

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 11 日現在

機関番号：14401

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2010～2013

課題番号：22684032

研究課題名(和文) X線散乱計測を用いた化合物・混合系中の固体-プラズマ遷移領域化学反応診断

研究課題名(英文) X-ray scattering diagnostics of chemical processes in compound and mixture under solid-plasma transition

研究代表者

尾崎 典雅(Ozaki, Norimasa)

大阪大学・工学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：70432515

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 20,600,000円、(間接経費) 6,180,000円

研究成果の概要(和文)：パワーレーザーで生成される動的極超高压物質状態を巨視的及び微視的にその場リアルタイムで観察するための実験研究基盤の確立に成功した。圧力-体積-温度の巨視的パラメータの計測と同時に、弾性・非弾性X線散乱スペクトル計測を行い、ミクロな物質状態と反応プロセスの診断を可能とした。

炭素の高密度安定相(ダイヤモンド)の固体-プラズマ遷移領域における物質状態と反応プロセスを可視化し、1千万気圧超および2万度超の極限環境化の物質が中距離的な液体構造を持つこと、巨大惑星深部に相当する強結合性を有することなどが明らかとなり、高エネルギー密度物質科学の新たな展開の可能性を示した。

研究成果の概要(英文)：High-power laser experimental platform has been developed to investigate dynamically ultrahigh pressured materials macroscopically and microscopically. Measurement of elastically and inelastically scattered X rays was performed simultaneously with measurements of macroscopic parameters including pressure, volume (density), and temperature, resulting in micro-macro diagnosis of materials and its chemical processes.

High-pressure stable phase of carbon, diamond, was investigated in the transient region between solid and plasma. We revealed that the carbon system under 10 million atmospheric pressures and 20 thousand kelvin temperatures has a mid-range liquid like structure and an unprecedented ion-ion correlation corresponding to interior of giant planets. This work opened new frontier of high-energy density material sciences.

研究分野：プラズマ科学

科研費の分科・細目：プラズマ科学

キーワード：物性実験 極限物性 高エネルギー密度 プラズマ・核融合 地球・惑星内部構造

1. 研究開始当初の背景

物質に入射した X 線は、物質中の電子との相互作用によって散乱を受ける。この散乱 X 線を分光すると物質中の電子の密度と温度に依存したスペクトルが得られる。一般に高エネルギー密度プラズマの診断は、極短パルスレーザー照射によって生成するプラズマ X 線パルスなどを用いて行われる。高密度プラズマの電子密度と電子温度を同時に診断可能な強力な方法である X 線散乱計測については、特にレーザー爆縮核融合関連の主要研究所において精力的に研究が進められている。Glenzer と Gregori らは、初めて高温高密度プラズマからの散乱 X 線スペクトルの計測に成功し、コンプトン散乱ピークのブロード化とダウンシフトから電子密度と温度を決定している (Glenzer et al., 2003)。近年では、核融合のみならず、状態方程式や惑星科学研究などと絡めて、レーザー衝撃波圧縮によって生成される比較的低温 (数万度程度) で高密度の “Warm Dense Plasma” からの X 線散乱計測実験に注目が集まっている (Ravasio et al., 2007; Garcia Saiz et al., 2008; Kricher et al., 2009)。研究代表者は、エコールポリテクニクの Ravasio らと共に、これに先んじて衝撃超高压縮された物質についての X 線散乱計測を試み、高压縮されたアルミニウムイオンの相関効果が、弾性散乱ピークの大幅な減少に影響していることを明らかにした (Ravasio et al., 2007)。

しかしながらこれまでの研究においては、固体状態からプラズマに完全に転移しきっていない、いわば過渡領域におけるミクロな物質状態に関する情報は、媒介する複雑な化学反応などが原因となって明らかにされていない。この領域では、可視光域の失透現象などが起こり、計測の困難さが増すことが原因のひとつでもある。また、炭化水素をはじめとする化合物の光学的反射率データと、理論データベースとの深刻な不一致は、高压下で解離・部分電離化学反応した炭素と水素の複雑な混合系状態の記述に起因していることは明らかである。また、Si など光学的に不透明な半導体などに至っては、衝撃高压下での金属性相転移が予測されているにも拘らず、調べる術が無く、その場実時間のミクロ物性計測は全く手を付けられていないのが現状である。レーザー動的圧縮と X 線散乱の方法は、これら現代物質科学の重要な課題を解決する極めて有用なツールであり、ひいてはハイパワーレーザー科学に立脚した新しい凝縮物質科学の開拓に向けて、決定的な役割を担うはずである。

