

令和 2 年 7 月 13 日現在

機関番号：84502

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K05714

研究課題名(和文) X線自由電子レーザーを用いた衝撃圧縮下における物質挙動の超高速時分割その場観察

研究課題名(英文) Ultrafast time-resolved in situ observation of shock-compressed materials 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・回折・散乱推進室・主幹研究員

研究者番号：70543164

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円

研究成果の概要(和文)：X線自由電子レーザーの登場により、第三世代放射光と同等の高品質なX線回折データを数フェムト秒という極めて短い時間で取得することが可能になった。本研究課題ではX線自由電子レーザーによる高速X線回折測定と高強度レーザーを用いたレーザー衝撃圧縮実験を組み合わせたポンププローブ計測により、物質内部で数ナノ秒程度のごく短時間に生じる変形圧縮から破壊へといたる現象の超高速時分割観察、ならびに超高压縮下で起きる構造相転移の探索を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

地球惑星構成物質としてのみならず材料科学分野でも基礎的な物質である酸化アルミニウムと酸化マグネシウムを試料としたレーザー衝撃圧縮実験を行い、X線自由電子レーザーを用い衝撃圧縮過程におけるそれらの構造変化を時分割X線回折測定によって観察した。弾性限界を超えた高応力下でも高い歪み速度においては、圧縮と引張の両状態において物質が差応力を保持することを明確に観察し、国内外の学術会議で報告した。

研究成果の概要(英文)：X-ray free electron lasers allow us to carry out ultrafast time-resolved X-ray diffraction measurements due to its short pulse width of less than ten femtoseconds. We have investigated deformation, structural transition, and fracture of materials under pressure on the basis of the combination of the ultra-fast X-ray diffraction measurements and the laser-induced shock compression experiments. A high-power laser with the pulse width of several nanoseconds reproduces shock-compressed state inside materials, and the generated shock waves propagated in the material transmitting stress for several nanoseconds. By varying the relative exposure timing between the high-power laser and the X-ray free electron laser, time-resolved pump and probe observations were conducted with the time resolution of less than one nanosecond. Based on the time-resolved in situ observation techniques, we observed uniaxial stress propagation in the materials above the elastic limit and its time evolution.

研究分野：高圧地球科学

キーワード：衝撃圧縮 X線自由電子レーザー その場観察 X線回折 岩石鉱物

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

X線自由電子レーザー(XFEL)の登場により、数フェムト秒という極めて短いX線照射時間で、第三世代放射光を用いた測定データと同等の高品質なデータ収集が可能となった。XFELのパルス幅約10フェムト秒は、光でさえ3マイクロメートルしか進み得ない極短時間であり、分子やそれを構成する原子はほぼ「静止した」状態として観察される。ナノ秒以下の単位で変化の起こる衝撃圧縮のような極短時間現象でも、被写体ブレのない構造データを撮像することが可能になってきた。

研究開始当初、世界には米国のLCLS(SLAC National Accelerator Laboratory)とわが国のSACLAという二つのXFEL施設が稼働中で、高強度レーザーを用いた衝撃圧縮実験とXFELの極短パルス超高輝度X線プローブを活用したポンププローブ測定の成果が出始めていた(例えばMilathianaki et al. (2013) Science; Gleason et al. (2015) Nat. Commun.)。さらにEuropean XFELの共用開始も予定されており、XFELを活用した極限環境科学分野におけるポンププローブ測定の国際競争が激しくなると考えられていた。

2. 研究の目的

申請者はSACLAの使用以前から、すでに高強度レーザーを用いた衝撃圧縮実験インフラが確立されていた大阪大学レーザーエネルギー学研究中心(現レーザー科学研究所)にて共同利用研究を進めて、酸化マグネシウムや金属鉄など地球惑星構成物質を対象とし、高強度レーザーを用いた衝撃圧縮実験を行っていた(Miyanishi, Tange et al. (2015) Phys. Rev. E)。しかしながらレーザーエネルギー学研究中心での実験では主にVISARと呼ばれるレーザードップラー速度干渉計を用いた、衝撃波表面の移動速度計測を行っており、衝撃圧縮された物質の結晶構造など、物質内部の情報は得られていなかった。そこで衝撃圧縮された物質内部の結晶構造の変化を、時間発展を含め精密に観察するために本研究を行った。

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。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く、超高速時分割測定を行うことで、始めて全貌の観察が可能となる。本研究では、衝撃圧縮されつつある物質の応答挙動を結晶構造の観点から明白に描写することを目的とした。

