

平成 29 年 6 月 27 日現在

機関番号：84502

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2013～2016

課題番号：25707041

研究課題名(和文) X線自由電子レーザーを用いたポストスピネル相転移のフェムト秒時分割観察

研究課題名(英文) Femto-second time resolved observation of post-spinel transition using X-ray free electron laser

研究代表者

丹下 慶範 (Tange, Yoshinori)

公益財団法人高輝度光科学研究センター・利用研究促進部門・研究員

研究者番号：70543164

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 20,400,000円

研究成果の概要(和文)：パルス幅10フェムト秒のX線自由電子レーザーを用いることで、衝撃圧縮された物質の応答挙動を超高速度時分割観察した。パルス幅3ナノ秒の高強度レーザーにより発生した衝撃波を厚さ数10ミクロンの薄膜状結晶試料に導入し、衝撃波の伝播に伴って試料内部で起きる結晶構造の時系列変化を、数100ピコ秒単位で詳細に記載した。その結果、準一軸圧縮下での変形機構の変化やナノ多結晶化など、材料物質加工分野と深く関連する物質挙動の時間発展を明らかにすることができた。

研究成果の概要(英文)：Ultrafast time resolved in situ X-ray diffraction measurements for shock-compressed materials were carried out by using an X-ray free electron laser. Laser-induced shock compression experiments were conducted using 3-ns pulse width high-power pump laser, and in situ observation measurements were carried out using 10-fs pulse width XFEL probe. A time series variation in lattice parameters and nano-crystallization of polycrystalline corundum was observed for 10 ns during shock-wave propagation. This result sheds light on our understanding elastovisco-plastic transition, nano-crystallization, and micro futures in brittle materials.

研究分野：高圧地球科学

キーワード：X線自由電子レーザー レーザー衝撃圧縮実験 高速時分割測定 X線回折測定 コランダム

1. 研究開始当初の背景

国家基幹技術としてX線自由電子レーザー施設 SACLA が建設され、2012年3月より共用が開始された。1990年代半ば以降広く使われるようになった SPring-8 など第三世代放射光に比べ、より高コヒーレント・低エミッタンスかつ極短パルスという特徴を持つX線自由電子レーザー (XFEL) は、次世代の新しい光として現在世界的に大きな期待が持たれている。

XFEL 施設としてはアメリカ、スタンフォードに存在する LCLS (SLAC National Accelerator Laboratory) が世界に先駆け共用運転を開始し、2010年より一般利用研究を行っているが、わが国では LCLS の供用開始から約1年半遅れで、SPring-8 に併設された SACLA の共用運転がスタートした。さらに欧州でも大型の XFEL 施設がドイツ電子シンクロトロン研究所 (DESY) に建設されており、共用開始に向け計画が進行中である。このように世界的に見て XFEL を利用した研究が進められ、これまで誰も目にしたことの無い物理化学現象のダイナミクスその場観察競争が始まろうとしていた。

2. 研究の目的

XFEL は高コヒーレントのほか超高輝度・短パルスを特徴とするが、SACLA はピーク輝度が SPring-8 放射光の10億倍、パルス幅は10フェムト秒という極限的なスペックを誇る。一般的に鉱物分野では第一原理計算や MD シミュレーションを行う際、1フェムト秒のタイムステップで計算を行うが、SACLA を用いることにより、それと同等のタイムスケール、光ですらわずか3ミクロンしか進めないほどの極超短時間で、物質の状態を観察することが可能となる。したがって原子や分子、格子の運動を考えた場合、種々のいわゆるダイナミクス現象はほぼ静止した状態として観察することが可能であり、これまで SPring-8 など放射光を用いてマクロな視点から行われてきた高压相転移のカイネティクス観察を、新たにミクロな視点から行うことができる。

本研究では、これまでマクロな時間スケールでしか観察されたことの無いカンラン石ポストスピネル相転移ダイナミクスの解明に向けた、フェムト秒時分割その場観察実験技術の開発、実験システムの構築・高度化を研究開始当初の目的とした。

