解説

超高圧力研究におけるパワーレーザーと 高輝度コヒーレント光源の融合

Fusion of High-Power Laser and Bright Coherent
Light Source in Ultrahigh Pressure Research

尾崎 典雅^{1,2,*}

Norimasa OZAKI^{1,2,*}

兒玉 了祐^{1,2}

Ryosuke KODAMA^{1,2}

High-power laser irradiation creates extremely higher-pressure and density conditions in materials than conventional pulsed-power devices. Here we present new experimental results on ultrafast solid-solid phase transformation of silicon from semiconductor to metal and laboratory synthesis of a water-rich extrasolar planet. These interdisciplinary works motivate new experiments using an emerging, intense and coherent light source as observation tool in order to reveal new behavior and/or diversity of material under tera-Pascal pressures and femtosecond dynamics.

[*High-power laser, dynamic compression, shock wave, tera-Pascal pressure, ultrafast dynamics, phase transition, equation of state, planetary application*]

1. はじめに

物質を加圧すれば、圧力の増加とともに相転移や解離をはじめとする“反応”が誘起され、例えば最外殻電子が非局在化すれば常温常圧で絶縁体であった物質においてもいわゆる金属化が促される[1,2]。ショックウェーブ（衝撃波）を用いた動的圧縮法では、鋭い立ち上がりで非線形に加圧が行われ（Fig. 1）、且つ圧力や温度の急激な減衰を伴うため、定常状態にしろ過渡状態にしろ、物質が普段見せない振舞いを垣間みることができる。そして、パワーレーザーを用いたレーザーショックの方法では、従来法では実現できない時間と圧力の極限で物性を探索することが可能である。

光を用いた方法特有の高エネルギー密度性によって、従来の動的超圧研究とは異なる革新的な実験が可能になってきた[3-9]。非接触なレーザーショッ

ク圧縮によれば、集光照射された微小空間や物質内部における物質変成作用が期待できるため、物質合成のみならず、新しい材料プロセスとしての可能性も積極的に検討されている。ガス銃をツールとしてきた動的超圧の研究者のみならず、ダイヤモンドアンビルセル（DAC）などをツールとしてきた静的超圧の研究者らがレーザーショック実験に参画し始めたことは、ここ数年の米国物理学会（APS）の衝撃圧縮に関するトピカルミーティングのプログラムをみればわかる。そして2013年には、そのショックAPSミーティングとAIRAPTがジョイントして開催されたことも、このことを非常によく表していると思う。高圧科学の業界において、パワーレーザーというツールがある程度確かな地位を獲得してきたといえるだろう。

50年以上の歴史がある凝縮体に関する動的超圧の研究は、パワーレーザーという新しいツールの

¹ 〒565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-1 大阪大学 大学院工学研究科
Graduate School of Engineering, Osaka University, 2-1 Yamada-oka, Suita, Osaka 565-0871

² 〒565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-1 大阪大学 光科学センター
Photon Pioneers Center, Osaka University, 2-1 Yamada-oka, Suita, Osaka 565-0871

* Electronic address: norimasa.ozaki@eei.eng.osaka-u.ac.jp

Fig. 1. Schematic of simple shock wave in a sample travelling at velocity U_s in the x direction, where P , V , E , and u_p are pressure, volume, internal energy, and particle velocity, respectively. Subscripts H and 0 denote Hugoniot (shock) and initial states, respectively.

登場によって新しい展開を見せ始めている。そして現在、静的圧縮の研究者にとっての大型放射光施設に対応するような、動的圧縮研究者にとってこれまで無かった観測の「目」、すなわち超高速・超高輝度の光がツールとして登場してきた[10,11]。動的超高压研究にとっての長年の課題、すなわち物質のミクロな構造が実時間その場で見えるか？ に対して、この高輝度コヒーレント光源が新たなブレイクスルーをもたらすかもしれない。

物質科学が、物質の多様性を体系的に理解しようとする学術であるとするなら、パワーレーザーショックと高輝度 X 線光源の融合は、これまで見いだされてこなかった新しい物質の多様性を探求するためのひとつの方向性と言えないだろうか。同分野の興味の対象をテラパスカルの「極超高压力」や、ピコ秒やフェムト秒の「極短時間」にまで拡げ、これまで未開拓であった圧力と時間の領域に踏み込むことは、既存の学術の拡張や融合を期待させる。本稿では、この研究の方向性を必然と感じさせる特筆すべき最新の研究成果を二つ程紹介したいと思う。読者の皆さんが、「テラパスカル」や「フェムト秒」というキーワードで妄想や想像を膨らませてくれるなら望外の喜びである。