3. 研究の方法

高強度レーザーを用いたポンププローブ計測は、SACLAのBL3EH5で実施した。ポンプレーザーにはX線自由電子レーザー重点戦略研究課題「XFELとパワーレーザーによる新極限物質材料の探索(代表:田中和夫、尾崎典雅)」により導入された浜松ホトニクス製の小型高強度レーザーを使用し、同課題および高輝度光科学センターにより新たに導入された真空試料チャンバーならびにレーザー輸送システムを用い、レーザー衝撃圧縮実験を行った(Inubushi et al. (2020) Appl. Sci.)。測定試料には厚さ50ミクロンに両面研磨した酸化アルミニウムおよび酸化マグネシウムの多結晶体薄片を用い、ポンプレーザーを吸光し衝撃波を生成するアプレーターとして厚さ30ミクロンのポリプロピレン箔を接着することで、ターゲット試料とした。衝撃圧縮実験に用いるポンプレーザーのパルス幅3ナノ秒(3×10^{-9} s)に対し、パルス幅10フェムト秒(10^{-14} s)のX線自由電子レーザーを用いることで、速度が秒速数千メートル以上にもなる衝撃波によって圧縮される物質内部の静止X線回折シグナルを得た。またポンプレーザーの照射時刻とプローブ光(XFEL)の照射時刻を精密に制御し系統的に変化させることで、時分割測定を行い、任意の衝撃圧縮状態におけるX線回折測定データを得た。光子エネルギー10 keVのX線自由電子レーザーを用いることで箔片状の酸化物質試料の内部まで観察するとともに、KBミラーおよびスリットを用いてプローブ光を集光整形することで直径数100ミクロン程度の衝撃圧縮部からの回折シグナルを得た。回折X線は真空試料チャンバー内に設置したフラットパネルディテクターを用いて測定した。

4. 研究成果

(1) 衝撃圧縮された酸化アルミニウムの時分割その場観察と内部応力状態

厚さ50マイクロメートルの酸化アルミニウム薄片を衝撃波が通過する様子を0.2ナノ秒間隔でポンププローブX線回折測定した。3ナノ秒のパルス幅を持つ高強度レーザーが作る衝撃波が、レーザー吸光材のポリプロピレンと酸化アルミニウムの界面に到達し酸化アルミニウム内部を伝播し始めた時刻から、試料の端面(真空との界面)に到達するまでの時刻(約5ナノ秒)を、酸化アルミニウム結晶の格子面間隔の変化から精密に決定することができた。試料の初期厚さと走時から求められた衝撃波速度と、測定された衝撃圧縮下での酸化アルミニウムの格子体積および、静圧縮実験によって報告されている既知の状態方程式によって概算される圧力との関係は、二段式ガス銃を用いてこれまでに報告されていたユゴニオ状態方程式と整合的であった。さらに酸化アルミニウム内部を衝撃波が通過している最中についても、時間の経過とともに

衝撃波により圧縮されている試料体積が増加していく様子が観察されるとともに、3 ナノ秒のパルス幅後のポンプレーザーの出力カットによって生じる希薄波の影響による減圧が観察された。また試料の端面に衝撃波が到達した瞬間、端面を起点として生成する希薄波によって、最も圧縮されていた端面側から急速に膨張が始まる様子をも、X線回折によってとらえることができた。流体シミュレーションによる衝撃圧縮挙動と整合的であったこれらの挙動は、本研究による精密かつ系統的な時分割 X線回折測定によって、初めて物質内部で生じていることが直接確認された。

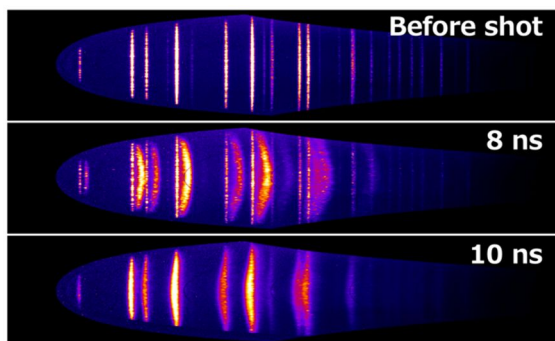


図 1. 再構成された酸化アルミニウムの X線回折像

一方、マクロなユゴニオ計測や流体シミュレーションでこれまで知られていなかった、衝撃が物質内部を伝播している最中の、過渡的な状態での内部応力状態を、本研究で初めてその場観察することができた。左に典型的な例を示したが、ここでは観察された二次元の X線回折像を、横軸に回折角 (2θ : $10^\circ \sim 90^\circ$)、縦軸に方位角 ($-80^\circ \sim +80^\circ$) として再構成した。等方的な試料では最上部の像のように、回折プロファイルは方位角によらず一定の回折角を持ち、垂直な一直線となる。しかしながら衝撃波が酸化アルミニウムを通過している最中の 8 ns のデータでは、回折シグナルはそれぞれが 2 本に分離し、そのうちの 1 本は太く弓なりにな