3. 研究の方法

本研究では当初、SACLA の XFEL 光、理研により XFEL 専用に新規開発された二次元 X 線検出器 (MPCCD)、共用設備である大型定盤・多軸ゴニオメーターを使用した X 線回折装置とナノ秒同期レーザーを使用した高压発生技術を組み合わせ、ポンププローブ測定技術の高度化を主な技術目標とした。しかしながら計画の途中で、SACLA に高強度レーザー

を使用したポンププローブ測定専用の実験ステーションが建設され、大阪大学を中心とする研究グループによりレーザー衝撃圧縮実験用真空チャンバーやパルス幅500ピコ秒、3ナノ秒の大型レーザーが順次導入されるなど、実験環境が刻々と変化した。そこで本研究では再現性の高いポンププローブ測定を実現するための高精度試料準備環境の整備、試料アラインメント手法の新規開発や高度化など、主に X 線回折測定に関する技術開発を行った。また測定試料としては、共同研究として単結晶鉱物試料に関する実験も行ったが、これまで詳細に研究することができなかった衝撃圧縮された試料内部での結晶構造変化をより明確に観察するため、整備された実験システムで発生可能な圧力領域を超える100万気圧程度まで相転移が存在しない、酸化アルミニウム (コランダム) の多結晶体を選択し基礎データ収集を行った。

4. 研究成果

物質に静的に応力を印加していくと、ある応力まで物質は弾性的に応答し、物質固有の限界値にいたると塑性変形が始まり、最終的には破壊が起きることが広く知られている (図1)。

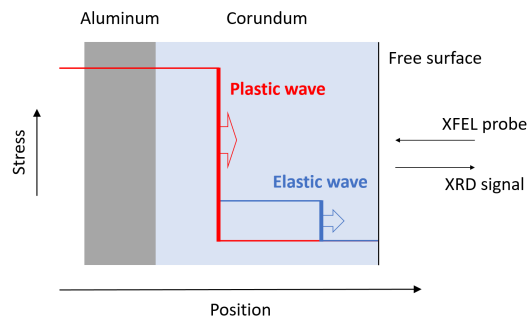


図1. 衝撃波伝播モデルとXFELを使用したコランダム試料測定概念図。

衝撃圧縮過程のような極めて歪み速度が速い場合でも同様のプロセスが進行することが、衝撃銃を用いた持続時間が比較的長い (マイクロ秒以上) 実験における、物質端面 (衝撃波の進行方向の最上流や最下流) における粒子速度測定や応力測定の結果から想定されている。しかしながら、物質内部を衝撃波が伝搬している最中の応答や、各過程ないし過程間における結晶格子レベルでの応答については測定例がほぼなかった。

本研究では、結晶粒径が1ミクロン程度で空孔がほぼ存在しない均質なコランダム多結晶体を試料とすることで、衝撃圧縮された物質内部での結晶構造変化を明確に時分割測定することに成功した (図2)。パルス幅3ナノ秒の高強度レーザーを厚さ30ミクロンのポリプロピレンレーザー吸収材、厚さ40ミクロンのアルミニウム遮光材、厚さ20ミクロンのコランダム試料からなるターゲット試料に導入した結果、衝撃波がコランダムに到達した直後には、弾性変形に由来すると

考えられる、初期結晶粒径を保った数万気圧程度までのわずかな圧縮状態が観察された。その後、塑性変形の開始に伴い 50 万気圧までの強圧縮状態が生成されたが、ここでは出発物質の初期粒径が大幅に減少し、数 10 ナノメートルオーダーにまで細粒化する様子が X 線回折スポットの数から示唆された。細粒化した試料は衝撃波通過後、急峻に減圧され、膨張過程を経た後ほぼ一気圧へ戻った。

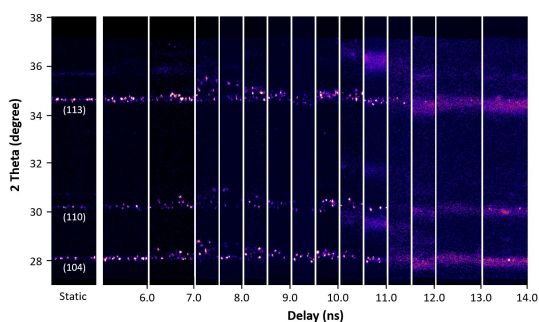


図2. 高強度レーザー照射後6-14ナノ秒間のコランダム X 線回折パターンの時系列変化。

衝撃圧縮されつつある物質の応答挙動を結晶構造と結晶粒径の観点から明白にその場観察した本研究の結果は、実在物質の変形から破壊へいたる過程をマイクロレベルで理解する端緒になると期待される。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計6件)

