

平成 21 年 5 月 18 日現在

研究種目：若手研究 (A)

研究期間：2006-2008

課題番号：18684901

研究課題名 (和文) レーザー衝撃圧縮下の比熱比 コントロールと新物質創成

研究課題名 (英文) Specific heat ratio control under laser-driven ultra-high pressures towards novel materials generation

研究代表者

尾崎 典雅 (OZAKI NORIMASA)

大阪大学・大学院工学研究科・助教

研究者番号：70432515

研究成果の概要：高強度レーザー衝撃でのみ実現する極超高圧環境において、従来の性能を大幅に上回る実験・計測技術を確立した。また、通常のレーザー衝撃圧縮の状態から“外れた”“高圧力で且つ低温度”の状態を生成するための新制御法の開発・実証を行った。さらに、これまで全くなされてこなかったテラパスカル圧力域での高精度極超高圧試料回収実験を初めて行い、物質創成の証拠と可能性を掴むと共に、ポストダイヤモンド実現への足がかりを得た。

交付額

(金額単位：円)

|        | 直接経費       | 間接経費      | 合計         |
|--------|------------|-----------|------------|
| 2006年度 | 4,600,000  | 0         | 4,600,000  |
| 2007年度 | 5,300,000  | 1,590,000 | 6,890,000  |
| 2008年度 | 3,000,000  | 900,000   | 3,900,000  |
| 年度     |            |           |            |
| 年度     |            |           |            |
| 総計     | 12,900,000 | 2,490,000 | 15,390,000 |

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：プラズマ科学・プラズマ科学

キーワード：プラズマ応用、レーザー高密度プラズマ、高強度レーザー、レーザー衝撃波、極超高圧、ポストダイヤモンド、低エントロピー圧縮、速度干渉計

## 1. 研究開始当初の背景

(1) 高強度レーザーを物質に照射して駆動される衝撃波によって、一千万気圧・十万度といった、地球内核より遥かに高圧・高温の極限環境を作り出すことができる。レーザーはテラパスカル (TPa) の極限物性データを得る唯一且つ信頼できるツールとなってきた。一方で、レーザーパルスの短時間性が主な原因となって、単一ショック状態 (ユゴニオ=高圧・高温) から離れた“オフユゴニオ”の状態はほとんど調べられていなかった。ところが、この“オフユゴニオ”こそが、物質の未知の性質が発見できる領域であり、例え

ば炭素は、最新の理論によると、およそ 1.2TPa・5000K のオフユゴニオ領域で固体の金属相へと転位するとされている。ポストダイヤモンドを得るために、地上で最も硬い物質を TPa 圧力域にまで圧縮する術は、研究代表者が行ってきた“レーザーショック”の方法でしかあり得ない。代表者らは、多段衝撃圧縮の基礎実験を先駆けて行ったが、転移温度よりも 2 倍以上も高いことがわかり、新しい温度抑制の方法や技術の開発が必須の要項であった。

(2) また TPa 領域での物質相回収という試

みはこれまで全くなされておらず、さらには圧縮状態計測実験と試料回収を同時に行うことのできる実験スキームは存在していない。このことが回収試料解析での不確定性を生むため、レーザー極超高压実験でのその場観測・回収試料の実現の可能性が見いだされていた。ポストダイヤモンドは、1世紀も前から予測されてはいるが、未だ実現されていない物性科学者の夢の材料であり、その生成は、高エネルギー密度状態の科学という新しい枠組みの中で、非常に大きな科学の成果になり得る。化合物や複合物内部の存在形態の問題は状態方程式や、ひいては核融合高密度プラズマ等にも貴重な知見を与えるものと期待されている。

## 2. 研究の目的

(1) 高強度レーザーショックでのみ実現する物質極限環境（一千万気圧以上の圧力）、すなわち実圧縮中の高精度その場観測を実現する。さらには、最も単純な“ユゴニオ”の状態ではない圧力・温度の状態を生成するための圧力・温度制御法の開発・実証と、この領域で全くなされてこなかった圧縮パラメータの決定を行う。

(2) ポストダイヤモンド領域に匹敵するテラパスカル圧力で、全く構築されてこなかった物質回収実験を行う。複雑物質系における極超高压状態と、解放・冷却プロセス（ダイナミクス）の理解を進展させ、金属固相炭素を指向したより洗練された一貫性のある新物質探索研究を未踏圧力域で初めて行う。

