密に撮像するために、反射型ブラッグ配置の X 線回折イメージングによって観察を行なった。パワーレーザーのパルス幅はサブナノ秒から数ナノ秒の範囲で変化させた。XFEL のパルス幅はおおよそ 7 フェムト秒であった。試料からの X 線回折パターンの撮像には大面積の二次元検出器を用いた。パワーレーザーと XFEL を数ピコ秒レベルで同期した上で、パワーレーザーの照射時刻を数 10 ピコ秒ずつ変化させ、衝撃破面の伝搬に伴う格子の時間変化を観察した。パワーレーザーの典型的な集光スポット径は 150-400 マイクロメートルの範囲内で変化させ、応力と歪み速度を変化させた。XFEL ビームはおおよそ 600×600 マイクロメートルのサイズであり、一方向 (縦方向) を独自の反射ミラーシステムを用いて 30 マイクロメートル程度まで集光し高輝度化した。その場実時間で得られた X 線回折パターンから結晶格子面距離と格子体積を決定するとともに、それらの時間進展から極短時間で変化して行く格子ダイナミクスを可視化した。

試料には、静的超高压の環境において状態方程式や相関係、および構造がよく研究されている金や鉄などを比較対象として、結晶性や配向性を制御できるシリコンやグラファイトに関して異常格子状態に関する検討を行った。これまで検討されてこなかった結晶配向度や圧縮異方性をパラメータに加え、格子状態の変化を観察した。

試料に駆動された衝撃波面における応力および歪み速度を定量的に評価するために、研究代表者によって独自に確立されてきた線結像型レーザードップラー速度干渉計 (VISAR) システムを利用した実験も実施した。試料最裏面における物質速度の時間履歴を高精度に計測し、弾性圧縮領域および塑性圧縮領域における応力と歪み速度を区別して決定した。また、異常格子圧縮状態における電子状態を推量する手がかりを得るため、同じシステムを用いて光反射率の計測も行った。第一原理計算との比較する上での基礎実験として、異常圧縮前後の光反射率の変化を観察した。

4. 研究成果

典型的な層状物質であるグラファイトに対してレーザー駆動超高速一軸圧縮を行い、XFEL によるフェムト秒分解 X 線回折で直接観察し、異常格子状態において格子間距離 (グラファイト面間距離) が変化していく様子を原子レベルで可視化することに初めて成功した。パワーレーザーを用いた動的圧縮の一軸性および超高速性により、グラファイト面内の変形がなく、層間のみが短縮した理想的な一軸圧縮状態が実現されることが実証された。さらに、従来の静的圧縮の高圧実験と比べると、グラファイトの面内構造・原子間距離を保ったまま、層間のみが 3-4 倍以上も短縮されることが明らかになった。この

超高速1軸圧縮の層間距離異常短縮によって、ファンデルワールス結合のグラフェンシート間に新たな化学結合の形成が誘起され、一般的な立方晶のダイヤモンドではなく、六方晶のダイヤモンドが生成されることが確認された。また、この過程の時間進展をピコ秒レベルの時間ステップで観察することで、1) この形成プロセスおよびメカニズムがこれまで知られているものと全く異なること、2) ナノ秒の緩和時間後に従来のメカニズムによる六方晶ダイヤモンドの生成が開始すること、などが明らかになった。パワーレーザー圧縮で誘起される異常格子状態において、一連のダイナミクスの基礎的理解がなされた。また、グラファイト試料の配向性を変化させることで、六方晶ダイヤモンドの生成に対する依存度を実験的に検討した。例えば、モザイクスプレッドがおおよそ3.0°程度に相当するグレードまで配向度が落ちた場合には、六方晶ダイヤモンドに起因するXRDパターンを確認することができなかった。このことから、一軸圧縮によってグラファイトから立方晶系もしくは六方晶系のダイヤモンドに構造変化するプロセスには、試料配向度とグラファイト面および圧縮軸間のなす角が重要であることがわかった。