B. Albertazzi, N. Ozaki, V. Zhakhovsky, A. Faenov, H. Habara, M. Harmand, N. Hartley, D. Ilnitsky, N. Inogamov, Y. Inubushi, T. Ishikawa, T. Katayama, T. Koyama, M. Koenig, A. Krygier, T. Matsuoka, S. Matsuyama, E. McBride, K. P. Migdal, G. Morard, H. Ohashi, T. Okuchi, T. Pikuz, N. Purevjav, O. Sakata, Y. Sano, T. Sato, T. Sekine, Y. Seto, K. Takahashi, K. Tanaka, Y. Tange, T. Togashi, K. Tono, Y. Umeda, T. Vinci, M. Yabashi, T. Yabuuchi, K. Yamauchi, H. Yumoto, & R. Kodama, Dynamic fracture of tantalum under extreme tensile stress. *Sci. Adv.* **3**, e1602705 (2017), DOI: 10.1126/sciadv.1602705.

N. J. Hartley, N. Ozaki, T. Matsuoka, B. Albertazzi, A. Faenov, Y. Fujimoto, H. Habara, M. Harmand, Y. Inubushi, T. Katayama, M. Koenig, A. Krygier, P. Mabey, Y. Matsumura, S. Matsuyama, E. E. McBride, K. Miyanishi, G. Morard, T. Okuchi, T. Pikuz, O. Sakata, Y. Sano, T. Sato, T. Sekine, Y. Seto, K. Takahashi, K. A. Tanaka, Y. Tange, T. Togashi, Y. Umeda, T. Vinci, M. Yabashi, T. Yabuuchi, K. Yamauchi, & R. Kodama, Ultrafast observation of lattice

dynamics in laser-irradiated gold foils.

Appl. Phys. Lett. **110**, 071905 (2017), DOI:

<http://dx.doi.org/10.1063/1.4976541>.

M. Ruiz-Lopez, A. Faenov, T. Pikuz, N. Ozaki, A. Mitrofanov, B. Albertazzi, N. Hartley, T. Matsuoka, R. Ochante, Y. Tange, T. Yabuuchi, T. Habara, K. A. Tanaka, Y. Inubushi, M. Yabashi, M. Nishikino, T. Kawachi, S. Pikuz, T. Ishikawa, R. Kodama, & D. Bleiner, Coherent X-ray beam metrology using 2D high-resolution Fresnel-diffraction analysis.

J. Synch. Rad. **24**, 196-204 (2017), DOI: <https://doi.org/10.1107/S1600577516016568>.

T. A. Pikuz, A. Ya Faenov, N. Ozaki, N. J. Hartley, B. Albertazzi, T. Matsuoka, K. Takahashi, H. Habara, Y. Tange, S. Matsuyama, K. Yamauchi, R. Ochante, K. Sueda, O. Sakata, T. Sekine, T. Sato, Y. Umeda, Y. Inubushi, T. Yabuuchi, T. Togashi, T. Katayama, M. Yabashi, M. Harmand, G. Morard, M. Koenig, V. Zhakhovsky, N. Inogamov, A. S. Safronova, A. Stafford, I. Yu Skobelev, S. A. Pikuz, T. Okuchi, Y. Seto, K. A. Tanaka, T. Ishikawa, & R. Kodama, Indirect monitoring shot-to-shot shock waves strength reproducibility during pump-probe experiments.

J. Appl. Phys. **120**, 035901 (2016), DOI: <http://dx.doi.org/10.1063/1.4958796>.

K. Miyanishi, Y. Tange, N. Ozaki, T. Kimura, T. Sano, Y. Sakawa, T. Tsuchiya, & R. Kodama,

Laser-shock compression of magnesium oxide in the warm-dense-matter regime.