っている。これは試料の端面側の一部にはまだ衝撃波が到達しておらず未圧縮のままであり、圧縮されている部分は衝撃波の進行方向により強く圧縮された一軸圧縮状態であることを表している。最下部の 10 ns では衝撃波が端面に到達した後、試料の大部分が膨張している様子を表しているが、ここでも一軸的な挙動が確認できた。応力解析の結果、最も圧縮されている方向で約 50 万気圧の応力が得られるのに対し、静水圧成分は 20 万気圧程度であった。ユゴニオ弾性限界を超えるような応力状態における物質の一次元的な圧縮応答は本研究で初めて明確に観察されたもので、今後歪み速度や保持、緩和時間を変化させるなどすることでさらに新たな知見が得られると期待される。

(2) マルチメガバール領域までの酸化マグネシウムの相転移探査

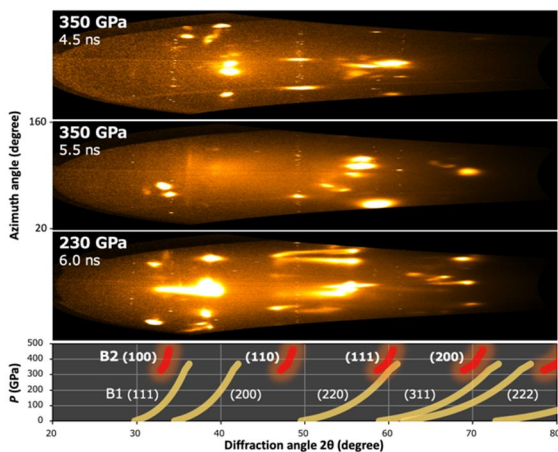


図 2. 酸化マグネシウムの X線回折像

厚さ 50 マイクロメートルの酸化マグネシウム多結晶薄片を用いて、600 万気圧、12000 の極限状態までの条件で衝撃圧縮その場観察実験を行い、酸化マグネシウムの構造相転移ならびに融解の観察を試みた。ポンプレーザーの照射エネルギーや集光スポット径を変化することで衝撃圧力と温度を変化させ、Miyanishi et al. (2015) で、VISAR 計測による衝撃波速度の変化から決定した相転移圧力を、結晶構造の変化から検証した。その結果 600 万気圧に相当するユゴニオ条件下で、全ての回折スポットが消失し、融解を示唆する散乱パターンが得られた。さらに低圧力の実験点では低圧相である岩塩型構造では説明の付かない回折点が現れ、岩塩型から塩化セシウム型構造への高圧相転移を示唆する予察的なデータが取得できた。しか

しながら大部分の低圧相が残存している状態のデータのみしか得られず、明確に高圧相の結晶構造を示すことのできるデータを取得することはできなかった。本研究で得られた知見を基に、より精密な衝撃圧縮その場観察を可能とする実験技術の開発が望まれる。

<引用文献>

- Milathianaki et al. (2013), Femtosecond visualization of lattice dynamics in shock-compressed matter Science, 342, 220.
- Gleason et al. (2015), Ultrafast visualization of crystallization and grain growth in shock-compressed SiO₂, Nat. Commun., 6, 8191.
- K. Miyanishi, Y. Tange, N. Ozaki, T. Kimura, T. Sano, Y. Sakawa, T. Tsuchiya, R. Kodama (2015), Laser-shock compression of magnesium oxide in the warm-dense-matter regime, Physical Review E 92, 023103, <https://doi.org/10.1103/PhysRevE.92.023103>. [OPEN ACCESS]

