

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 17 日現在

機関番号：14401

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2015

課題番号：26600134

研究課題名(和文) レーザーによる超高圧非平衡物質回収技術の開発

研究課題名(英文) Development of laser recovery technique for non-equilibrium matter.

研究代表者

弘中 陽一郎 (HIRONAKA, YOICHIRO)

大阪大学・レーザーエネルギー学研究センター・准教授

研究者番号：20293061

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：レーザーアブレーションの反作用に伴う衝撃波を利用して物質の合成などに応用することができる。レーザー誘起衝撃波はレーザーの集光強度に依存して高くなるため、一般的にはパルスレーザーが用いられる。パルス幅が短ければ短いほど高い圧力が得られると考えてもよいが、超高圧力にさらされた材料のほとんどはアブレーターとして失われ、レーザー照射の終了とともに材料内部の衝撃波は急激に減衰する。本研究では、この問題を解決するために、チャープパルスレーザーを用いたり、超ロングパルスレーザーを用いてガラスのブレイクダウンを制御し、アブレーションをガラスに閉じ込め、非平衡物質の凍結・回収を目的とした。

研究成果の概要(英文)：It's possible to apply to material synthesis using laser induced shock waves. A laser induced shock wave depends on the intensity of the laser, and to become high, pulse laser is generally used. High pressure is obtained more as a pulse width is short, but most of an ingredient parts which exposed high pressure are lost by laser ablation, and a shock wave inside the material will be decreased as well as an end of a laser irradiation suddenly. In this study, chirp pulse laser, and super-long pulse laser was used to control breakdown of glass, confine a shocked material in glass and quench to recover unstable matter.

研究分野：高圧力科学

キーワード：レーザー 非平衡物理

1. 研究開始当初の背景

多くの物質では、数 GPa から数百 GPa の圧力領域で、様々な相転移を示す。これらは結晶構造の変化に伴う物性の変化として現れることが多いため、材料科学的見地から多くの研究がなされている。高温・高圧力下で安定な状態を静水圧的な方法で実現する場合と、動的圧力で実現する場合には、平衡-非平衡といった根本的な違いがあり、必ずしも両者の結果は一致しない。動的圧力を用いた場合、状態方程式研究や状態図の議論において、しばしばこの非平衡状態が問題となることがあるが、新材料合成といった観点からみると、非常に興味深い物質が得られる可能性を秘めている。かつて、動的超高压は静的超高压に比べて、高圧力を得られるといった利点があったが、ダイヤモンドアンビルの登場によって、材料科学的圧力領域には大きなアドバンテージがあまりない。しかし、一方で、動的圧縮は非平衡状態を誘起する手段としての利用価値がある。

動的超高压を発生させるには、飛翔体の高速衝突が最も単純な方法であり、ガス銃などの飛翔体加速器を用いて、多くの研究成果が示されている。圧力的には 100GPa 程度以下の物質がほとんどであり、それ以上の圧力領域になると、回収するのが非常に困難になる。これは、100GPa 以上の物質をいかにして、常温常圧に戻すか？という問題であり、物質によっては圧力を支えきれずに爆発的に崩壊してしまう。つまり、いかにして高温高圧状態で生成した物質を凍結・回収するかといった問題に帰着する。

動的圧縮法は非平衡状態を誘起しやすいが、この非平衡状態を凍結する上でも利点がある。試料を金属のように衝撃波によって温度が上がりにくい物質で挟み、その厚みを数ミクロン程度に薄くすると、低温高圧状態を実現できるのである。熔融金属の液滴を回転ドラム上に落として急冷させるアモルファスなどの急冷速度が 10^6K/s 程度であるのに対して、衝撃波を用いた場合は 10^{10}K/s にも達する。圧力が保持され、温度が急冷されるために、非平衡状態をより凍結しやすい環境が実現されるのである。ガス銃などを用いて、炭素材料などで非平衡物質の凍結が成功している。

生成される物質の厚みが数ミクロン程度でよいのであれば、上記のようなガス銃を用いるよりも、レーザーを用いた方が、より応用性の観点からもメリットがある。レーザー技術の発展に伴い、レーザーの高出力化が行われ、簡単に高強度を実現できるようになった。図 1 はレーザー強度とアブレーション圧力の関係を示した図である。