Phys. Rev. E **92**, 023103 (2015), DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevE.92.023103>.

K. Miyanishi, N. Ozaki, E. Brambrink, N. Amadou, A. Benuzzi-Mounaix, R. Cauble, A. Dizière, F. Guyot, M. Koenig, G. Morard, T. De Resseguier, A. Ravasio, R. Smith, Y. Tange, T. Vinci, H. G. Wei, & R. Kodama

Characterization of laser-driven ultrafast shockless compression using gold targets.

J. Appl. Phys. **116**, 043521 (2014), DOI: <http://dx.doi.org/10.1063/1.4891802>.

[学会発表](計20件)

T. Sato, T. Sekine, Y. Tange, N. Ozaki, T. Matsuoka, H. Habara, T. Yabuuchi, K. Tanaka, T. Ogawa, R. Kodama, T. Okuchi, Y. Seto, Y. Inubushi, T. Togashi, & M.

Yabashi,
In situ XRD observation of anomalous elastic response of quartz by XFEL.
31st International Congress on High-Speed Imaging and Photonics (ICHSIP-31), Osaka, Japan, 7-10 Nov. 2016 (ポスター).
尾崎典雅, B. Albertazzi, 松岡健之, N. Hartley, A. Faenov, G. Morard, 羽原英明, M. Harmand, 犬伏雄一, 石川哲也, 片山哲夫, M. Koenig, A. Krygier, 松山智至, E. McBride, 宮西宏併, 奥地拓生, T. Pinkuz, 佐藤友子, 坂田修身, 瀬戸雄介, 関根利守, 田中和夫, 高橋謙次郎, 丹下慶範, 富樫格, 梅田悠平, T. Vinci, 矢橋牧名, 藪内俊毅, 山内和人, 兒玉了祐,
XFEL で見る動的超高压下の物質変形・相転移.
第 57 回高压討論会, 茨城県つくば市, 2016 年 10 月 26 日 ~ 29 日 (口頭).
丹下慶範, 瀬戸雄介, 尾崎典雅, 奥地拓生, 宮西宏併, N. Hartey, 梅田悠平, 西川豊人, R. Ochante, 松岡健之, 高橋謙次郎, 松山智至, 山内和人, 佐藤友子, 関根利守, 田中和夫, 兒玉了祐, 藪内俊毅, 犬伏雄一, 矢橋牧名,
X 線自由電子レーザーを用いた衝撃波伝播過程の時分割その場観察.
第 57 回高压討論会, 茨城県つくば市, 2016 年 10 月 26 日 ~ 29 日 (口頭).
宮西宏併, 尾崎典雅, 松岡健之, 瀬戸雄介, 丹下慶範, 犬伏雄一, 石川哲也, M. Koenig, 松山智至, 奥地拓生, 佐藤友子, 坂田修身, 関根利守, 田中和夫, 富樫格, T. Vinci, 池上温史, 梅田悠平, 大月崇史, R. Ochante, 高橋謙次郎, 西川豊人, 野間澄人, N. Hartley, 羽原英明, T. Pinkuz, A. Faenov, 藤本陽平, 松村祐介, 矢橋牧名, 藪内俊毅, 山内和人, 兒玉了祐,
一軸圧力負荷下における単結晶ゲルマニウムの構造相転移.
第 57 回高压討論会, 茨城県つくば市, 2016 年 10 月 26 日 ~ 29 日 (口頭).
奥地拓生, 尾崎典雅, 瀬戸雄介, 丹下慶範, 関根利守, N. Purevjav, 梅田悠平, 松岡健之, 高橋謙次郎, 宮西宏併, 犬伏雄一, 矢橋牧名, 山内和人, 田中和夫, 兒玉了祐,
フォルステライト単結晶のレーザー衝撃圧縮 XFEL 時間分解観察.
第 57 回高压討論会, 茨城県つくば市, 2016 年 10 月 26 日 ~ 29 日 (口頭).
Y. Tange, N. Ozaki, T. Matsuoka, T. Ogawa, B. Albertazzi, H. Habara, K. Takahashi, S. Matsuyama, K. Yamauchi, K. Tanaka, R. Kodama, T. Sato, T. Sekine, Y. Seto, T. Okuchi, T. Yabuuchi, Y. Inubushi, & M. Yabashi,