## 3. 研究の方法

(1) 高強度レーザーを用いて極限物質状態を創り出し、その状態量を精度良く決定する。オフユゴニオ状態を創り出すために、混合物質や衝撃波反響等の新しいエントロピー上昇を抑えた手法を用いる。

(2) 衝撃圧縮状態量の決定は、インピーダンスマッチング法に基づいて行う。従来の5%を超える精度を実現する新しいレーザー高压実験を実現するために、クォーツを標準物質として用いる新しいスキームを採用する。計測には、2台の速度干渉計からなる高精度速度計測と、2台の高速放射輝度温度計からなるシステムを用いる。

(3) ターゲットデザインは、1次元及び2次元の放射流体計算コードを用いて行う。物質特性（状態方程式やインピーダンス等）だけでなく、構造に関する状態量の依存性等を調べ最適化する。

(4) 単一の衝撃波圧縮状態を実験的に決定

した上で、衝撃波速度計測のみで状態量を特定できるテラパスカル試料回収実験を実施する。また新しい等エントロピー圧縮法で圧縮された試料は、真空中に十分飛翔させてか

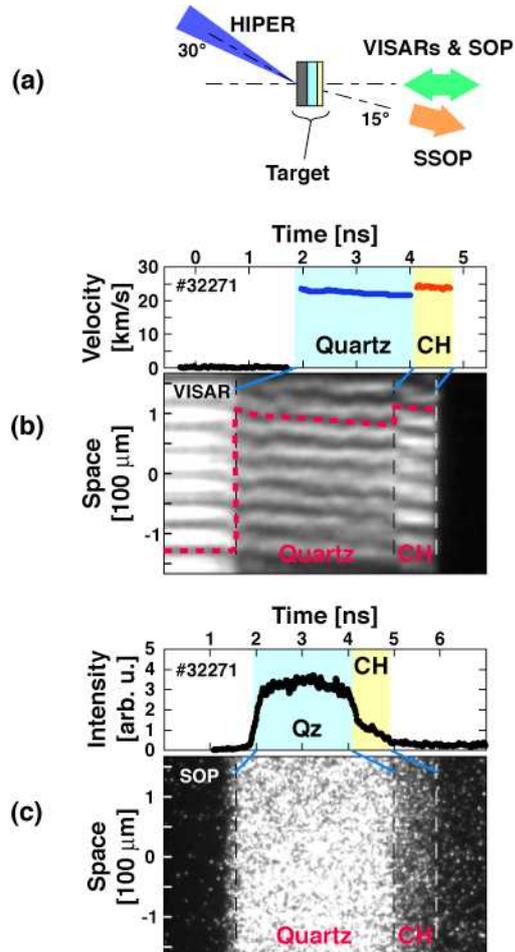


Fig. 1; (a) Experimental setup. (b) The top is shock velocity in both SiO<sub>2</sub> and CH from experiment (closed circles in blue and red). The bottom shows corresponding raw VISAR image. (c) The top is self-emission intensity in both SiO<sub>2</sub> and CH. The bottom shows corresponding raw SOP image.

ら回収試料解析用基盤にトラップして回収する。

(5) 放射光構造解析実験により、回収試料の構造を決定する。TEMによる微細構造観察を行う。

## 4. 研究成果

(1) in-situ・in-time 衝撃圧縮パラメータ計測のための実験環境・計測器整備

大型真空容器内でリークフリーに高品位イメージが取得できる、多軸駆動対物レンズシステムを構築した。これにより、ドライブレザーの集光条件を全く変更することなく、サンプルの自由度を持たせたまま高品位イメージングが可能となった。

2 チャンネル高精度速度干渉計システム (VISAR) を確立した。2 チャンネルの速度感度の異なる干渉計を同時に用いることによって、干渉縞次数の持つ  $2n$  位相差の不確かさを完全にキャンセルすることが可能となった。従来法では 5% 程度が一般的であった速度計測精度が、1% 前後まで改善されたことが実証された。また、衝撃波波面等の反射率を計測することが可能となった。

可視波長域の高速放射輝度温度計を確立した。狭帯域での絶対輝度を得ることによって、10% 精度での放射温度の決定が可能となった。標準温度光源とパルスレーザーを用いたストリークカメラ較正法を確立した。空間・時間分解で且つ 2 波長域の相対強度を取得できる高速放射色温度計も確立することができた。

速度干渉計システムと放射色温度計システムを同期して併用することによって、灰色体放射温度の決定も可能となり、物質状態量パラメータの完全なデータセットを取得可能な計測システムとして確立した。