線結像型レーザードップラー速度干渉計(VISAR)システムを利用し、パワーレーザー照射によって駆動された超高压超高速圧力条件のその場リアルタイム評価を行った。シリコン単結晶に超高速圧力を印加し、ピコ秒時間分解で自由表面速度測定に成功した。これにより、一次元の異常弾性圧縮状態を示唆する前駆波の存在、およびその圧縮状態の時間進展に関する情報を得ることに成功した。この一軸圧縮過程において、従来から知られている弾性限界応力値との比較を行ったところ、5倍以上の弾性圧縮状態が実現されていることがわかった。

同様の計測を高配向性グラファイトに対して実施し、異常弾性状態の前駆波がシリコンと同様に伝播していることを確認することに成功した。従来の動的圧縮技術で測定されている弾性限界以上の異常弾性一軸圧縮状態が生成している事と矛盾しない自由表面速度履歴の結果が得られた。一方で層間の異常短縮にも関わらず、電子状態の変化を表す有意な光反射率の上昇は観測されなかった。当該計画で先駆けて着手した一軸圧縮下グラファイトの第一原理計算手法による電子状態の解析から、吸光度の上昇が確認された。このことは実験において光反射率が増加しなかった結果と整合的であった。以上などから、新たな基盤的研究計画を提案できるレベル以上の研究成果が得られたといえる。

また、ここでの研究を通じて超高压超高速圧縮状態を格子レベルで多角的に観察するための技術基盤の確立にも成功した。高輝度フェムト秒X線プローブを実現する上で重要なターゲットおよび実験ジオメトリを

確立し、フェムト秒ダイナミックX線回折イメージング法の実証実験に成功した。

5. 主な発表論文等

(雑誌論文)(計22件)

1. 高配向性グラファイトにおける層間距離の異常一軸圧縮 (Anomalous Uniaxial Compression of Interlayer Distance in Highly Oriented Pyrolytic Graphite), 碓嶮, 尾崎典雅, 片桐健登, 松岡岳洋, 宮西宏併, 松岡健之, 高橋謙次郎, 瀬戸雄介, 犬伏雄二, 富樫格, 藪内俊毅, 矢橋牧名, 兒玉了佑, レーザー研究, 査読有, 45(8), 513-517 (2017.8), DOI 無
2. Interaction of a highly radiative shock with a solid obstacle, M. Koenig, T. Michel, R. Yurchak, N. Ozaki et al., Phys. Plasmas, 査読有, 24(8), 082707_1-6 (2017.8), DOI:10.1063/1.4996010.
3. 高圧力の科学のためのピコ秒X線回折実験ステーションの開発と運用, 松岡健之, 尾崎典雅, 高圧力の科学と技術, 査読有, 27(2), 109-118 (2017.7), DOI:10.4131/jshpreview.27.109.
4. レーザーショックで探索する“Warm Dense”物質状態 (Exploring Warm Dense Matter with Laser Shock Wave), 尾崎典雅, 高圧力の科学と技術, 査読有, 27(2), 129-136 (2017.7), DOI:10.4131/jshpreview.27.129.
5. 酸化マグネシウムの相転移と融解, 宮西宏併, 尾崎典雅, 他, 高圧力の科学と技術, 査読有, 27(2), 137-143 (2017.7), DOI:10.4131/jshpreview.27.137.
6. Dynamic fracture of tantalum under extreme tensile stress, B. Albertazzi, N. Ozaki, V. Zhakhovsky, T. Matsuoka et al., Science Adv., 査読有, 3(6), e1602705_1-6 (2017.6.2), DOI:10.1126/sciadv.1602705.
7. On the size of the secondary electron cloud in crystals irradiated by hard X-ray photons, A.N. Grum-Grzhimailo, T. Pikuz, A. Faenov, T. Matsuoka, N. Ozaki, et al., Eur. Phys. J. D, 査読有, 71(69), 1-6 (2017.3), DOI:10.1140/epjd/e2017-70767-8.
8. Ultrafast observation of lattice dynamics in laser-irradiated gold foils, N.J. Hartley, N. Ozaki, T. Matsuoka, Y. Inubushi, et al., Appl. Phys. Lett., 査読有, 110(7), 071905_1-5 (2017.2), DOI:10.1063/1.4976541.
9. Coherent X-ray beam metrology using 2D high-resolution Fresnel-diffraction analysis, M. Ruiz-Lopez, A. Faenov, T. Pikuz, N. Ozaki, T. Matsuoka, Y.