2. 研究の目的

本研究では、パワーレーザー動的圧縮法と X 線弾性・非弾性散乱計測を用いて、マルチメガバール圧力・1 eV 温度領域 (数 100 万気圧・1 万度) の固体-プラズマ遷移領域に関してダイナミックな超高压環境下における物質

診断研究を初めて行い、特に複雑系中の物質状態や化学反応素過程の描像を明らかにすることを目的とする。化合物を始めとする種々の誘電体は動的超高压高温下で熔融、さらに解離・電離を通じて最終的に原子流体 (理想プラズマ) へと転移するが、この固体-プラズマ遷移過程に介在する化学反応素過程を理解するための実験的な試みを開始することで、超高速の炭化水素化合物-衝撃誘起ナノダイヤモンド相転移など、ユニークな物質や物性の発現に繋がる新しい極限物質研究領域の展開に向けて足がかりを得ることを目標とする。

3. 研究の方法

(1) ハイパワーレーザーを試料に照射して動的超高压縮状態を生成し、同期して入射したレーザープラズマ X 線プローブの散乱スペクトルを結晶分光器システムによって計測した。固体-プラズマ遷移領域の物質状態におけるミクロな描像を実験的に得るために、スペクトル形状、弾性・非弾性散乱項強度などの解析を行った。

(2) レーザー衝撃超高压下の物質状態は、線結像型レーザードップラー速度干渉計 (VISAR) と線結像型放射輝度温度計 (SOP) を X 線診断系と独立に使用して観測することでキャラクタライズした。散乱スペクトル解析において信頼性の高い拘束条件を得るために、圧縮状態における圧力-体積-温度の熱力学的状態量の絶対値を独立に決定した。これら熱力学的パラメータの変化から熔融をはじめとする状態変化や相転移を検討・確認した。

(3) 実験で得られた熱力学的状態量をもとに、第一原理的分子動力学計算を実施した。極限極端条件下の物質状態に関する理解を深めるために、構造や電子状態に関する詳細な情報を得た。

(4) 得られた実験技術の基盤を展開して、結晶構造変化を直接的に得るために X 線回折構造解析などを同時に実現するピコ秒・フェムト秒時間分解ポンププローブ実験を開始した。

4. 研究成果

(1) 異なる 2 台の結晶分光器を用いて、非共同散乱計測と光源スペクトルのキャラクタライズを同時に実施できるシステムを構築し、基盤となる実験技術手法を確立した。光源にはレーザー駆動銅プラズマからの He- (8-9 keV) 線などを用いた。衝撃波圧縮状態の決定には、線結像型レーザードップラー速度干渉計 (VISAR) と線結像型放射輝度温度計 (SOP) を改良して用いた。干渉縞コントラストを改善するため、高ダイナミックレンジストリークカメラシステムを導入し

て、世界トップレベルのシステムを確立した。

(2) 固体-プラズマ遷移領域における物質状態と反応プロセスを可視化するために、レーザー衝撃波圧縮を用いたポンププローブ実験を実施した。炭素の高密度安定相であるダイヤモンドをレーザー衝撃圧縮し、1千万気圧(1 TPa)を超える極超高压領域の極限物質状態を生成した。独自に開発した多層膜ターゲットを使用することにより、従来の研究例に比べて1/10程度のレーザーエネルギーで2 TPaもの圧力状態を生成することに成功した。レーザー衝撃波圧縮極超高压状態量(圧力-密度-温度)の決定は、レーザードップラー速度干渉計(VISAR)と放射温度計(SOP)からなる高速光学計測により行った。

(3) 生成された極超高压状態の炭素にプローブ X線を入射し、弾性-非弾性散乱した X線のスペクトルを湾曲結晶分光器によって取得することに成功した。極超高压の溶融線より高温の領域における散乱スペクトルを世界で初めて計測し、コンプトン散乱強度から高压液体炭素の金属状態における自由電子数を定量的に診断した。

