特集 —— 超高圧カスケール研究の最前線 ——

圧力スケールの更新をめざした
ユゴニオ計測実験Hugoniot-Measurement Experiment for the Purpose
of Improvement of Pressure Scale

真下 茂

Tsutomu MASHIMO

Through shock-compression experiments, pressure-density relation of condensed matter can be directly and precisely determined. We have established the high-time-resolution streak photographic system using a long-pulsed dye laser equipped with both the powder gun and two-stage light gas gun. By using them accuracy of the measurement is much improved. We started the Hugoniot-measurement experiments on pressure-scale materials such as Au and MgO up to >200 GPa for the purpose of improvement of the pressure scales. We are now measuring the Hugoniot of Au and MgO as well as those of some metals (Al, Cu, Ta, W, etc.) to determine the Hugoniot data free from the Los Alamos data. In this article, the backgrounds and problems of the various pressure scales are reviewed, and our approach to establish pressure scales by means of the shock-compression at Kumamoto University is described.

[*pressure scale, high pressure Hugoniot, shock compression, Au, MgO, ruby scale*]

1. はじめに

静的超高圧実験でなくてはならない圧力校正は、基本的に Au, Pt, MgO などの標準物質をマーカーとして、衝撃圧縮実験で決定された衝撃(ユゴニオ)パラメータから得られた状態方程式と X 線回折による格子定数の測定に基づいて行われている。ユゴニオパラメータは衝撃波速度と粒子速度が、計測上、最も基本的なもので、それから導かれた圧力、密度も含まれる。ダイヤモンドアンビルセル(DAC)を用いた実験では Cu, Mo, Pd, Ag, W などのユゴニオから導かれた状態方程式によって校正されたルビースケールがよく用いられる。地球物理関連でよく用いられる MgO では、そのもののユゴニオではなく、よく別の物質のユゴニオを用いて圧力が決定されている。このように圧力校正では様々な物質のユゴニオが基本として用いられる。これは衝撃圧力がボディフォースによる絶対圧力で、衝撃波速度と

粒子速度を計測することにより圧力と密度を直接決定できるからである。

しかしながら、金属や NaCl などのユゴニオは 1960 年までにアメリカ(ロスアラモス国立研究所)や旧ソ連でピン端子法、フラッシュギャップ法など離散的な方法によって計測された 50 年以上前の歴史的なデータ[1-3]が基本的に使われている。当時の計測では衝撃波の発生に爆薬法が用いられ、ここでは、駆動圧力が標準物質の衝撃波速度の測定によって決定されているので、大きな誤差が避けられない。また、離散的な方法なので弾-塑性転移が考慮されていない。その後、ローレンスリバモア国立研究所のグループによって二段式軽ガス銃を用いたピン端子法による Al, Cu, Mo, Pt のユゴニオの計測が行われた[4,5]。MgO についてはフラッシュギャップ法による単結晶[2]と傾斜鏡法による単結晶[6]、多結晶体[7,8]のユゴニオがあるが、この物質は後で述べるように強度が大きいので試料、測定方法に

問題がある。

一方、地球内部の研究に必要な高温高压下の圧力スケールでは、ユゴニオの測定誤差、ユゴニオから常温の状態方程式の導出誤差に加えて、高温の状態方程式への導出過程で、主にグリュナイゼン定数(γ)の見積もり誤差が加算され、トータルの誤差は極めて大きくなる。たとえば、高温高压下でよく用いられている Anderson と Jamieson の金圧力スケールでは上部・下部マントルを隔てる 660 km (23 GPa) の深さにおいてすでに 8 % 以上の差が生じている。

筆者らは火薬衝撃銃、二段式軽ガス銃に最新の高速流しカメラシステムを組み合わせたユゴニオ計測システムを整備した[9]。そこではユゴニオパラメータの測定精度を 1 桁以上上げることが目標として改良を行っている。そして、圧力スケールを根本的に再検討するために、Au, Pt, MgO などのユゴニオを測定し直し、さらに高温出発のユゴニオを測定する実験を進めている。ユゴニオの計測では飛翔板や駆動板のユゴニオが不可欠であるが、本研究ではロスアラモスデータに頼らず自前でこれらのユゴニオを決定するために、DAC 圧力スケール物質でもある Al 合金、Cu, Ta, W, Ir などの周辺材料のユゴニオも測定する。このような実験は結果的にロスアラモスデータの追試になったとしても信頼性を担保する意味で大きな意義があると筆者は考えている。

圧力スケールを自前で確立するためには、上記のように多くの物質について計測実験が必要であり、現段階では圧力標準物質のユゴニオデータを公表する段階にはないことをあらかじめお断りしておく。本稿では、現在の圧力スケールの問題点を衝撃圧縮研究者の立場から総覧するとともに、熊大の取り組みについて報告する。