2. 超高速構造相転移：シリコンの半導体-金属転移

これまで、いくつかの光学的に透明な絶縁体に関して、衝撃圧縮下での金属化が報告されてきた[12–16]。しかしながら石英を始めとする一般的な絶縁体のバンドギャップ（数 eV）をショック圧力の効

果のみで閉じることは困難である。つまり、衝撃圧縮時のエントロピー増による温度上昇により、液体金属状態への相変化がおきる。言い換えればこれら絶縁体の衝撃圧縮曲線上には固体の金属相が存在しないとも言える。

著者らは最近、固体-固体の金属転移を直接的に実証するため、衝撃圧縮曲線上の固体金属相が存在しうるシリコンについてレーザーショック実験を初めて行った。バンドギャップが約 1 eV の半導体であるシリコンは光学的に不透明であるため、通常の見え方のプローブを用いた VISAR 速度干渉計（可視 VISAR）[17]では試料内部を伝搬する衝撃波面を観察できない。そこで本研究では、シリコンに対して透明である赤外域のレーザー光をプローブとした赤外速度干渉計（赤外 VISAR）を構築し、ショック波面でおこる固体-固体の半導体金属転移の直接観測を試みた[18]。常温常圧下のシリコンは、YAG レーザーの基本波 1064 nm の光に対しては吸収係数 11.1 cm^{-1} であり、自由表面によるフレネル反射率 31.4% を考慮すると、50 μm 厚程度の試料では透過率は約 65% 程度と見積られる。実験ではさらに、自由表面反射を抑制するために多層膜無反射コーティングを施して、ほぼ 100% に近い透過率を実現した。Fig. 2a に実験配置の概略図を示す。比較のために、YAG レーザーの 2 倍高調波 532 nm の光をプローブとする可視 VISAR を同時に使用した。被観測試料である Si 箔は、CH アプレータと Al からなる基盤に接着した。このターゲットに高強度レーザーをアプレータ側から集光照射して平面衝撃波を駆動し、シリコンを衝撃圧縮した。Fig. 2b, c に、赤外および可視 VISAR の画像データをそれぞれ示す。Fig. 2b では、衝撃波が Al/Si 界面に到達した時刻 $t=0$ にフリンジの不連続シフト、およびそれ以降では連続的な変化が観測されている。一方 Fig. 2c では、532 nm の光はシリコン内部に侵入できないため、同時刻でのフリンジシフトは全く確認できない。すなわち、赤外 VISAR において $t=0$ 以降で観測されたフリンジシフトを生んでいる強い光反射は、衝撃波面が侵入した瞬間にシリコンが金属状態になったことを示唆している。計測されたフリンジシフト量からは、 $t=0$ の瞬間に約 10 km s^{-1} の衝撃波がシリコンに侵入したことがわかった。また、このときの粒子は瞬間的に 5 km s^{-1} 程度の速度に加速されており、また圧力は 100 GPa 超となっていることがわかった。

海洋をまとった、これまで発見されている惑星の中でもユニークなものであると言えるだろう。一方、太陽系内外の大型惑星に含まれる水は、主に温度が数 1000 K 以上の、暖かい高密度の水として存在している。しかしながらこの“warm dense water”の振舞いは、物理的・化学的に性質が大きく変わる相境界領域で、実験的な進展がみられていない。2009 年、世界で 2 番目に発見されたへびつかい座に属する恒星を親星とするスーパーアース、GJ 1214b [23]は、地球の 6 倍程度のサイズであるにもかかわらず平均密度が小さく、膨大な量の軽元素化合物、例えば水で構成されている可能性が指摘された[24]。最近我々は、このスーパーアース内部の状態を実験室で実現し、“water world”惑星モデル[25]の妥当性を左右する衝撃圧縮データおよび物性データを取得した。