(4) 実験によって得られた密度-温度の状態量を用いて理論的な散乱スペクトルを求め、実験で得られたスペクトルと比較することによって、極超高压力下の炭素の自由電子数を評価した。得られた価電子数とイオン間距離及び電子温度を用いて系の結合定数を評価すると、従来の予測に反して極めて高い値(~100)を得た。極限状態の炭素イオンが特異な強結合性を有することを示唆している。これは初期のダイヤモンド結晶の化学結合の強さと潜熱の大きさに起因していると予想される。この強相関性は独立に得た状態方程式実験データの振舞いとも調和的であった。本研究によって、世界に先駆けて極超高压下の物質のミクロな描像が明らかになり始めた。

(5) ダイヤモンドをレーザー衝撃圧縮する事で実現された1千万気圧超-2万度超の状態量をもとに、第一原理分子動力学計算を実施し、強結合状態の炭素のシステムの描像をさらに明らかにする事に成功した。このような超高温の極限状態において、部分的に共有結合性の化学結合が存在しうる事が初めて示唆された。密度汎関数法を用いて求められた炭素イオンの二対分布関数からは、中距離的な液体構造を示唆する知見が得られた。これは X線散乱スペクトル計測からの予測と調和的であった。

(6) さらに超高速のピコ秒の時間分解能で物質ダイナミクスを可視化するため、パルス幅 10 fs の X線自由電子レーザーをプローブとして用いる実験プラットフォームの構築

への展開および予備実験を開始した。フェムト秒オプティカルレーザーと X線自由電子レーザーを同期して角度およびエネルギー分解の X線散乱スペクトルデータや X回折構造解析実験が可能となってきた。

〔雑誌論文〕(計 19 件)

全て査読有り

1. “Characterization of laser-driven ultrafast shockless compression using gold targets”, K. Miyanishi, N. Ozaki, E. Brambrink, N. Amadou, A. Benuzzi-Mounaix, R. Cauble, A. Dizieret, F. Guyot, M. Koenig, G. Morard, T. de Resseguier, A. Ravasio, R. Smith, Y. Tange, T. Vinci, H. G. Wei, and R. Kodama, *J. Appl. Phys.* (掲載予定)
2. “その場実時間 X線回折によるレーザー衝撃圧縮下の物質ダイナミクス観測実験”, 佐藤友哉, 尾崎典雅, 浦西宏幸, 浅海雄人, 池谷正太郎, 大谷栄治, 喜田美佳, 近藤良彦, 宮西宏併, 小川剛史, 坂和洋一, 佐野孝好, 兒玉了祐, レーザー研究 (掲載予定)
3. “Progress in warm dense matter study with applications to planetology”, A. Benuzzi-Mounaix, S. Mazevet, A. Ravasio, T. Vinci, A. Denoed, M. Koenig, N. Amadou, E. Brambrink, F. Festa, A. Levy, M. Harmand, S. Brygoo, G. Huser, V. Recoules, J. Bouchet, G. Morard, F. Guyot, T. de Resseguier, K. Miyanishi, N. Ozaki, F. Dorchies, J. Gaudin, P. M. Leguay, O. Peyrusse, O. Henry, D. Raffestin, S. Le Pape, R. Smith, and R. Musella, *Physica Scripta T161*, 014060 (2014).
4. “高压相ダイヤモンド BC8”, 兒玉了祐, 尾崎典雅, *New Diamond* 112, 10-12 (2014).
5. “Hugoniot and mean ionization of laser-shocked Ge-doped plastic”, G. Huser, N. Ozaki, T. Sano, Y. Sakawa, K. Miyanishi, G. Salin, Y. Asaumi, M. Kita, Y. Kondo, K. Nakatsuka, H. Uranishi, T. Yang, N. Yokoyama, D. Galmiche, and R. Kodama, *Physics of Plasmas* 20, 122703 (2013).
6. “Direct laser-driven ramp compression studies of iron: A first step toward the reproduction of planetary core conditions”, N. Amadou, E. Brambrink, A. Benuzzi-Mounaix, G. Huser, F. Guyot, S. Mazevet, G. Morard, T. de Resseguier, T. Vinci, K. Miyanishi, N. Ozaki, R. Kodama, T. Boehly, O. Henry, D. Raffestin, M. Koenig, *High Energy Density Physics* 9 243-246 (2013).
7. “シリコン中を伝搬する衝撃波面の直接観測”, 横山尚也, 尾崎典雅, 佐野智一, 曾田智史, 木村友亮, 宮西宏併, 浅海雄