このため、高強度レーザーは物質合成のた

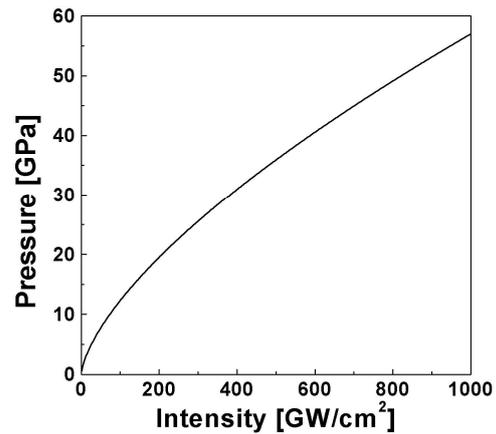


図 1. レーザー集光強度とアブレーション圧力の関係

めのツールとして応用研究が行われてきた。しかし、強度を上げるために短パルス化を行うと、そのパルス幅の時間に、高圧力状態にさらされる試料の厚みは、試料の衝撃波速度を U 、パルス幅を t とすると、 Ut 程度であり、レーザーを直接試料に照射して高圧状態になる厚みは非常に薄く、アブレーションによって、自由空間に失われてしまう。

単にレーザーを試料に照射するだけでは回収できないのである。

2. 研究の目的

レーザーのアブレーション圧力を利用した新規物質の回収を目指すには、高温・高圧状態に達した薄い薄膜状の試料を回収する方法を提案する必要がある。本研究では、ガラスに挟んだ試料をレーザー照射によって高圧状態にすることで試料回収を試みるもので、高圧力非平衡状態の実現と、凍結回収技術を研究目的とする。

3. 研究の方法

レーザーを試料に照射しただけでは、レーザー照射面から自由表面側に高圧部分が吹き飛んでしまうため、試料が回収できないだけでなく、他の部部への圧力も急激に減衰するので、残った試料表面部分でも変化が見られないことが多い。

この問題を解決するために、ガラスで試料を閉じ込め、外部から試料部分にレーザーを照射する方法が考えられる。試料表面で照射強度が強ければ、図 1 に従う高圧力を得られ、それらの圧力緩和は周りのガラスに支えられるため、比較的ゆっくりと起こる。

ところが、高強度レーザーをガラスの中に透過させようとする、その強度のためにガラスが絶縁破壊を起こすため、十分なエネルギーを投入できないという問題があった。

この問題を解決するためには、ガラスに閉

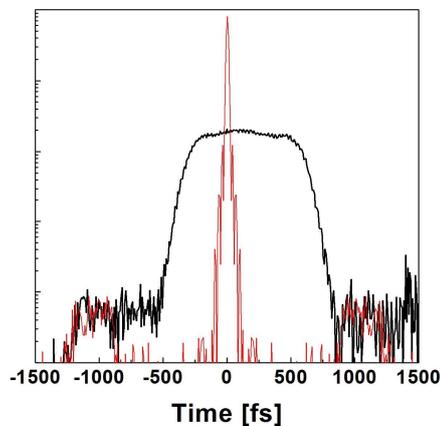
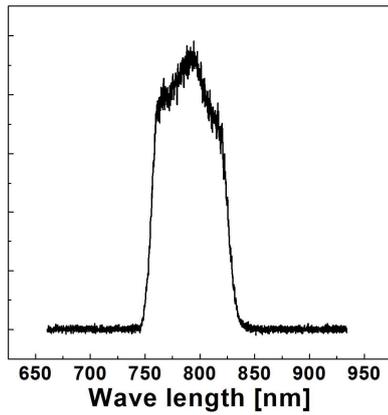


図2. レーザーのスペクトル（上）とパルス圧縮されたレーザーパルスおよび10cmの石英を透過させたパルス（下）の計算結果。

じ込められた試料の部分で急激な強度の上昇を起こすように、集光することが求められる。その一つがフェムト秒レーザー特有の分散関係を利用することである。

図2は70nmのバンド幅を持つフェムト秒レーザーをコンプレッサーで限界パルスま

で圧縮したものと、10cmの石英ガラスを透過させた場合の計算値である。レーザーパルスの強度は、空間と時間で制御できるため、焦点距離の短い放物面鏡で空間的に焦点付近で強度が上昇することに加え、図2の計算結果から、ネガティブチャープパルスを作ると、焦点付近で、時間的な強度の上昇が起こる。

この空間と時間の強度上昇を合わせることによって、ガラスに閉じ込められた試料部分で強度を最大化させる。

この状況を、レーザー照射の反対側に光干渉計を構築して観測する。光干渉計はVISARと呼ばれる、自己相関係の速度干渉計で、試料裏面の運動を観測することによって、試料