静的圧縮法と動的圧縮法を組み合わせた低エントロピーショック圧縮の手法が注目されて久しい[4,26–28]。これは、レーザーの方法が持つ高エネルギー密度性を効果的に用いた典型的な例と言える。ここでは、DAC とパワーレーザーを組み合わせた水に関する低エントロピーレーザーショック圧縮実験を行った。初期密度（圧力）を増加させた水を封入した DAC にナノ秒のパワーレーザーを集光照射し、エントロピー増を抑制しつつ衝撃圧縮を行った[29]。本実験での予備圧縮圧力は 500 MPa までであった。Fig. 3a に実験配置の概略図を示す。計測には可視 VISAR と放射輝度温度計を同時に使い、圧力と体積の関数として温度や光反射率を初めて実験的に決定した。水が封入された試料室の内部には状態方程式標準として結晶石英を入れ[27,30,31]、石英と水の衝撃波速度を同時に計測し、状態量などを高精度で決定した。実験で得られた結果を Fig. 3b に示す。通常の水（Unprecompressed water, UPCW）、および予備圧縮した水（Precompressed water, PCW）のデータは共に、water world モデルを構築するために用いられた第一原理計算[32]による状態方程式[33]と非常によく一致した。衝撃圧縮時のエントロピー増が予備圧縮の効果で抑えられ、同じ圧力の UPCW に比べて 3000 K 程度もショック温度の低い超高压状態が実現された。得られた UPCW, PCW の圧縮曲線は共にスーパーアースの等エントロピー曲線と、それぞれ約 85 GPa, 125 GPa で重なっている。それぞれの圧力において計測された光反射率は 2–2.5% であり、対応する電

Fig. 3. Configuration and data for laboratory synthesis of warm dense fluid water. (a) Schematic experimental arrangement for a precompressed water target. The precompression pressure was measured using the ruby fluorescence method and varied between 0.51–0.58 GPa. (b) Experimental P – T data compared with theoretical GJ 1214b isentropes [25]. The water P – T data for PCW (solid circles) and UPCW (solid squares) are shown in the phase diagram derived from the *ab-initio* simulations [32,33]. Shock compression curves (Hugoniot) for PCW and UPCW predicted by the *ab-initio* calculation are also shown as solid lines. The previous experimental lower- P data are also shown (open squares) [34]. The planetary isentropes of GJ 1214b (Neptune) are shown with black and gray dashed lines (dot dashed) assumed with the envelope atmosphere pressures at 10 MPa and 30 MPa, respectively.

気伝導度は $200\text{--}260\ \Omega^{-1}\text{cm}^{-1}$ と推量される。このことは、半金属程度の伝導度を有する励起された水が GJ 1214b 内部の半分程度を占めており、惑星磁場の形成に寄与していることを意味している。

実験室での系外惑星内部探査が可能となったことは、その惑星を含む天体系形成過程の理解に重要な一歩と言える。今後、岩石が主要な構成要素と考えられているスーパーアースの内部構造に関する実験的研究も進展していくだろう。系外惑星進化の理解は、我々の太陽系や地球に似た天体系や惑星の探査に繋がるものであり、そのような研究に高輝度コ

ヒーレント光源とパワーレーザーの融合が重要な役割を果たす可能性がある。

4. おわりに

パワーレーザーの高エネルギー密度性を活かして既存の圧力を一桁、時間を三桁以上拡張し、登場してきた高輝度コヒーレント光源を駆使すれば、物理学や化学を内包する物質科学に、テラパスカル科学やフェムト秒物質科学とも呼ぶべきフロンティアが開拓される。さらに、ここで紹介した系外惑星内部の実験室合成は、まさにこの極限物質状態を対象とする分野横断的な新しい複合科学の研究アプローチとして重要となる可能性がある。今後、静的の高圧実験データと動的高圧実験データの類似性や相違性を追求しながら、テラパスカルの極超高圧下の物質の振舞いさえも明らかにされていくだろう。地球上で最も硬いダイヤモンドも、テラパスカルの圧力領域で金属化すると予想されている[35,36]。ダイヤモンドをそのような超高密度まで圧縮する術は、衝撃波圧縮を始めとする動的圧縮の方法でしかあり得ない。パワーレーザー超高圧と高輝度コヒーレント光の融合が、高圧科学の関連分野において多種多様な研究の機会を与えるきっかけになればと思う。新しい極限環境下で、金属化した炭素をはじめとする多様な物質やその特性が見いだされていくはずである。