(2) ターゲットデザインのための 1 次元流体シミュレーション計算を行った。 $\alpha$ -Quartz を標準物質とする新しい超高压パラメータ計測用ターゲットを提案し、最適化を行った。また、2 次元の流体コードにも着手し、衝撃

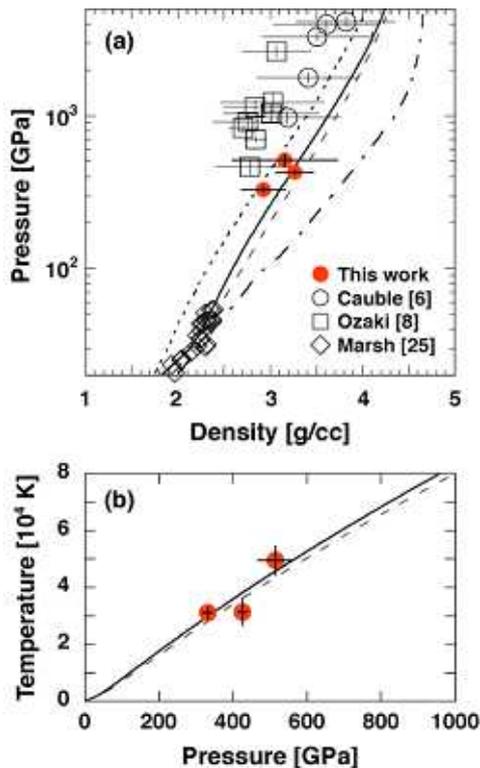


Fig. 2; (a) CH Hugoniot  $P - \rho - T$  data. (a) The Hugoniot presented as  $P$  vs.  $\rho$ . Also shown are the SESAME tabular EOS (solid line); original QEOS (dotted); modified QEOS[37] (dashed); Ree's model [36] (dot-dashed). (b) The Hugoniot  $T$  with same symbols as in (a).

波の収束・発散が顕著にみられ、材料や粒径の組合せ評価に有益な知見を与え得ると結論できた。

(3) 整備された計測システムと  $\alpha$ -Quartz を標準物質とする新しいターゲットを用いて、極超高压状態量計測実験を行った。

まずデモンストレーションとしてポリスチレンの高精度衝撃状態方程式パラメータを世界で初めて取得することに成功した。計測されるサンプルの衝撃波速度と粒子速度から、衝撃波面の前後で成り立つ質量の保存則等から圧力や密度の全ての衝撃パラメータを決定した。高速放射温度計の結果と組み合わせて、圧力-体積-温度の状態方程式変数全てが世界で初めて完全に決定された。また、これらの計測系に同期した新しい計測として、X 線ラディオグラフの開発にも着手した。

衝撃波反響を用いると、単一物質系で温度上昇を抑えた圧縮が原理的に可能である。衝撃波を反響させるためのアンビル材 (窓材) に要求される特性として、衝撃インピーダンスが高いこと、透明体であることが挙げられる。単体のダイヤモンドをポストダイヤモンドが予測されている圧力・温度領域まで反響圧縮するためには、ダイヤモンドより硬い (高衝撃インピーダンス) 透明な誘電体が必要となる。そこで、新しい高インピーダンス誘電体である GGG の、テラパスカル (TPa) 圧力を超える衝撃圧縮曲線と光学的特性を世界で初めて実験的に調べた。GGG の TPa 圧力下の圧縮曲線がダイヤモンドの圧縮曲線を大きく上回り、そのインピーダンスが極めて高くなることが実験的に証明された。

(4) 反響衝撃波によるポストダイヤモンド生成のための初めての実験を実施した。1 回の衝撃波反響によってダイヤモンドの圧力がおよそ 1.6 倍に増加したことが示唆された。この実験的知見によって、ポストダイヤモンド状態 (1 TPa 以上 8000 K 以下) を実現するための最適条件を見積もることができた。

(5) 炭素と同様の相構造を比較的低压で持つシリコンについて、単一ショックと等エントロピー的圧縮する実験を行い、速度の時間発展を計測して不連続的な相転移境界を示すデータが得られた。その上で、この領域で初めてシリコン回収実験を実施し成功した。また、加圧過程と加圧時間を変数とした試料回収実験を実施した。マイクロ秒、ナノ秒、フェムト秒の衝撃圧縮回収、とナノ秒のランブ波圧縮回収を行って、実時間のその場診断と平行しながら回収することに成功した。