- Inubushi, et al., J. Synchrotron Rad., 査読有, 24(1), 196-204 (2017.1), DOI:10.1107/S1600577516016568
10. Decaying shock studies of phase transitions in MgO-SiO₂ systems: implications for the Super-Earths' interiors, R. Bolis, G. Morard, T. Vinci, N. Ozaki, et al., Geophys. Res. Lett., 査読有, 43(18), 9475-9483 (2016.9), DOI:10.1002/2016GL070466
 11. Short-pulse laser-driven x-ray radiography, E. Brambrink, S. Baton, M. Koenig, N. Ozaki, et al., High Power Laser Science and Engineering 4, e30 (2016.9), DOI:10.1017/hpl.2016.31
 12. Shock Compression Response of Forsterite above 250 Gpa, T. Sekine, N. Ozaki, K. Miyanishi et al., Science Adv., 査読有, 2(8), e1600157_1-7 (2016.8), DOI:10.1126/sciadv.1600157
 13. Indirect Monitoring Shot-to-shot Shock Waves Strength Reproducibility during Pump-probe Experiments, T. Pikuz, A. Faenov, N. Ozaki, T. Matsuoka, Y. Inubushi, et al., J. Appl. Phys., 査読有, 120(3), 035901_1-7 (2016.7), DOI:10.1063/1.4958796
 14. Dynamic X-ray diffraction observation of shocked solid iron up to 170 GPa, A. Denoeud, N. Ozaki, A. Benuzzi-Mounaix et al., PNAS, 査読有, 113(28), 7745-7749 (2016.7), DOI:10.1073/pnas.1512127113
 15. Kinetics of the iron - phase transition at high-strain rates: Experiment and model, N.N. Amadou, T. de Resseguier, E. Brambrink, N. Ozaki, et al., Phys. Rev. B, 査読有, 93(21), 214108_1-6 (2016.6), DOI:10.1103/PhysRevB.93.214108
 16. Dynamic compression of dense oxide (Gd₃Ga₅O₁₂) from 0.4 to 2.6 TPa: Universal Hugoniot of fluid metals, N. Ozaki, W. J. Nellis, T. Mashimo et al., Sci. Rep., 査読有, 6, 26000_1-9 (2016.5), DOI:10.1038/srep26000
 17. Experimental and ab initio investigations of microscopic properties of laser-shocked Ge-doped ablator, G. Huser, V. Recoules, N. Ozaki et al., Phys. Rev. E, 査読有, 92(6), 063108_1-14 (2015.12), DOI:10.1103/PhysRevE.92.063108
 18. 3D visualization of XFEL beam focusing properties using LiF crystal X-ray detector, T. Pikuz, A. Faenov, T. Matsuoka, N. Ozaki, Y. Inubushi, et al., Sci. Rep., 査読有, 5, 17713_1-10 (2015.12), DOI:10.1038/srep17713
 19. Laser-shock compression of magnesium oxide in the warm-dense matter regime, K. Miyanishi, Y. Tange, N. Ozaki, et al., Phys. Rev. E, 査読有, 92(2), 023103_1-5 (2015.8), DOI:10.1103/PhysRevE.92.023103
 20. X-ray absorption spectroscopy of iron at multimegabar pressures in laser shock experiments, M. Harmand, A. Ravasio, S. Mazevet, N. Ozaki, et al., Phys. Rev. B, 査読有, 92(2), 024108_1-7 (2015.7), DOI:10.1103/PhysRevB.92.024108
 21. P- -T measurements of H₂O up to 260 GPa under laser-driven shock loading, T. Kimura, N. Ozaki, T. Sano et al., J. Chem. Phys., 査読有, 142(16), 164504_1-5 (2015.4), DOI:10.1063/1.4919052
- [学会発表](計122件)
1. Ultrafast XRD observation of laser-shock induced lattice dynamics, Norimasa Ozaki, 24th Congress & General Assembly of the International Union of Crystallography 2017 (IUCR2017), Hyderabad, India, August 21-28, 2017 (招待講演).
 2. Development of new diagnostics in the interests of pump-probe experiments, T. Pikuz, A. Faenov, N. Ozaki, T. Matsuoka, Y. Inubushi, et al., 2nd International Conference on Matter and Radiation at Extremes (ICMRE), Beijing, China, June 26-30, 2017 (招待講演).
 3. XFEL observation of ultrafast lattice dynamics in laser-produced extreme conditions, N. Ozaki, 6th International Conference on High Energy Density (ICHED2017), Wakayama, Japan, June 5-9, 2017 (招待講演).
 4. Interaction of a highly radiative shock with a solid obstacle, Th. Michel, M. Koenig, R. Yurchak, C. Michaut, B. Albertazzi, G. Rigon, S. Laffite, E. Falize, L. Van Box Som, Y. Sakawa, T. Sano, H. Shimogawara, R. Kumar, Y. Hara, T. Morita, Y. Kuramitsu, P. Barroso, G. Gregori, R. Kodama, N. Ozaki et al., 6th International Conference on High Energy Density (ICHED2017), Wakayama, Japan, June 5-9, 2017.
 5. Ultrafast XRD observation of laser-shock induced lattice dynamics in phase transformation phenomenon, Norimasa Ozaki, 9TH International Workshop on Warm Dense Matter, Vancouver, Canada, Apr. 9-12, 2017 (招待講演).