2. 圧力スケールの歴史と問題点

ここではよく使われる Au, Pt, MgO を用いた圧力スケール、ルビースケールなどの現状をまとめておこう。Au のユゴニオはロスアラモスデータ[1,2]、旧ソ連データ[3]と Jones ら[10]の衝撃銃を用いたフラッシュギャップ法とピン端子法のデータと、最近の Yokoo らによる衝撃銃と電子式流しカメラを用いた高压領域のデータ[11]が報告されている。初期の Au, Pt の圧力スケールモデルでは、Jamieson

スケール[12]のみがユゴニオだけを用いて状態方程式を議論している。その他のスケールでは DAC を用いて基本的に Cu, Mo, Pd, Ag, 後に W のユゴニオに基づいた Mao らのルビースケール[13,14]から圧力を決め、密度を X 線回折によって測定した状態方程式が得られてきた。Table 1 に Au, Pt の圧力スケール、ルビースケールについてまとめた。静的圧縮実験における状態方程式の導出ではグリュナイゼンパラメータ(γ)と静水圧縮性が重要である。Heinz & Jeanloz のモデル[15]では、ルビースケールと X 線回折による密度から Au の高温領域までの圧力スケールを提案した。Anderson らは、Heinz & Jeanloz の方法を基に γ に非調和効果を補正して Au の高温領域までの圧力スケールを提案した[16]。Holmes ら[5]はユゴニオの計測から Pt の状態方程式を議論した。Shim ら[17]は Takemura の静水圧縮性を改良した DAC による実験データ[18]を用いて Au の高温領域までの圧力スケールを導いている。これらのモデルでは γ の体積依存性を $q = d \ln \gamma / d \ln V$ の式で表し、この値を変えることによりつじつまを合わせている傾向が見られる。

最近、ルビースケールの改良や状態方程式の解析で新しい提案が次々と出されている。ルビースケールに関連して、Dewaele らは放射光を用いた Al, Cu, Ta, W, Pt, Au の密度の同時測定結果と超音波、ユゴニオを用いた Au, Pt などの状態方程式を提案した[19]。また、Chijioko らはユゴニオ上の物質の強度を考慮したルビースケールを提案した[20]。Fei らはマルチアンビルセルを用いた実験で Au, Pt, MgO などの 28 GPa までの高温の状態方程式を提案した[21]。Takemura と Dewaele は He 圧力媒体を用いて静水圧性をよく吟味した Au の状態方程式を提案した[22]。Dorogokupets と Oganov は静的圧縮データを用いず、標準状態の熱物性、超音波データとユゴニオを用いた金属と MgO の広い温度領域の状態方程式を提案した[23]。Yokoo らはユゴニオデータを基に別の γ の表式を用いて高温領域までの Au, Pt の状態方程式を提案した[24]。Matsui らは衝撃圧縮と熱物性を基にした高温までの Pt の状態方程式を提案し、静的圧縮データと比較した[25]。これらの圧力スケールの間では常温 100 GPa の圧力で最大 10% 程度の差が生じている[26]。

MgO は高融点で、化学安定性、絶縁性が良好であることから、高温高压下の圧力媒体や圧力校正物

Table 1. List of pressure scales of Au, Pt, and ruby scale.