(6) シンクロトロン放射光によるX線回折構造解析を行い、通常の単一ショックでは確認されない結晶構造の発現を確認した。超高圧縮された混合系サンプル内部の物質のミクロな描像を得るために、第一原理的分子動力学計算に着手した。

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計13件)

N. Ozaki, T. Sano, M. Ikoma, K. Shigemori, T. Kimura, K. Miyanishi, T. Vinci, F.H. Ree, H. Azechi, T. Endo, Y. Hironaka, Y. Hori, A. Iwamoto, T. Kadono, H. Nagatomo, M. Nakai, T. Norimatsu, T. Okuchi, K. Otani, T. Sakaiya, K. Shimizu, A. Shiroshita, A. Sunahara, H. Takahashi, and R. Kodama, "Shock Hugoniot and temperature data for polystyrene obtained with quartz standard", *Physics of Plasmas* vol. 16, 2009, 査読有り (in press).

J. Rassuchine, E. d. Humières, S.D. Baton, P. Guillou, M. Koenig, M. Chahid, F. Perez, J. Fuchs, P. Audebert, R. Kodama, M. Nakatsutsumi, N. Ozaki, D. Batani, A. Morace, R. Redaelli, L. Gremillet, C. Rousseaux, F. Dorchies, C. Fourment, J.J. Santos, J. Adams, G. Korgan, S. Malekos, S.B. Hansen, R. Shepherd, K. Flippo, S. Gaillard, Y. Sentoku, and T.E. Cowan, "Enhanced hot-electron localization and heating in high-contrast ultraintense laser irradiation of microcone targets", *Physical Review E* vol. 79, 036408, 2009, 査読有り.

E. Brambrink, H.G. Wei, B. Barbrel, P. Audebert, A. Benuzzi-Mounaix, T. Boehly, T. Endo, C. Gregory, T. Kimura, R. Kodama, N. Ozaki, H-S. Park, M. Rabec le Gloahec, and M. Koenig, "X-ray source studies for radiography of dense matter", *Physics of Plasmas* vol. 16, 033101, 2009, 査読有り.

尾崎典雅, "新しい超高圧状態の実現と物質科学へのアプローチ: 夢の超高圧物質を目指して" *レーザー研究* vol. 37, pp. 48-51, 2009, 査読有り.

M. Tsujino, T. Sano, N. Ozaki, O. Sakata, M. Okoshi, N. Inoue, R. Kodama, and A. Hirose, "Quenching of high-pressure phases of silicon using femtosecond laser-driven shock wave" *The Review of Laser Engineering, Supplemental Volume*, 1218-1221, 2008,

査読有り.

A. Ravasio, M. Koenig, S. Le Pape, A. Benuzzi-Mounaix, H. S. Park, C. Cecchetti, P. Patel, A. Schiavi, N. Ozaki, A. Mackinnon, B. Loupias, D. Batani, T. Boehly, M. Borghesi, R. Dezulian, E. Henry, M. Notley, S. Bandyopadhyay, R. Clarke, and T. Vinci, "Hard x-ray radiography for density measurement in shock compressed matter", *Physics of Plasmas* vol. 15, 060701, 2008, 査読有り.

S. Fujioka, M. Shimomura, Y. Shimada, S. Maeda, H. Sakaguchi, Y. Nakai, T. Aota, H. Nishimura, N. Ozaki, A. Sunahara, K. Nishihara, N. Miyanaga, Y. Izawa, and K. Mima, "Pure-tin microdroplets irradiated with double laser pulses for efficient and minimum-mass extreme-ultraviolet light source production", *Applied Physics Letters* vol. 92, 241502, 2008, 査読有り.

A. Benuzzi-Mounaix, B. Loupias, M. Koenig, A. Ravasio, N. Ozaki, M. Rabec le Gloahec, T. Vinci, Y. Aglitskiy, A. Faenov, T. Pikuz, and T. Boehly, "Density measurement of low-Z shocked material from monochromatic x-ray two-dimensional images", *Physical Review E* vol. 77, 045402(R), 2008, 査読有り.

S.D. Baton, M. Koenig, J. Fuchs, A. Benuzzi-Mounaix, P. Guillou, B. Loupias, T. Vinci, L. Gremillet, C. Rousseaux, M. Drouin, E. Lefebvre, F. Dorchies, C. Fourment, J.J. Santos, D. Batani, A. Morace, R. Redaelli, M. Nakatsutsumi, R. Kodama, A. Nishida, N. Ozaki, T. Norimatsu, Y. Aglitskiy, S. Atzeni, and A. Schiavi, "Inhibition of fast electron energy deposition due to preplasma filling of cone-attached targets", *Physics of Plasmas* vol. 15, 042706, 2008, 査読有り.