In situ XFEL measurement system for Earth and planetary materials under laser-induced ultrahigh-pressure conditions.
AGU Fall Meeting 2015, San Francisco, USA, December 14-18, 2015. (ポスター)
B. Albertazzi, N. Ozaki, V. Zhakhovsky, K. Takahashi, H. Habara, Y. Tange, S. Matsuyama, Y. Sano, K. Yamauchi, A. Faenov, T. Pikuz, Y. Kubota, Y. Fujimoto, Y. Matsumura, T. Nishikawa, S. Noma, R. Ochante, T. Ogawa, Y. Yoshida, O. Sakata, Y. Umeda, T. Sekine, Y. Inubushi, T. Yabuuchi, T. Togashi, T. Katayama, M. Yabashi, A. Krygier, N.J. Hartley, M. Harmand, E. McBride, G. Morard, M. Koenig, K.A. Tanaka, D. Ilnitsky, N. Inogamov, & R. Kodama,
First experimental observation of phase transition in tantalum from bcc to orthorhombic Pnma structure.
第 56 回高压討論会, JMS アステールプラザ, 広島, 2015 年 11 月 10-12 日.(口頭)
佐藤友子, 関根利守, 丹下慶範, 尾崎典雅, 羽原英明, 高橋謙次郎, B. Albertazzi, 藪内俊毅, 田中和夫, 小川剛史, 兒玉了祐, 奥地拓生, 瀬戸雄介, 松山智至, 山内和人, 犬伏雄一, 富樫格, 矢橋牧名 XFEL を用いた石英の異常弾性挙動のその場 X 線回折観察.
第 56 回高压討論会, JMS アステールプラザ, 広島, 2015 年 11 月 10-12 日.(口頭)
丹下慶範, 尾崎典雅, 松岡健之, 小川剛史, B. Albertazzi, 羽原英明, 高橋謙次郎, 松山智至, 山内和人, 田中和夫, 兒玉了祐, 佐藤友子, 関根利守, 瀬戸雄介, 奥地拓生, 藪内俊毅, 犬伏雄一, 矢橋牧名,
SACLA における高強度レーザーを用いた衝撃圧縮 XFEL その場観察実験ステーション.
第 56 回高压討論会, JMS アステールプラザ, 広島, 2015 年 11 月 10-12 日.(ポスター)
尾崎典雅, B. Albertazzi, A. Benuzzi-Mounaix, A. Deneoed, G. Gregori, A. Faenov, 羽原英明, N. Hartley, 犬伏雄一, 石川哲也, 片山哲夫, M. Koenig, 近藤良彦, 松岡健之, 松山智至, 宮西宏併, 奥地拓生, T. Pikuz, 佐藤友子, 佐藤友哉, 佐野孝好, 坂田修身, 瀬戸雄介, 関根利守, 田中均, 田中和夫, 高橋謙次郎, 丹下慶範, 土屋卓久, 富樫格, 梅田悠平, 矢橋牧名, 藪内俊毅, 山内和人, 兒玉了祐,
ハイパワーレーザー及び XFEL を用いた超高压研究.
第 56 回高压討論会, JMS アステールプラザ, 広島, 2015 年 11 月 10-12 日.(口頭)
T. Sato, T. Sekine, Y. Tange, N. Ozaki,

T. Matsuoka, H. Habara, T. Yabuuchi, K. Tanaka, T. Ogawa, R. Kodama, T. Okuchi, Y. Seto, Y. Inubushi, T. Togashi, & M. Yabashi,

X-ray diffraction observation of shock-compressed quartz.

International Workshop on “Warm Dense Matter”, Okayama, Japan, June 7-13, 2015. (ポスター)

Y. Tange, N. Ozaki, T. Matsuoka, T. Sato, Y. Seto, T. Okuchi, T. Sekine, H. Habara, K. Tanaka, T. Ogawa, R. Kodama, T. Yabuuchi, Y. Inubushi, T. Togashi, & M. Yabashi,

In situ XFEL measurement system for materials under laser-induced ultrahigh-pressure conditions.