著 者	目 的	実験データ	Au, Pt の状態方程式	備 考
Mao, <i>et al.</i> (1978) [13,14]	ルビースケール	Cu, Mo, Pd, Ag のユゴニオ DAC データ	$q = d \ln \gamma / d \ln V = 1$	非静水圧
Jamieson <i>et al.</i> (1982) [12]	Au, Pt 圧力スケール	Au, Pt のユゴニオ	$q = d \ln \gamma / d \ln V = 1$	B-M 方程式 高温まで
Heinz & Jeanloz (1984) [15]	Au 圧力スケール	Au のユゴニオ DAC データ (ethanol + methanol 媒体), ルビースケール 超音波, 熱弾性	Au: $q = d \ln \gamma / d \ln V = 1.7$ $K_0 = 167 \text{ GPa}$, $K'_0 = 5.5$	ルビースケール使用 有限歪み理論 高温まで 非静水圧
Mao, <i>et al.</i> (1986) [14]	ルビースケール	Cu, Ag のユゴニオ Ar 媒体	$q = d \ln \gamma / d \ln V = 1$	擬静水圧
Anderson <i>et al.</i> (1989) [16]	Au 圧力スケール	DAC データ (Heins and Jeanloz, 1984) 高温超音波データ	Au: $q = d \ln \gamma / d \ln V = 2.5-2.7$	非調和効果 高温まで
Holmes <i>et al.</i> (1989) [5]	Pt 圧力スケール	ユゴニオ	Pt: $K_0 = 266 \text{ GPa}$, $K'_0 = 5.81$	非調和効果 高温まで
Shim <i>et al.</i> (2002) [17]	Au 圧力スケール	Au のユゴニオ 超音波 DAC データ (Takemura, 2001) ルビースケール (Zha <i>et al.</i> , 2000)	Au: $q = d \ln \gamma / d \ln V = 1$ $K_0 = 167 \text{ GPa}$, $K'_0 = 5.0$	放射光 ルビースケール使用 B-M 方程式 高温まで
Dewaele (2004) [19]	Au, Pt 圧力スケール ルビースケール	超音波 DAC データ (Au, Pt, Ta, W, Cu, Al)	Au: $K_0 = 167 \text{ GPa}$, $K'_0 = 6.0$ Pt: $K_0 = 277.1 \text{ GPa}$, $K'_0 = 5.08$	放射光 ルビースケール使用 Vinet 方程式
Chijioke <i>et al.</i> (2005) [20]	ルビースケール	ユゴニオ (Au, Pt, Ta, W, Cu, Al) DAC データ (Au, Pt) (He, H ₂ , Xe 媒体)	Au: $K_0 = 177.3 \text{ GPa}$, $K'_0 = 6.38$ Pt: $K_0 = 280 \text{ GPa}$, $K'_0 = 6.33$	ユゴニオ強度補正 放射光 Vinet 方程式
Fei (2007) [21]	Au, Pt スケール	マルチアンビルデータ (Au, Pt, MgO, W, Mo, Pd, Ag) 高温	Au: $K_0 = 167 \text{ GPa}$, $K'_0 = 5.0$ Pt: $K_0 = 270 \text{ GPa}$, $K'_0 = 4.8$	放射光 マルチアンビル
Dorogokupets & Oganov (2007) [24]	Au, MgO などの圧力スケール ルビースケール	擬非調和フォノン近似 熱物性, 超音波, ユゴニオ	Au: $K_0 = 166.7 \text{ GPa}$, $K'_0 = 6.0$ Pt: $K_0 = 276.07 \text{ GPa}$, $K'_0 = 5.30$	静的圧縮データ不使用, 高温まで
Takemura & Dewaele (2008) [22]	Au 圧力スケール	超音波 DAC データ (Au) (He 媒体) ルビースケール (Zha <i>et al.</i> , 2000)	Au: $q = d \ln \gamma / d \ln V = 1$ $K_0 = 167 \text{ GPa}$, $K'_0 = 5.5$	放射光 静水圧縮性 Vinet 方程式
Zha <i>et al.</i> (2008) [28]	Pt スケール ルビースケール	Brillouin 散乱データ 高温データ	Pt: $K_0 = 273.5 \text{ GPa}$, $K'_0 = 4.70$	ユゴニオ, ルビースケール 不使用 放射光 B-M 方程式 高温まで
Yokoo <i>et al.</i> (2009) [24]	Au, Pt 圧力スケール	ユゴニオデータ (Au, Pt)	Au: $\gamma = \gamma \{1 + a[(V/V_0)^b - 1]\}$ $K_0 = 167.5 \text{ GPa}$, $K'_0 = 5.61$	γ の表式 Vinet 方程式 高温まで
Matsui <i>et al.</i> (2009) [25]	Pt スケール	ユゴニオデータ, 熱物性	Pt: $K_0 = 273 \text{ GPa}$, $K'_0 = 5.20$	B-M 方程式 高温まで

B-M 方程式: Birch-Murnaghan equation.

質として用いられる。Table 2 に MgO の圧力校正についてまとめた。Mao and Bell は彼らのルビースケールを用いた MgO の状態方程式を提案した[27]。Jamieson らはユゴニオだけを用いた状態方程式を使って圧力スケールを提案した[12]。Duffy らは放射光を用いた実験で Mo のユゴニオデータを用いた圧力校正によって 227 GPa までの状態方程式を放射光実験により決定した[28]。Fei は Ne 圧力媒体を用いて静水圧性を上げ、圧力は常温ではルビースケール、高温では金と NaCl スケールを用いた常温と高温領域の実験を報告した[29]。Speziale らは He 圧力媒体を用い、ルビースケールを用いた実験を基に高温までの状態方程式を議論した[30]。

Jacobsen らは He 圧力媒体を用い、ルビースケールを用いた実験を基に 118 GPa までの状態方程式を議論した[30]。これに対し、Zha らは Brillouin 散乱実験と線回折を用いたユゴニオを全く使わない状態方程式とルビースケールを提案した[32,33]。しかしながら、実際はユゴニオに基づいたルビースケールが参考にされていると云われている。Matsui らは熱物性データに基づいた MD 計算による状態方程式を提案した[34]。また、最近、丹下らは MgO のユゴニオや熱物性などに基づく高温領域までの状態方程式を提案した[35]。

圧力スケールは、近年、放射光の使用によって密度の測定精度が格段に向上しているが、圧力決定に

Table 2. List of pressure scales of MgO.