図3. 裏面計測用速度干渉計 VISAR

に生成した圧力、密度、内部エネルギーなどの情報を得るものである（図3）

試料は物理蒸着法を用いて、50×50×5mmのガラス基板にAlを258nm蒸着し、その上からC60を3μm蒸着した。この試料を2枚作成し、蒸着面を合わせて、計6μmのC60試料を中心に、258nmのAlおよび5mmのガラスで挟んだ試料を作成した。（図4）

圧力減衰の時間を稼ぐとともに、ひずみによるガラスの崩壊を防ぐため、およびポジティブチャープパルスの生成が容易であるよ



図4. 作成した試料ガラス側（左）試料側（右）。これを合わせて、試料を中心にしたサンドイッチ型のターゲットを作成。

うに、さらにこの試料の全面（レーザー照射側）に10×10×10cmの石英ガラスを設置することを予定していた。

4. 研究成果

実際にはフェムト秒レーザーを用いて、これらのデータ取得を試みたが、装置の諸問題から調整上の問題があり、うまく実施することができなかった。

ガラス中で誘電破壊が起きてしまうと、試料に圧力が伝搬せずにすぐに緩和してしまう問題などがあり、図4の試料にレーザーを照射しても、試料の変質が見られなかった。



図5. レーザー照射を受けた、閉じ込め型試料。レーザースポットは直径0.5mmである。

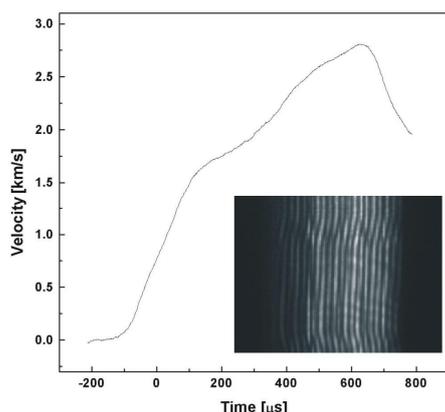


図6. VISAR 計測結果

これは圧力の持続時間が少ないことにより、試料幅を正確に高圧力にすることが技術的に難しく、試料上で最適なパルスが到達さしないで手前（数ミクロン）で石英が光を吸収し始めると、試料に圧力が伝搬しない。

図1の計算から大きな圧力が発生しているとしても、非常に短時間であるために材料の緩和時間との関係から、さらに大きな圧力を必要とする可能性が示唆される。

高圧材料の閉じ込め回収であることを考え、全く逆のロングパルスによる性質も調べてみた。

ロングパルスによって強度を下げることによって、ガラスの誘電破壊を防ぐことができれば、試料面での圧力閉じ込めが可能になるため、700 μ sのパルス幅を持つ、100Jのレーザーを用いて、同実験を実施した。アルミ

がレーザーによって熱的に膨張し、閉じ込め効果によって圧力を持続する。このロングパルスによる効果では、圧力よりも熱的な効果が大きく、試料が激しく変質した（図5）。図6にアルミの裏面速度計測結果を示す。衝撃圧縮のような現象ではなく、熱的な膨張を示唆する速度履歴を示している。

フェムト秒レーザーによる圧力実験では、大きな圧力が期待できる一方で、圧力持続時間が非常に短い。このため、閉じ込め技術によって、圧力の減衰速度を下げることを目的とした。それでも圧力緩和が大きいと、レーザーパルス幅の時間が実効的な圧力持続時間となる。フェムト秒レーザーの場合は技術的な問題から、今後さらなる実験を必要とする。一方、ロングパルスによる実験では、熱的な効果が支配的となり、熱膨張による圧力増加および、その閉じ込めが期待されたが、試料に熱的な効果が移乗するため、凍結回収という観点からは好ましくない。しかし、図6に示すVISARのデータから熱膨張によるゆっくりとした加速が観測され、これは飛翔体としての利用することが可能である。パルス幅が長いと、ゆっくりとした加速であっても、最終的には高速に達するため、これを飛翔版として試料に衝突させることが非常に有効であることが示唆された。

「5. 主な発表論文等」

「該当なし」

「6. 研究組織」

(1) 研究代表者

弘中 陽一郎 (HIRONAKA, Yoichiro)
大阪大学・レーザーエネルギー学
センター・准教授

研究者番号：20293061