International Workshop on “Warm Dense Matter”, Okayama, Japan, June 7-13, 2015. (ポスター)

尾崎典雅, 松岡健之, 佐野智一, 犬伏雄一, 富樫格, 藪内俊毅, 羽原英明, B. Albertazzi, 松山智至, 山内和人, 田中和夫, 廣瀬明夫, 近藤良彦, 佐藤友哉, 松田朋己, 浦西宏幸, 中塚和樹, 林圭輔, 喜田美佳, 小川剛史, 池谷正太郎, 山下真直, 白石亮平, 中口真之介, 松山法央, 丹下慶範, 土屋卓久, 佐藤友子, 関根利守, 梅田悠平, 奥地拓生, N. Purevjav, 瀬戸雄介, 坂田修身, 佐野雄二, 末田敬一, 小川奏, 佐藤堯洋, M. Harmand, G. Morard, M. Koenig, 矢橋牧名, 兒玉了祐,

XFEL-SACLA を用いた超高压下の格子ダイナミクス観察.

第 55 回高压討論会, 徳島大学常三島キャンパス, 徳島, 2014 年 11 月 22-24 日. (口頭)

佐藤友子, 関根利守, 丹下慶範, 尾崎典雅, 松岡健之, ほか 14 名

XFEL を用いた石英の高歪速度圧縮下その場回折測定.

第 55 回高压討論会, 徳島大学常三島キャンパス, 徳島, 2014 年 11 月 22-24 日. (口頭)

丹下慶範, 宮西宏併, 尾崎典雅, 佐野孝好, 坂和洋一, 土屋卓久, 兒玉了祐, Hugoniot measurement of MgO up to 1 TPa.

衝撃波シンポジウム, 青山学院大学相模原キャンパス, 神奈川, 2014 年 3 月. (ポスター)

丹下慶範,

レーザー誘起超高压状態における地球惑星内部物質の XFEL その場観察実験.

日本物理学会・春季大会 (第 69 回), 東海大学湘南キャンパス, 神奈川, 2014 年 3 月. (招待講演, 口頭)

丹下慶範,

レーザー衝撃圧縮による MgO B1-B2 相転

移の観察.

レーザー研シンポジウム 2013, 大阪大学, 大阪, 2013 年 5 月. (招待講演, 口頭)

T. Sano, N. Ozaki, T. Matsuda, R. Kashiwabara, H. Uranishi, K. Nakatsuka, Y. Kondo, T. Matsuoka, Y. Sano, Y. Tange, ほか 12 名,

Ultrafast XFEL diffraction measurements of femtosecond laser-driven shock-compressed iron.

HEDS2013 (International Conference on High Energy Density Sciences 2013) in OPIC 2013 (Optics & Photonics International Congress 2013), Yokohama, Japan, April 2013. (ポスター)

T. Matsuoka, Y. Inubushi, S. Matsuyama, N. Ozaki, T. Sano, T. Togashi, T. Yabuuchi, T. Sato, H. Habara, K. Sueda, Y. Tange, ほか 11 名,

Experimental platform design for matter under dynamical compression driven by 45 TW laser pulses in XFEL facility (SACLA).

HEDS2013 (International Conference on High Energy Density Sciences 2013) in OPIC 2013 (Optics & Photonics International Congress 2013), Yokohama, Japan, April 2013. (ポスター)

Y. Tange, K. Miyanishi, N. Ozaki, T. Sano, & T. Tsuchiya,

Hugoniot measurement of MgO up to 1 TPa: An experimental evidence for B1-B2 transition and melting.

HEDS2013 (International Conference on High Energy Density Sciences 2013) in OPIC 2013 (Optics & Photonics International Congress 2013), Yokohama, Japan, April 2013. (ポスター)

〔その他〕

ホームページ等

<https://sites.google.com/site/yoshinoritange/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

丹下 慶範 (TANGE, Yoshinori)

公益財団法人高輝度光科学研究センター・利用研究促進部門・研究員

研究者番号: 70543164