著 者	目 的	実験データ	MgO の状態方程式	備 考
Mao & Bell (1979) [27]	MgO スケール	DAC データ ルビースケール	$q = d \ln \gamma / d \ln V = 1.7$ $K_0 = 156 \text{ GPa}$, $K'_0 = 5.4$	ルビースケール使用 非静水圧 Murnaghan 方程式
Jamieson <i>et al.</i> (1982) [12]	MgO 圧力スケール	MgO のユゴニオ	$q = d \ln \gamma / d \ln V = 1$	B-M 方程式 高温まで
Duffy 1995 [28]	状態方程式	DAC データ Mo スケール	$K_0 = 177 \text{ GPa}$, $K'_0 = 4.0$	放射光 227 GPa
Fei (1999) [29]	MgO スケール	DAC データ (Ne 媒体) NaCl, Au スケール	$K_0 = 160 \text{ GPa}$, $K'_0 = 4.15$	放射光 高温も
Zha <i>et al.</i> (2000) [32,33]	MgO スケール ルビースケール	Brillouin 散乱のみ 放射光	$K_0 = 162.5 \text{ GPa}$, $K'_0 = 3.99$	放射光 ルビースケール使用 ユゴニオ不使用 B-M 方程式
Matsui <i>et al.</i> (2000) [34]	MgO スケール ルビースケール	MD 計算	$K_0 = 160.5 \text{ GPa}$, $K'_0 = 4.10$	MD のみ B-M 方程式 高温まで
Speziale <i>et al.</i> (2001) [30]	MgO スケール	超音波 DAC データ (ethanol + methanol, He 媒体) ルビースケール ユゴニオデータ	$q = q_0 (V/V_0)^{q_1}$ $K_0 = 160.2 \text{ GPa}$, $K'_0 = 3.9$	放射光 ルビースケール使用 B-M 方程式 高温まで
Fei (2007) [29]	MgO スケール	マルチアンビルデータ (Au, Pt, MgO, W, Mo, Pd, Ag) 高温	$K_0 = 74.71 \text{ GPa}$, $K'_0 = 3.99$	放射光 マルチアンビル 高温
Dorogokupets & Oganov (2007) [23]	MgO など圧力スケール ルビースケール	擬非調和フォノン近似 熱物性, 超音波, ユゴニオ	$K_0 = 160.31 \text{ GPa}$, $K'_0 = 4.18$	放射光 高温まで
Jacobsen <i>et al.</i> (2008) [30]	MgO スケール ルビースケール	DAC データ (He 媒体) ルビースケール (Mao <i>et al.</i> , Zha <i>et al.</i>)	$K_0 = 160.2 \text{ GPa}$, $K'_0 = 4.03$	放射光 ルビースケール使用 B-M 方程式 高温まで
Tange <i>et al.</i> (2009) [35]	MgO スケール	ユゴニオデータ 熱物性 超音波	$\gamma = \gamma \{1 + \alpha [(V/V_0)^b - 1]\}$ $K_0 = 160.6 \text{ GPa}$, $K'_0 = 4.367$	γ の表式 高温まで Vinet 方程式

は、ほとんどの場合、基本的に金属のユゴニオデータが使われており、現在でもユゴニオの精度が大きなウエイトを占めている点は変わっていない。また、圧力が高くなるほど衝撃圧縮による温度上昇が大きくなるので、常温の状態方程式の導出で γ の値が重要になる。それから高温の状態方程式を計算する場合、 γ の役割がさらに大きくなる。 γ の値は単独には求められないので、この表式モデルが重要な課題となっている。さらに、3 節で議論するように、状態方程式の議論では静水圧縮曲線が必要であるが、MgO など高強度物質ではユゴニオから静水圧力曲線を導出する際に強度がわかっていなければならない。信頼できる圧力スケールを確立するためにはこれらの問題を解決することが極めて重要である。

ここで、もし圧力スケールの既往の研究で漏れているものがあれば御容赦願いたい。

3. 熊大における圧力スケール関連物質のユゴニオ計測実験

熊大では、圧縮-剪断衝撃波も発生できるキー付

Fig. 1. (Color online) Photograph of the keyed-powder gun and two-stage light gas gun at Kumamoto University.

Fig. 2. (Color online) Schematic of the measurement chamber of the two-stage light gas gun (a) and typical signals of velocity, trigger signal, laser intensity, and pin-contactor signal at a velocity of 2.724 km/s (b).

火薬銃（ボア：27 mm）[36]と東北大学から移管していただいた二段式軽ガス銃（ボア：20 mm）[37]を用いて衝撃圧縮実験を行っている。Fig. 1はキー付火薬銃，二段式軽ガス銃，回転鏡式高速流しカメラの写真である。実用的な飛翔体最高速度は火薬銃で2 km/s，二段式軽ガス銃で4.5 km/s程度であり，衝突によって発生する圧力はその物質の性質（衝撃インピーダンス）に依存するが，たとえば，タングステン同志を上記の速度で衝突させた場合，得られる圧力は，それぞれ，100, 300 GPa程度である。近い将来二段式軽ガス銃のボアを小さくして6 km/s以上をめざしたい。衝撃銃を用いた衝撃実験では衝突速度の計測と信頼できるトリガー信号を得ることが重要である。熊大ではトリガー信号はワイヤーカット法を用い，飛翔体速度は三点でのコイルを通過する飛翔体中に埋め込んだ磁石による信号によって測定する。Fig. 2に二段式軽ガス銃で衝突速度が2.724 km/sの場合の信号例を示す。測定誤差は測定スパンが長い（150 mm）ので0.1–0.2%である。