謝 辞

ここでの研究成果は、木村友亮博士、佐野孝好博士、佐野智一博士、奥地拓生博士を始めとする多くの共同研究者や、宮西宏併氏を始めとする学生の皆さんの協力の下に得られたものです。ここに改めて謝意を表します。本研究の一部は、大阪大学レーザーエネルギー学研究センターの共同研究のもとに実施されました。また、日本学術振興会「先端拠点研究事業」、文部科学省委託事業「X線自由電子レーザー重点戦略研究課題」の支援を受けて進められました。

参考文献

- [1] E. Wigner, H.B. Huntington: J. Chem. Phys., **3**, 764 (1935).
- [2] N.W. Ashcroft: Phys. Rev. Lett., **21**, 1748

- (1968).
- [3] G.W. Collins, L.B. Da Silva, P. Celliers, D.M. Gold, M.E. Foord, R.J. Wallace, A. Ng, S.V. Weber, K.S. Budil, R. Cauble: Science, **281**, 1178 (1998).
- [4] P. Loubeyre, P.M. Celliers, D.G. Hicks, E. Henry, A. Dewaele, J. Pasley, J. Eggert, M. Koenig, F. Occelli, K.M. Lee, R. Jeanloz, D. Neely, A. Benuzzi-Mounaix, D. Bradley, M. Bastea, S. Moon, G.W. Collins: High Press. Res., **24**, 25 (2004).
- [5] B. Yaakobi, T. R. Boehly, D.D. Meyerhofer, T.J. B. Collins, B.A. Remington, P.G. Allen, S.M. Pollaine, H.E. Lorenzana, J.H. Eggert: Phys. Rev. Lett., **95**, 075501 (2005).
- [6] D.H. Kalantar, J.F. Belak, G.W. Collins, J.D. Colvin, H.M. Davies, J.H. Eggert, T.C. Germann, J. Hawreliak, B.L. Holian, K. Kadau, P.S. Lomdahl, H.E. Lorenzana, M.A. Meyers, K. Rosolankova, M.S. Schneider, J. Sheppard, J.S. Stolken, J.S. Wark: Phys. Rev. Lett., **95**, 075502 (2005).
- [7] A. Ravasio, G. Gregori, A. Benuzzi-Mounaix, J. Daligault, A. Delserieys, A. Ya. Faenov, B. Loupias, N. Ozaki, M. Rabec le Gloahec, T.A. Pikuz, D. Riley, M. Koenig: Phys. Rev. Lett., **99**, 135006 (2007).
- [8] A.L. Kritcher, P. Neumayer, J. Castor, T. Doppner, R.W. Falcone, O.L. Landen, H. Ja Lee, R.W. Lee, E.C. Morse, A. Ng, S. Pollaine, D. Price, S.H. Glenzer: Science, **322**, 69 (2008).
- [9] A. Ravasio, L. Romagnani, S. Le Pape, A. Benuzzi-Mounaix, C. Cecchetti, D. Batani, T. Boehly, M. Borghesi, R. Dezulian, L. Gremillet, E. Henry, D. Hicks, B. Loupias, A. MacKinnon, N. Ozaki, H.S. Park, P. Patel, A. Schiavi, T. Vinci, R. Clarke, M. Notley, S. Bandyopadhyay, M. Koenig: Phys. Rev. E, **82**, 016407 (2010).
- [10] P. Emma *et al.*: Nature Photonics, **4**, 641 (2010).
- [11] T. Ishikawa *et al.*: Nature Photonics, **6**, 540 (2012).
- [12] P.M. Celliers, G.W. Collins, L.B. Da Silva, D.M. Gold, R. Cauble, R.J. Wallace, M.E. Foord, B.A. Hammel: Phys. Rev. Lett., **84**, 5564 (2000).
- [13] D.G. Hicks, P.M. Celliers, G.W. Collins, J.H. Eggert, S.J. Moon: Phys. Rev. Lett., **91**, 035502 (2003).
- [14] D.K. Bradley J.H. Eggert, D.G. Hicks, P.M. Celliers, S.J. Moon, R.C. Cauble, G.W. Collins: Phys. Rev. Lett., **93**, 195506 (2004).
- [15] D.G. Hicks, T.R. Boehly, J.H. Eggert, J.E. Miller, P.M. Celliers, G.W. Collins: Phys. Rev. Lett., **97**, 025502 (2006).