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 4件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Inubushi Yuichi, Yabuuchi Toshinori, Togashi Tadashi, Sueda Keiichi, Miyanishi Kohei, Tange Yoshinori, Ozaki Norimasa, Matsuoka Takeshi, Kodama Ryosuke, Osaka Taito, Matsuyama Satoshi, Yamauchi Kazuto, Yumoto Hirokatsu, Koyama Takahisa, Ohashi Haruhiko, Tono Kensuke, Yabashi Makina	4. 巻 10
2. 論文標題 Development of an Experimental Platform for Combinative Use of an XFEL and a High-Power Nanosecond Laser	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Applied Sciences	6. 最初と最後の頁 2224 ~ 2224
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.3390/app10072224	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 T. Pikuz, A. Faenov, N. Ozaki, T. Matsuoka, B. Albertazzi, N.J. Hartley, K. Miyanishi, K. Katagiri, S. Matsuyama, K. Yamauchi, H. Habara, Y. Inubushi, T. Togashi, H. Yumoto, H. Ohashi, Y. Tange, 他12名	4. 巻 3
2. 論文標題 Development of new diagnostics based on LiF detector for pump-probe experiments	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Matter and Radiation at Extremes	6. 最初と最後の頁 197
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.1016/j.mre.2018.01.006	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Bruno Albertazzi, Norimasa Ozaki, Vasily Zhakhovsky, Anatoly Faenov, et al.	4. 巻 3
2. 論文標題 Dynamic fracture of tantalum under extreme tensile stress	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Science advances	6. 最初と最後の頁 e1602705
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) DOI: 10.1126/sciadv.1602705	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 B. Albertazzi, N. Ozaki et al.	4. 巻 110
2. 論文標題 Ultrafast observation of lattice dynamics in laser-irradiated gold foils	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 071905 ~ 071905
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.1063/1.4976541	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Ruiz-Lopez M., Faenov A., Pikuz T., Ozaki N., Mitrofanov A., Albertazzi B., Hartley N., Matsuoka T., Ochante R., Tange Y., Yabuuchi T., Habara T., Tanaka K. A., Inubushi Y., Yabashi M., Nishikino M., Kawachi T., Pikuz S., Ishikawa T., Kodama R., Bleiner D.	4. 巻 24
2. 論文標題 Coherent X-ray beam metrology using 2D high-resolution Fresnel-diffraction analysis	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Journal of Synchrotron Radiation	6. 最初と最後の頁 196 ~ 204
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.1107/S1600577516016568	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計33件 (うち招待講演 2件 / うち国際学会 4件)