現在，固体中の衝撃圧縮下のユゴニオ（衝撃波速度–粒子速度）を計測する方法として，光学的方法である傾斜鏡法[38,39]，マイケルソン型レーザ速度干渉法（VISAR）[40]がよく用いられている。傾斜鏡法は複合構造衝撃波でも高い圧力領域までの定常的な衝撃パラメータの計測に有効であり，衝撃波面の全体像を観察する幾何光学的方法であるの

Fig. 3. (Color online) Schematic of the inclined-mirror method using the mirror-rotating-type streak camera equipped with a gun.

で，信頼性が高い。光のドップラー効果を用いたVISARは測定面の速度が低速度から長いスパンに渡って高時間分解能で得られ，応用範囲の広い方法である。我々はこの中でユゴニオの測定には主に傾斜鏡法を用い，立ち上がりの微細構造や圧力解放過程を見たい場合はVISARを用いている。特にユゴニオの測定では衝撃波速度の測定が重要で，

VISAR では最低 3 セット以上の装置が必要となる。金属のユゴニオでは弾性域は狭く、弾性限界も小さいのであまり問題にならないが、 MgO などのセラミックスでは弾性限界が高く、階段状構造の衝撃波を計測する必要がある。

Fig. 3 に衝撃銃と組み合わせた傾斜鏡法の概念図 [9] を示す。試料前面に 2 枚の平面鏡、背面に平面鏡と傾斜鏡を置いておき、衝撃波の平面鏡への到達と自由表面が傾斜鏡に衝突によって鏡の反射率が急激に変化する様子を流しカメラで記録し、衝撃波伝播速度と自由表面速度を計測するものである。この方法では時間分解能の高い流しカメラと輝度の高い光源を用いることがポイントで、測定精度は流しカメラの流し速度とスリット幅に依存するが、熊大では最大 $10 \text{ mm}/\mu\text{s}$ 程度の流し速度の回転鏡式流しカメラとロングパルス色素レーザーを自作してさらに精

度を上げている。Fig. 4 に流しカメラと色素レーザーの写真を示す。有効パルス時間は $\sim 50 \mu\text{s}$ で、ピーク出力は 20 kW 以上である。色素レーザーを光源に用いることによって、スリットの幅をキセノンランプを用いる場合と比べ $1/10$ 程度まで縮めることが可能となった。その結果、理論上の時間分解能は 7 ns 程度から 1 ns 以上に向上させることができた。

Fig. 5 に火薬衝撃銃を用い、試料と駆動板、衝突板に無酸素銅を用い衝突速度 0.987 km/s で得られた流し写真を示す。衝突板、駆動板にはともに銅を用いた。図の点 1 と点 2 はそれぞれ先行弾性波がドライバープレートの背面に到達した時刻と、塑性波が試料の背面に到達した時刻を表している。飛翔板と駆動板の衝突は少なからず傾斜するので、衝撃波は試料面に対して傾斜して伝播する。そのために、

Fig. 4. (Color online) Photograph of the long-pulsed dye laser ($> 20 \text{ kW}$, $50 \mu\text{s}$) [9].

Fig. 5. (Color online) Streak photograph of non-oxygen Cu by the inclined-mirror method (Impact velocity: 0.987 km/s , Flyer plate: Cu, Driver plate: Cu).

Table 3. Comparison between the measurement methods of Los Alamos Laboratory and Kumamoto University.

	ロスアラモス 国立研究所 (USA) (1960 年代まで) [1,2]	熊本大学 (現在) [9]
実験方法	フラッシュギャップ法	傾斜鏡法
流しカメラ	最高流し速度： $> 10 \text{ mm}/\mu\text{s}$ 時間分解能： $\sim 10 \text{ ns}$	最高流し速度： $> 10 \text{ mm}/\mu\text{s}$ 時間分解能： $< 1 \sim 2 \text{ ns}$
衝撃波発生 方法	爆薬法 (直径：30 cm, 厚さ：10 cm)	火薬衝撃銃、二段式軽ガス銃 (ボア径：27, 20 mm)
駆動圧力の 測定	フラッシュギャップ法による 衝突速度や標準試料の 衝撃波速度 (誤差： $< 2 \sim 3\%$)	衝突速度 (誤差： $< 0.2\%$)
試料の厚み	数 mm	数 mm

Table 4. Errors of the Hugoniot measurement at Kumamoto University [9].