- [16] N. Ozaki, T. Sano, M. Ikoma, K. Shigemori, T. Kimura, K. Miyamishi, 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, R. Kodama: *Phys. Plasmas*, **16**, 062702 (2009).
- [17] P.M. Celliers, D.K. Bradley, G.W. Collins, D.G. Hicks, T.R. Boehly, W.J. Armstrong: *Rev. Sci. Instrum.*, **75**, 4916 (2004).
- [18] 横山尚也, 尾崎典雅, 佐野智一, 曾田智史, 木村友亮, 宮西宏併, 浅海雄人, 浦西宏幸, 佐野孝好, 坂和洋一, 廣瀬明夫, 兒玉了祐: *プラズマ・核融合学会誌*, **88**, 249 (2012).
- [19] H. Oliynyk, S.K. Sikka, W.B. Holzapfel: *Phys. Lett. A*, **103**, 137 (1984).
- [20] S.J. Duclos, Y.K. Vohra, A.L. Ruoff: *Phys. Rev. Lett.*, **58**, 775 (1987).
- [21] S.J. Duclos, Y.K. Vohra, A.L. Ruoff: *Phys. Rev. B*, **41**, 12021 (1990).
- [22] J.A. Hawreliak, B. El-Dasher, H. Lorenzana, G. Kimminau, A. Higginbotham, B. Nagler, S.M. Vinko, W.J. Murphy, T. Whitcher, J.S. Wark, S. Rothman, N. Park: *Phys. Rev. B*, **83**, 144114 (2011).
- [23] D. Charbonneau *et al.*: *Nature (London)*, **462**, 891 (2009).
- [24] L.A. Rogers, S. Seager: *Astrophys. J.*, **716**, 1208 (2010).
- [25] N. Nettelmann, J.J. Fortney, U. Kramm, R. Redmer: *Astrophys. J.*, **733**, 2 (2011).
- [26] K.M. Lee, L.R. Benedetti, R. Jeanloz, P.M. Celliers, J.H. Eggert, D.G. Hicks, S.J. Moon, A. Mackinnon, G. W. Collins, E. Henry, Michel Koenig, A. Benuzzi-Mounaix: *J. Chem. Phys.*, **125**, 014701 (2006).
- [27] J. Eggert, S. Brygoo, P. Loubeyre, R.S. McWilliams, P.M. Celliers, D.G. Hicks, T.R. Boehly, R. Jeanloz, G.W. Collins: *Phys. Rev. Lett.*, **100**, 124503 (2008).
- [28] T. Kimura, N. Ozaki, T. Okuchi, T. Terai, T. Sano, K. Shimizu, T. Sano, M. Koenig, A. Hirose, T. Kakeshita, Y. Sakawa, R. Kodama: *Phys. Plasmas*, **17**, 054502 (2010).
- [29] N. Ozaki, T. Kimura, T. Okuchi, M. French, T. Kakeshita, M. Kita, K. Miyanishi, R. Redmer, T. Sano, T. Sano, K. Shimizu, T. Terai, R. Kodama: *submitted*.
- [30] D. G. Hicks *et al.*: *Phys. Plasmas*, **12**, 082701 (2005).
- [31] M. D. Knudson *et al.*: *Phys. Rev. Lett.*, **103**, 225501 (2009).
- [32] M. French, T.R. Mattsson, N. Nettelmann, R. Redmer: *Phys. Rev. B*, **79**, 054107 (2009).
- [33] R. Redmer, N. Nettelmann, R. R. Mattson, M. French: *Icarus*, **211**, 798 (2011).
- [34] G.A. Lyzenga, T.J. Ahrens, W.J. Nellis, A.C. Mitchell: *J. Chem. Phys.*, **76**, 6282 (1982).
- [35] M.P. Grumbach, R.M. Martin: *Phys. Rev. B*, **54**, 15730 (1996).
- [36] A.A. Correa, L.X. Benedict, D.A. Young, E. Schwegler, S.A. Bonev: *Phys. Rev. B*, **78**, 24101 (2008).
- [2013年7月1日受付, 2014年1月31日受理]
© 2014 日本高圧力学会