- 人, 浦西宏幸, 佐野孝好, 坂和洋一, 廣瀬明夫, 兒玉了祐, *Journal of Plasma and Fusion Research* 88, 249 (2012).
8. “Shock-induced silicate vaporization: The role of electrons”, K. Kurosawa, T. Kadono, S. Sugita, K. Shigemori, T. Sakaiya, Y. Hironaka, N. Ozaki, A. Shiroshita, Y. Cho, S. Tachibana, T. Vinci, S. Ohno, R. Kodama, and T. Matsui, *Journal of Geophysical Research* 117, E04007 (2012).
 9. “Formation of High-Density Dislocations and Hardening in Femtosecond-Laser-Shocked Silicon”, M. Tsujino, T. Sano, T. Ogura, M. Okoshi, N. Inoue, N. Ozaki, R. Kodama, K. F. Kobayashi, and A. Hirose, *Applied Physics Express* 5, 022703 (2012).
 10. “Synthesis of submicron metastable phase of silicon using femtosecond laser-driven shock wave”, M. Tsujino, T. Sano, O. Sakata, N. Ozaki, S. Kimura, S. Takeda, M. Okoshi, N. Inoue, R. Kodama, K. F. Kobayashi, and A. Hirose, *Journal of Applied Physics* 110, 126103 (2011).
 11. “Temperature measurements of Electrostatic Shocks in laser-produced counter-streaming plasmas”, T. Morita, Y. Sakawa, Y. Kuramitsu, H. Tanji, H. Aoki, T. Ide, S. Shibata, N. Onishi, C. Gregory, A. Diziere, J. Waugh, N. Woolsey, Y. Sano, A. Shiroshita, K. Shigemori, N. Ozaki, T. Kimura, K. Miyanishi, R. Kodama, M. Koenig, and H. Takabe, *Astrophysics and Space Science* 336, 283 (2011).
 12. “高強度レーザー衝撃圧縮を用いたメガバール領域における水の状態方程式計測”, 木村友亮, 尾崎典雅, 奥地拓生, 佐野孝好, 清水克哉, 宮西宏併, 遠藤恭, 實井辰也, 曾田智史, 佐野智一, 寺井智之, 廣瀬明夫, 掛下知行, 坂和洋一, 兒玉了祐, *日本惑星科学会誌* 20, 36 (2011).
 13. “Laser-shock compression and Hugoniot measurements of liquid hydrogen to 55 GPa”, T. Sano, N. Ozaki, T. Sakaiya, K. Shigemori, M. Ikoma, T. Kimura, K. Miyanishi, T. Endo, A. Shiroshita, H. Takahashi, T. Jitsui, Y. Hori, Y. Hironaka, A. Iwamoto, T. Kadono, M. Nakai, T. Okuchi, K. Otani, K. Shimizu, T. Kondo, R. Kodama, and K. Mima, *Physical Review B* 83, 054117 (2011).
 14. “In-situ spectroscopic observations of silicate vaporization due to >10 km/s impacts using laser driven projectiles”, K. Kurosawa, S. Sugita, T. Kadono, K. Shigemori, Y. Hironaka, K. Otani, T. Sano, A. Shiroshita, N. Ozaki, K. Miyanishi, T. Sakaiya, Y. Sekine, S. Tachibana, K. Nakamura, S. Fukuzaki, S. Ohno, R. Kodama, and T. Matsui, *Geophysical Research Letters*, 37, L23203 (2010).
 15. “パワーレーザーで拓く超高压と物質の世界”, 尾崎典雅, 佐野孝好, 真下茂, 佐野智一, 兒玉了祐, *プラズマ・核融合学会誌*, 86, 604 (2010).
 16. “Proton radiography of a shock-compressed target”, A. Ravasio, L. Romagnani, S. Le Pape, A. Benuzzi-Mounaix, C. Cecchetti, D. Batani, T. Boehly, M. Borghesi, R. Dezulian, L. Gremillet, E. Henry, D. Hicks, B. Loupias, A. MacKinnon, N. Ozaki, H. S. Park, P. Patel, A. Schiavi, T. Vinci, R. Clarke, M. Notley, S. Bandyopadhyay, and M. Koenig, *Physical Review E* 82, 016407 (2010).
 17. “Hugoniot and temperature measurements of liquid hydrogen by laser-shock compression”, T. Sano, N. Ozaki, T. Sakaiya, K. Shigemori, M. Ikoma, T. Kimura, K. Miyanishi, T. Endo, A. Shiroshita, H. Takahashi, T. Jitsui, Y. Hori, Y. Hironaka, A. Iwamoto, T. Kadono, M. Nakai, T. Okuchi, K. Otani, K. Shimizu, T. Kondo, R. Kodama, K. Mima, *Journal of Physics: Conference Series* 244, 042018 (2010).
 18. “Significant static pressure increase in a precompression cell target for laser-driven dynamic compression experiments”, T. Kimura, N. Ozaki, T. Okuchi, T. Terai, T. Sano, K. Shimizu, T. Sano, M. Koenig, A. Hirose, T. Kakeshita, Y. Sakawa, and R. Kodama, *Physics of Plasmas* 17, 054502 (2010).
 19. “Impact experiments with a new technique for acceleration of projectiles to velocities higher than Earth’s escape velocity 11.2 km/s”, T. Kadono, T. Sakaiya, Y. Hironaka, K. Otani, T. Sano, T. Fujiwara, T. Mochiyama, K. Kurosawa, S. Sugita, Y. Sekine, W. Nishikanbara, T. Matsui, S. Ohno, A. Shiroshita, K. Miyanishi, N. Ozaki, R. Kodama, A. M. Nakamura, M. Arakawa, S. Fujioka, and K. Shigemori, *Journal of Geophysical Research* 115, E04003 (2010).
- [学会発表](計 106件)
1. 尾崎典雅, パワーレーザーによる新物質創成, 日本物理学会 2013年秋季大会, 徳島大学(徳島), 2013年9月27日(招待講演)
 2. Norimasa Ozaki, Tomoaki Kimura, Takuo Okuchi, 4 Martin French, Tomoyuki Kakeshita, Mika Kita, Kohei Miyanishi, Ronald Redmer, Takayoshi Sano, Tomokazu Sano, I Katsuya Shimizu, Tomoyuki Terai, and Ryosuke Kodama, Warm Dense Water in 100 GPa Pressure