	衝撃波速度 ^{a)}	粒子速度 ^{b)}	圧力, 密度
試料厚み	0.05%	—	—
出発密度	—	0.05%	0.05%
衝突速度	—	$0.1^{\text{c})} \sim 0.2^{\text{f})} \%$	—
時間分解能	$< 1 \sim 2 \text{ ns}$	—	—
総合誤差 (対称衝突)	$0.2^{\text{c})} \sim 0.4^{\text{d})} \%$	$0.1^{\text{c})} \sim 0.2^{\text{f})} \%$	$0.35 \sim 0.65 \%$
総合誤差 (非対称衝突)	$0.2^{\text{c})} \sim 0.4^{\text{d})} \%$	$0.35 \sim 0.65 \%$	$0.6 \sim 0.9 \%$

^{a)} 衝撃波速度の誤差は試料の衝撃波速度の値に依存する。
^{b)} 粒子速度の誤差は対称衝突の場合は衝突速度の誤差と同じになり、非対称衝突の場合はインピーダンスマッチング法によるので密度、衝撃波速度の誤差が効いてくる。
^{c)} $U_s \sim 6 \text{ km/s}$ の場合 ^{d)} $U_s \sim 12 \text{ km/s}$ の場合
^{e)} 一段式火薬銃 ^{f)} 二段式軽ガス銃

Fig. 6. (Color online) Streak photograph of MgO single crystal (110) by the inclined-mirror method (Impact velocity: 1.097 km/s, Flyer plate: Cu, Driver plate: Cu) [40].

傾斜鏡法の平面鏡のイメージでスリット方向の傾斜角度を、その垂直方向の傾斜角をスリットに垂直線上にピン端子を設置して測定して補正する。

熊大とロスアラモスデータの測定方法と測定装置の比較を Table 3 に、熊大の傾斜鏡法の測定誤差を Table 4 に示す。前に少し触れたように、1960 年代までのロスアラモス研究所と熊大の計測法の違いは、衝撃波の発生にロスアラモスでは爆薬法を熊大では衝撃銃を用い、衝撃波の測定にロスアラモスではフラッシュギャップ法を熊大では傾斜鏡法を用いていることである。ユゴニオの計測では、衝撃波速度は流し写真から求め、粒子速度は入射衝撃波の情報とインピーダンスマッチング法を用いて決定するが、その際、入射衝撃波の情報に爆薬法では同じくフラッシュギャップ法で測定した標準物質の衝撃波速度を用いるために誤差が 2 倍になるのに対し、衝撃銃では測定精度の高い衝突速度を用いるので高い精度を確保できる。また、時間応答性（感度）は衝撃波の到達による表面鏡の蒸着面の反射率の変化を観察する傾斜鏡法が、薄い隙間に充填したキセノンガスの発光を観察するフラッシュギャップ法に比べて 10 倍程度すぐれている。衝撃波速度の測定誤差は試料厚みの測定誤差と流しカメラシステムの時間分解能で決まり、金属など音速が遅い物質では 0.2% 程度であるが、セラミックスなど音速が速い物質では 0.4% 程度と見積もられる。ピークの粒子速度の誤差は、同じ物質を衝突させる場合（対称衝突）は衝突速度の半分になるので、衝突速度の誤差と同じ、0.1–0.2% 程度となる。異なる物質を衝突させる場合、インピーダンスマッチング法の誤差が加わり、

Fig. 7. (Color online) The shock velocity versus particle velocity Hugoniot result of MgO single crystal and polycrystal [40].

0.35–0.65% 程度となる。

現在、Au や Cu, W, Ta のユゴニオの計測を二段式軽ガス銃を用いた衝突速度が 3 km/s 程度までの実験をほぼ終えている。ここでは、MgO について preliminary な結果を紹介しよう[41]。我々は強度の問題を明らかにして MgO の状態方程式を精密に議論するために、単結晶と多結晶の試料を用いた実験を行っている。Fig. 6 に試料が(110)面の単結晶で衝突板、駆動板に Cu を用い衝突速度が 1.097 km/s の時の流し写真を示す。Fig. 7 に単結晶の衝撃波速度 (U_s)–粒子速度 (U_p) のユゴニオを示す。MgO では弾性限界に大きな結晶異方性が観察され、また、塑性域では我々の単結晶 ((100)面) の U_s – U_p ユゴニオ結果では、低圧域で衝撃波速度が弾性先行波によりロスアラモスデータより少し小さく、高圧域では少し大きな衝撃波速度となっており、従って、圧力値は高くなる。この結果は Ahrens の単結晶の結果[6]と矛盾しない。しかしながら、高い圧力領域のユゴニオを確定するためにさらなる実験が必要である。

状態方程式の議論には静水圧縮曲線が必要であるが、ユゴニオ圧縮曲線には塑性域でも一軸圧縮による強度の成分が上乘せされているのでその評価が重要である。MgO のような脆性物質では結合強度は大きい、結晶の劈開、滑りなどの複雑な降伏現象