6. Laser-shock induced lattice dynamics in phase transformation phenomena, N. Ozaki, The Ninth Meeting of Research Consortium on High-pressure Research, Kumamoto, Japan, March 23-24, 2017 (招待講演).
7. Ultrafast XRD observation of laser-shock induced lattice dynamics in phase transformation phenomena using SACLA XFEL, N. Ozaki, T. Matsuoka, et al., The 31st International Congress on High-Speed Imaging and Photonics (ICHSP31), Osaka, Japan, Nov. 7-10, 2016 (招待講演).
8. Insulating, semiconducting and metallic states of water at dynamic compression by laser-driven shock wave, Takuo Okuchi, Norimasa Ozaki, et al., Water X: Exotic properties of water under extreme condition, Nice, France, Jul. 13-16, 2016 (招待講演)
9. High-energy density experiments on planetary materials using high-power lasers and X-ray free electron laser, Norimasa Ozaki, 19th Biennial Conference of the APS Topical Group on Shock Compression of Condensed Matter (SCCM-2015), Tampa, US, Jun. 14-19, 2015.
10. 高強度レーザーとX線自由電子レーザーを用いた極限物質材料研究, 尾崎典雅, 第65回応用物理学会春季学術講演会, 早稲田大学, 2018年3月17-20日 (招待講演)
11. 100ジュール級ナノ秒高輝度パルスによる加工基盤技術の開発, 栗田隆史, 弘中陽一郎, 三浦永祐, 黒田隆之助, 重森啓介, 宮西宏併, 松岡健之, 尾崎典雅, 他, レーザー学会学術講演会第38回年次大会, みやこめっせ京都市勤業館, 2018年1月24-26日 (招待講演)
12. レーザー超高压による新物質材料創成 惑星形成からものづくりまで, 尾崎典雅, 第37回先端光量子科学アライアンスセミナー, 東京大学, 2017年12月14日.
13. ハイパワーレーザーを用いた高エネルギー密度物質研究とその展望 (High Energy Density Matter Studies with High-Power Laser and Its Perspective), Ozaki Norimasa et al., レーザー学会学術講演会第36回年次大会, 名城大学 (愛知), 2016.1月9-11日, (受賞記念講演)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

尾崎典雅 (OZAKI, Norimasa)
大阪大学大学院工学研究科・准教授

研究者番号: 70432515

(2) 連携研究者

松岡 健之 (Matsuoka, Takeshi)
大阪大学先導的学際機構・特任准教授
研究者番号: 70581635

(3) 連携研究者

犬伏 雄一 (Inubushi, Yuichi)
高輝度放射光施設・研究員
研究者番号: 40506250