1. 発表者名 片桐健登, 尾崎典雅, DRESSELHAUS-COOPER Leora, EGGERT Jon, 犬伏雄一, 松岡健之, 宮西宏併, 森岡信太郎, 西山宣正, 関根利守, 瀬戸雄介, 丹下慶範, 入舩徹男, 富樫格, 梅田悠平, 矢橋牧名, 藪内俊毅, 兒玉了祐
2. 発表標題 ナノ多結晶ダイヤモンドのレーザー衝撃圧縮
3. 学会等名 第60回高圧討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 丹下慶範, 西原遊, 瀬戸雄介, 尾崎典雅, 宮西宏併, 佐藤友子, 奥地拓生, 関根利守, 藪内俊毅, 犬伏雄一
2. 発表標題 衝撃圧縮された多結晶アルミナ中の差応力時間発展
3. 学会等名 第60回高圧討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 中島彰吾, 丹下慶範, ALBERTAZZI Bruno, FAENOV Anatoly, HARTLEY Nicholas, 犬伏雄一, 片桐健登, 兒玉了祐, KOENIG Michel, 松岡健之, 松山智至, 宮西宏併, 奥地拓生, PIKUZ Tatiana, 坂田修身, 佐藤友子, 関根利守, 瀬戸雄介, 田中和夫, 富樫格, 矢橋牧名, 藪内俊毅, 山内和人, 尾崎典雅
2. 発表標題 XFELを用いた衝撃誘起ナノ多結晶化プロセスの直接観察と展開
3. 学会等名 第60回高圧討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 丹下慶範
2. 発表標題 Ultrafast time-resolved XFEL diffraction study on shock-compressed corundum
3. 学会等名 日本地球惑星科学連合 2019年大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 奥地拓生, Narangoo Purevjav, 尾崎典雅, 松岡健之, 瀬戸雄介, 丹下慶範, 藪内俊毅, 富岡尚敬, 関根利守, 兒玉了祐
2. 発表標題 Linking occurrence and texture of dense silicate minerals in shocked meteorites with laser-shock experimental results of Mg ₂ SiO ₄ analyzed by XFEL probe
3. 学会等名 日本地球惑星科学連合 2019年大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 佐藤友子, 丹下慶範, 瀬戸雄介, 関根利守, 尾崎典雅, 西川豊人, 宮西宏併, 松岡健之, 兒玉了祐, 富樫格, 犬伏雄一, 藪内俊毅, 矢橋牧名
2. 発表標題 Shock-compressed behavior of quartz by XFEL
3. 学会等名 日本地球惑星科学連合 2019年大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 丹下慶範, 西原遊, 瀬戸雄介, 松岡健之, 尾崎典雅
2. 発表標題 レーザー衝撃圧縮された物質内部の応力状態
3. 学会等名 第59回高圧討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 奥地拓生, PUREVJAV N., 尾崎典雅, 松岡健之, 瀬戸雄介, 丹下慶範, 犬伏雄一, 藪内俊毅, 矢橋牧名, 富岡尚敬, 関根利守, 兒玉了祐
2. 発表標題 レーザー衝撃圧縮によるフォルステライト単結晶の超高速圧縮と構造変化、破壊過程
3. 学会等名 第59回高圧討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 尾崎典雅, 松岡健之, ALBERTAZZI B., 宮西宏併, 片桐健登, 梅田悠平, HARTLEY N., PIKUZ T., 山内和人, 兒玉了祐, 松岡岳洋, 奥地拓生, 瀬戸雄介, 丹下 慶範, 佐藤友子, 関根利守, 坂田修身, 犬伏雄一, 富樫格, 藪内俊毅, 矢橋牧名, VINCI T., KOENIG M.
2. 発表標題 物質の超高速変形と破壊: XFELを用いた観測のアプローチから
3. 学会等名 第59回高圧討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Y. Tange, N. Ozaki, Y. Seto, T. Okuchi, T. Sato, T. Matsuoka, K. Miyanishi, Y. Umeda, T. Yabuuchi, Y. Inubushi, M. Yabashi, R. Kodama
2. 発表標題 Time resolved XFEL observation of shock wave propagating material
3. 学会等名 Workshop of the IUCr Commission on High Pressure (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 丹下慶範, 尾崎典雅, 瀬戸雄介, 佐藤友子, 奥地拓生, 松岡健之, 高橋謙次郎, 宮西宏併, ALBERTAZZI Bruno, HARTLEY Nicholas, 梅田悠平, 西川豊人, 松山智至, 山内和人, 関根利守, 田中和夫, 兒玉了祐, 藪内俊毅, 矢橋牧名
2. 発表標題 衝撃圧縮された多結晶コランダムの時分割 XFEL その場観察
3. 学会等名 第58回高圧討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 奥地拓生, PUREVJAV Narangoo, 尾崎典雅, 松岡健之, 高橋謙次郎, 瀬戸雄介, 丹下慶範, 犬伏雄一, 矢橋牧名, 富岡尚敬, 関根利守, 田中和夫, 兒玉了祐
2. 発表標題 フォルステライト単結晶の超高速一軸圧縮と格子すべり相転移
3. 学会等名 第58回高圧討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 瀬戸雄介, 丹下慶範, 佐藤友子, 奥地拓生, 尾崎典雅
2. 発表標題 レーザー衝撃圧縮 XFEL 実験における回折光学系技術と解析例
3. 学会等名 第58回高圧討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 佐藤友子, 丹下慶範, 瀬戸雄介, 関根利守, 尾崎典雅, 西川豊人, 松岡健之, 兒玉了祐
2. 発表標題 衝撃圧縮下その場 X 線回折による石英の一軸圧縮下相転移の探索
3. 学会等名 第58回高圧討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 西川豊人, 尾崎典雅, HARMAND Marion, 丹下慶範, 近藤良彦, 池谷正太郎, ALBERTAZZI Bruno, 宮西宏平, 重森啓介, 坂和洋一, 佐野孝好, 兒玉了祐
2. 発表標題 地球外核条件における融解鉄合金の輸送特性に関する実験的研究
3. 学会等名 第58回高圧討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 高橋謙次郎, 尾崎典雅, 松岡健之, 末田敬一, 宮西宏併, 梅田悠平, HARTLEY Nicholas, ALBERTAZZI Bruno, 他
2. 発表標題 パワーレーザーとXFELによるレーザー衝撃圧縮ダイナミクスのその場観測実験装置の開発
3. 学会等名 第58回高圧討論会
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

http://rud.spring8.or.jp/member/0008306.html https://sites.google.com/view/yoshinoritange/home

6. 研究組織			
	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考