により衝撃圧縮下の強度が著しく低下する傾向があるので[42,43]この評価が難しい。従って、これまでに報告されたものや今回のユゴニオにおける違いが測定方法によるかはもとより、衝撃圧縮下の強度やその結晶異方性がまだ不明なので、状態方程式を議論するためにはこれらの問題を明らかにしなければならない。しかしながら、今回の熊大の結果では、 $\langle 100 \rangle$ 方向の弾性限界に著しい減衰が観察されている[41]ので、塑性域のユゴニオ圧縮曲線はほぼ静水圧縮曲線として扱えるものと考えられる。従って、MgO スケールは従来より高い圧力になる可能性がある。

4. 終わりに

本稿では、衝撃圧縮の立場から見た圧力スケールの歴史、問題点、熊大の圧力スケールに関する実験の現状について述べた。圧力校正の問題点はベースとなるユゴニオの信頼性と状態方程式の解析にあるが、筆者は熊大の衝撃銃に組み合わせた高速流シカメラシステムは 200 GPa 程度までの圧力校正物質のユゴニオの確定に貢献できるものと期待している。状態方程式の解析では、常温の状態方程式の導出は 100 GPa 程度までなら金属の温度上昇は小さいのであまり問題は大きくないが、1000°C 程度以上の高温の状態方程式が必要な場合、熱解析による誤差が極めて大きくなる。これは度々指摘しているように、グリューナイズンパラメータの圧力、温度に対する依存性がよくわかっていないからであるが、根本的な解明は現在のところ現れていない。

地球内部の研究に不可欠な高温高压の圧力スケールでは、筆者は高温のユゴニオを直接計測することが、この熱解析の困難を極力避けることができるので、現在考えられる解決法の中でベストな方法であると筆者は考えている。衝撃圧縮のエントロピー増加による温度上昇は圧力が 20 GPa 程度の場合、金で 50 度、MgO で 20 度以下、100 GPa 程度の場合、金で 600 度、MgO で 300 度以下である。従って金と MgO で例えば外マントル内マントル境界付近の圧力が 20 GPa 程度で、温度が 1600°C 領域になるように出発温度を上げてユゴニオを測定できれば、温度補正による誤差を単純に少なくともそれぞれ 1/30, 1/80 以下に、内マントル外核境界付近の 100 GPa, 2000°C 領域では少なくともそれぞれ 1/3, 1/6 以下にすることができるはずである。また、常

温と高温のユゴニオを比較することでグリューナイズン定数を議論することもできる。さらに、高温下では物質の強度が小さくなるので、強度の問題も解決できるであろう。この様な観点から、現在、高周波加熱装置を用いた加熱下のユゴニオ計測実験を進めている。弾性限界を精密に決めるためにレーザ速度干渉計 (VISAR) も用いる予定である。

熊大における試みはロスアラモスデータを全く使わずに圧力スケールを一から見直そうというものであり、多くの厳密な実験が必要である。本報告が圧力スケールの議論の入り口で止まっていることをお許し願いたい。

謝 辞

本稿をまとめるにあたって、物材機構の竹村謙一氏、兵庫県立大学の松井正典氏、赤浜裕一氏に静的圧縮実験に関して有益な助言をいただいた。本稿で取り上げた実験結果は学生諸君との共同実験によるものである。ここに記して謝意を表します。

参考文献

- [1] R.G. McQueen, S.P. Marsh, J.W. Taylor, J.N. Fritz, W.J. Carter: in *High-Velocity Impact Phenomena*, ed. R. Kinslow (Academic Press, New York, 1970), p. 244.
- [2] S.P. Marsh: *LASL Shock Hugoniot Data* (University of California Press, California, 1980).
- [3] L.V. Al'tshuler: *Sov. Phys. Uspekhi*, **8**, 52 (1965).
- [4] A.C. Mitchell, W.J. Nellis: *J. Appl. Phys.*, **52**, 3363 (1981).
- [5] N.C. Holmes, J.A. Moriarty, G.R. Gathers, W.J. Nellis: *J. Appl. Phys.*, **66**, 2962 (1989).
- [6] T.J. Ahrens: *J. Appl. Phys.*, **37**, 2532 (1966).
- [7] M.S. Vassiliou, T.J. Ahrens: *Geophys. Res. Lett.*, **8**, 729 (1981).
- [8] T.S. Duffy, T.J. Ahrens: *J. Geophys. Res.*, **100**, 529–542 (1995).
- [9] T. Mashimo, Y. Zhang, M. Uchino, A. Nakamura: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **48**, 096506 (2009).
- [10] A.H. Jones, W.M. Isbell, C.J. Maiden: *J. Appl. Phys.*, **37**, 3493 (1966).
- [11] M. Yokoo, N. Kawai, K.G. Nakamura, K. Kondo: *Appl. Phys. Lett.*, **92**, 051901 (2008).
- [12] J.C. Jamieson, J.N. Fritz, M.H. Manghnani: in *High-Pressure Research in Geophysics*, edited by S. Akimoto, M.H. Manghnani (Center for Academic