- Range Corresponding
to Earth-size Exoplanetary Interior
Conditions, The Eighth
International Conference on Inertial Fusion
Sciences and Applications (IFSA 2013),
Nara, Japan, September 8-13, 2013 (invited)
3. William Nellis, N. Ozaki, R. Ahuja, T. Mashimo, M. Ramzan, T. Kaewmaraya, Nature of the interiors of Uranus and Neptune, 2013 Joint APS-SCCM / AIRAPT Conference, Seattle, USA, July 7-12, 2013 (Plenary)
 4. Norimasa Ozaki, Combined X-ray Scattering and VISAR Measurements of Warm Dense Carbon Using a Novel Technique of Shock and Release, the 7th International workshop on Warm Dense Matter (WDM2013), Saint-Malo, France, June 23-26, 2013 (Invited)
 5. 尾崎典雅, 極限環境物性：パワーレーザー超高压と新しい観測の目, 第26回日本放射光学会年会放射光科学合同シンポジウム, 名古屋大学(愛知), 2013年1月12-14日(招待講演)
 6. 尾崎典雅, 佐野智一, 関根利守, 真下茂, 佐野孝好, 奥地拓生, 犬伏雄一, 木村友亮, 宮西宏併, 浦西宏幸, 浅海雄人, Michel KOENIG, Gianluca GREGORI, Alessandra BENUZZI-MOUNAIX, 坂和洋一, 兒玉了祐, レーザーショック超高压力とコヒーレント光源の融合, 第53回高压討論会, 大阪大学(大阪), 2012年11月7-9日(招待講演)
 7. 尾崎典雅, パワーレーザーで探る極超高压下の物質の世界, 高速度イメージングとフォトンクスに関する総合シンポジウム 2011, 熊本大学(熊本), 2011年12月1-3日(招待講演)
 8. Norimasa Ozaki, Extreme Hugoniot/off-Hugoniot measurements for carbon and water with optical/x-ray diagnostics, International Workshop on Warm Dense Matter – 2011, California, USA, June 5-8, 2011 (Invited)
 9. Norimasa Ozaki, Basics and Applications of Laser-Driven Shock Phenomena, The Second International Conference on Laser Peening, San Francisco, USA, April 18-21, 2010 (Invited)

〔図書〕(計 0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0件)

取得状況(計 0件)

〔その他〕

ホームページ等

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) 研究協力者

Alessandra Benuzzi-Mounaix：フランス国立科学センター・エコールポリテクニック LULI 研究所・グループリーダー

Gianluca Gregori：オックスフォード大・教授

Stephane Matzeve：パリ天文台・所長