M. Tsujino, T. Sano, N. Ozaki, O. Sakata, M. Okoshi, N. Inoue, R. Kodama, and A. Hirose, "Femtosecond Laser Synthesis of High-Pressure Phases of Si," *Advanced Materials Research* 26-28, 1291-1294, 2007, 査読有り.

B. Loupias, M. Koenig, E. Falize, S. Bouquet, C. Courtois, N. Ozaki, T. Vinci, A. Benuzzi-Mounaix, C. Michaut, M. Rabec le Gloahec, W. Nazarov, Y. Aglitskiy, A.Ya. Faenov, and T. Pikuz, "Supersonic jet experiments using

high power laser”, Physical Review Letters vol. 99, 265001, 2007, 査読有り.

A. Ravasio, G. Gregori, A. Benuzzi-Mounaix, J. Daligault, A. Delserieys, A. Ya. Faenov, B. Loupias, N. Ozaki, M. Rabec le Goahec, T. A. Pikuz, D. Riley, and M. Koenig, “Direct observation of strong ion coupling in laser-driven shock-compressed targets”, Physical Review Letters vol. 99, 135006, 2007, 査読有り.

尾崎典雅、兒玉了祐、田中和夫 “高強度レーザーを用いた超高压凝縮物性研究の開拓” 高压力の科学と技術 vol. 17、304-315, 2007, 査読有り.

[学会発表] (計 13 件)

N. Ozaki, “Extreme off-Hugoniot generated by reverberating shock compressions(invited)” International Workshop on Warm Dense Matter 2009, 16th March 2009, Hakone Kowakien, Japan.

N. Ozaki, “Laser-driven dynamic compression in ultra-high pressure region (invited)” International COE forum on Pulsed Power Engineering, 9th January 2009, Amakusa, Japan.

尾崎典雅, “レーザー衝撃超高压状態の X 線非弾性散乱計測実験” 第 49 回高压討論会, 2008 年 11 月 12 日, 姫路商工会議所

N. Ozaki, “H Extreme shock and shockless condition generated with high-power laser (invited)” Japan-France workshop on High Energy Density Science, 9th October 2008, Tokyo, Japan.

尾崎典雅, “高強度レーザーを用いた高压凝縮物性研究; ショックユゴニオ計測とオフユゴニオへの展開” 日本物理学会 2008 年秋季大会, 2008 年 9 月 21 日, 岩手大学

N. Ozaki, “High-pressure condensed matter researches using high-power laser (invited)” Japan-US Workshop on High Energy Density Science, 15th September 2008, Beppu, Japan.

尾崎典雅ほか, “高強度レーザーを用いた高压物質科学研究; ショックユゴニオからオフユゴニオまで”, 平成 19 年度衝撃波シンポジウム, 2008 年 3 月, 東京工業大学大岡山キャンパス

N. Ozaki, “On and off Hugoniot measurements of aluminum using laser driven shock wave”, 49th Annual

Meeting of the Division of Plasma Physics, American Physical Society, 12th. November 2007, Orlando, USA.

尾崎典雅 “高強度レーザーを用いたアルミの衝撃超高压状態に関する研究” 第 48 回高压討論会、2007 年 11 月倉吉パークスクエア (鳥取県倉吉市)

N. Ozaki, “Laser-driven plasma pressure loader; from shock to quasi-isentropic compression (invited)” 5th. Inertial Fusion Science and Applications IFSA 2007, 13th. September 2007, Kobe, Japan.

N. Ozaki, “High pressure condensed matter researches using high-power laser toward new device materials (invited)” Japan-UK workshop on High Energy Density Science, September 2007, Tokyo, Japan.

N. Ozaki, “Shockless compression of silicon using high-power laser”, 15th. American Physical Society, Topical Conference on Shock Compression of Condensed Matter, 27th. June 2007, Kohala Coast, Hawaii, USA.

N. Ozaki “Laser-driven plasma pressure loader; from shock to quasi-isentropic compression”, International Workshop on Warm Dense Matter WDM07, Porquellore, France, 13th. June 2007.

[その他]

受賞など

Daiwa Adrian Award、ダイワ財団、平成 19 年 12 月 於 Royal Society London  
大阪大学近藤賞、大阪大学、平成 19 年 3 月 於大阪大学

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・助教  
研究者番号: 70432515

(2) 研究分担者

(3) 連携研究者