- Publiucation, Tokyo, 1982) p. 27.
- [13] H.K. Mao, P.M. Bell, J.W. Shaner, D.J. Steinberg: *J. Appl. Phys.*, **49**, 3276 (1978).
  - [14] H.K. Mao, P.M. Bell: *J. Geophys. Res.*, **91**, 4673 (1986).
  - [15] D.L. Heins, R. Jeanloz: *J. Appl. Phys.*, **55**, 885 (1984).
  - [16] O.L. Anderson, D.G. Isaak, S. Yamamoto: *J. Appl. Phys.*, **65**, 1534 (1989).
  - [17] S.-H. Shim, T.S. Duffy, K. Takemura: *Earth Planet. Sci. Lett.*, **203**, 729 (2002).
  - [18] K. Takemura: *J. Appl. Phys.*, **89**, 662 (2001).
  - [19] A. Dewaele, P. Loubeyre, M. Mezouar: *Phys. Rev. B*, **70**, 094112 (2004).
  - [20] A.D. Chijioke, W.J. Nellis, A. Soldatov, I.F. Silvera: *J. Appl. Phys.*, **98**, 114905 (2005).
  - [21] Y. Fei, J. Li, K. Hirose, W. Minarik, J.V. Orman, C. Sanloup, W. van Westrenen, T. Komabayashi, K. Funakoshi: *Phys. Earth & Planet. Inter.*, **143–144**, 515 (2004).
  - [22] K. Takemura, A. Dewaele: *Phys. Rev. B*, **78**, 104119 (2008).
  - [23] P.I. Dorogokupets, A.R. Oganov: *Phys. Rev. B*, **75**, 024115 (2007).
  - [24] M. Yokoo, N. Kawai, K.G. Nakamura, K. Kondo, Y. Tange, T. Tsuchiya: *Phys. Rev. B*, **80**, 104114 (2009).
  - [25] M. Matsui, E. Ito, T. Katsura, D. Yamazaki, T. Yoshino, A. Yokoyama, K. Funakoshi: *J. Appl. Phys.*, **105**, 013505 (2009).
  - [26] Y. Akahama, H. Kawamura, A.K. Singh: *J. Appl. Phys.*, **92**, 5892 (2002).
  - [27] H.K. Mao, P.M. Bell: *J. Geophys. Res.*, **84**, 4533 (1979).
  - [28] T.S. Duffy, R.J. Hemley, H.K. Mao: *Phys. Rev. Lett.*, **74**, 1371 (1995).
  - [29] Y. Fei: *Am. Mineral.*, **84**, 272 (1999).
  - [30] S. Speziale, C.S. Zha, T.S. Dyffy, R.J. Hemley, H.K. Mao: *J. Geophys. Res.*, **106**, 515 (2001).
  - [31] S.D. Jacobsen, C.M. Holl, K.A. Adams, R.A. Fischer, E.S. Martin, C.R. Bina, J.-F. Lin, V.B. Prakapenka, A. Kubo, P. Dera: *Am. Mineral.*, **93**, 1823 (2008).
  - [32] C.S. Zha, H.K. Mao, R.J. Hemley: *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, **97**, 13494 (2000).
  - [33] C.S. Zha, K. Mibe, W.A. Bassett, O. Tschauner, H.K. Mao, R.J. Hemley: *J. Appl. Phys.*, **103**, 054908 (2008).
  - [34] M. Matsui, S.C. Parker, M. Leslie: *Am. Mineral.*, **85**, 312 (2000).
  - [35] Y. Tange, Y. Nishihara, T. Tsuchiya: *J. Geophys. Res.*, **114**, B03208 (2009).
  - [36] T. Mashimo, S. Ozaki, K. Nagayama: *Rev. Sci. Instrum.*, **55**, 226 (1984).
  - [37] Y. Syono, T. Goto: *Sci. Rep. Res. Inst. Tohoku Univ. A-29*, 1980, p. 17–31.
  - [38] D.G. Dran: *High Pressure Measurement* (Butterworths Scientific, Washington D. C., 1963) p. 63.
  - [39] T.J. Ahrens, W.H. Gust, E.B. Royce: *J. Appl. Phys.*, **39**, 4610 (1968).
  - [40] L.M. Barker, R.E. Hollenbach: *J. Appl. Phys.*, **43**, 4669 (1972).
  - [41] M. Murai, N. Kawayanagi, K. Tashiro, Y. Gomoto, L. Wei, T. Mashimo: in *Proc. International Conference on High Pressure Science and Technology* (Tokyo, Japan, 2009).
  - [42] T. Mashimo, A. Nakamura, K. Kodama, K. Kusaba, K. Fukuoka, Y. Syono: *J. Appl. Phys.*, **77**, 5060 (1995).
  - [43] T. Mashimo, M. Uchino, A. Nakamura, T. Kobayashi, E. Takasawa, T. Sekine, Y. Noguchi, H. Hikosaka, K. Fukuoka, Y. Syono: *J. Appl. Phys.*, **86**, 6710 (1999).
- [2010 年 4 月 1 日受付, 2010 年 5 月 14 日受理]
© 2010 日本高圧力学会