その場実時間X線回折によるレーザー衝撃圧縮下の 物質ダイナミクス観測実験

佐藤 友哉¹, 尾崎 典雅^{1,2}, 浦西 宏幸¹, 浅海 雄人¹, 池谷 正太郎¹, 大谷 栄治³, 喜田 美佳¹,
近藤 良彦¹, 宮西 宏併¹, 小川 剛史¹, 坂和 洋一⁴, 佐野 孝好⁴, 児玉 了祐^{1,2}

¹大阪大学大学院 工学研究科 (〒565-0871 大阪府吹田市山田丘2-1)

²大阪大学 光科学センター (〒565-0871 大阪府吹田市山田丘2-1)

³東北大学大学院 理学研究科 (〒980-8578 宮城県仙台市青葉区荒巻字青葉6-3)

⁴大阪大学 レーザーエネルギー学研究センター (〒565-0871 大阪府吹田市山田丘2-6)

Observation Experiment of Material Dynamics under Laser-Shock Compression with In-situ Real Time X-ray Diffraction

Yuya SATO,¹ Norimasa OZAKI,^{1,2} Hiroyuki URANISHI,¹ Yuto ASAUMI,¹ Shotaro IKETANI,¹
Eiji OHTANI,³ Mika KITA,¹ Yoshihiko KONDO,¹ Kohei MIYANISHI,¹ Tsuyoshi OGAWA,¹
Youichi SAKAWA,⁴ Takayoshi SANO,⁴ and Ryosuke KODAMA^{1,2}

¹Graduate School of Engineering, Osaka University, 2-1 Yamadaoka, Suita, Osaka 565-0871

²Photon Pioneers Center, Osaka University, 2-1 Yamadaoka, Suita, Osaka 565-0871

³Graduate School of Science, Tohoku University, 6-3 Aoba, Aramaki, Aoba, Sendai, Miyagi 980-8578

⁴Institute of Laser Engineering, Osaka University, 2-6 Yamadaoka, Suita, Osaka 565-0871

(Received March 29, 2014)

We performed measurement of laser-shock compressed silicon along [001] orientation using in-situ wide-angle x-ray diffraction technique and line-imaging velocimetry (VISAR). The x-ray diffraction detector film recorded x-rays that are diffracted from multiple lattice planes. These diffracted x-rays indicate uncompressed state and compressed state. VISAR interferometry image shows a specific rear-surface velocity change indicating that a shock wave propagate in the silicon target. These data provide information on the crystal structure and stress state under shock compression.

Key Words: Dynamic compression, Shock wave, X-ray diffraction, Laser plasma, VISAR

1. はじめに

物質に圧力を加える方法は大きく二つに分類できる。系の時間変化のない静的な圧縮方法と系の時間変動性がある動的な圧縮方法である。物質の変形には系の時間軸が大きく関係しており、静的圧縮と動的圧縮では物質にかかる応力場は全く異なる。また、動的圧縮に限ってもマイクロ秒からフェムト秒までの広い時間スケールで材料に衝撃負荷を与えることができるようになってきたため、その衝撃負荷時間によっても材料の挙動は大きく異なり¹⁻³⁾、衝撃負荷下の物質ダイナミクスは理工学の広い分野の興味の対象となっている。動的圧縮法としては爆薬法、衝撃銃法、磁場加速法などがあるが、近年レーザー圧縮法の発展が顕著である。レーザーを用いた方法の特徴は、空間的にも時間的にもエネルギー密度の高い状態を作り出すのが容易であるという点である。これにより、テラパスカルのような極超高压状態や^{4,5)}、

フェムト秒レーザーを用いた超高速非平衡圧縮が実現可能となった⁶⁾。物質は衝撃波により断熱不可逆的に圧縮される。このとき物質は圧力の上昇に伴い温度の上昇も生じるのだが、レーザーランプ圧縮法によれば等エントロピー的な圧縮も可能になり、オフユゴニオ状態も実現することが可能となった^{7,8)}。このようにレーザー圧縮法は、探索可能な領域が広いことから、非常に革新的な圧縮法であると言える。

極限状態の物質の挙動を理解する上で、特に相転移による物質ダイナミクスの理解は避けて通れない問題である。物質ダイナミクスを理解するためには、圧力、密度、温度といった状態量と原子レベルでの構造に関する状態を得ることが必要不可欠である。前者においては、線結像型速度干渉計(Velocity Interferometer System for Reflector: VISAR)を用いて計測する方法がレーザー衝撃圧縮法では可能になってきた。後者においては、X線をプローブに用いるのが普遍的な超高压研究のアプローチ

であろう。従来の衝撃圧縮実験に比べて、レーザー衝撃圧縮法ではその場実時間X線診断が比較的容易に行えるが、パルスX線プローブを用いた構造解析実験の例はまだ少なく、超高压下の構造解析や相転移の直接観測の例は極端に少ない⁹⁻¹¹⁾。プローブX線によるポンププローブ衝撃圧縮実験のプラットフォームを確立することが早急に求められている。

本稿では、レーザー駆動の超高速衝撃圧縮下のシリコンに対して、レーザープラズマX線源プローブによるシングルショットのその場実時間広角X線回折診断と可視光プローブVISARによる物質応答計測を同時に行い、シリコン内部を伝搬する衝撃波の観測と結晶構造の変化を観測した結果について述べる。シリコンは超高純度で理想的な単結晶を用意しやすいため、X線回折の基礎実験試料に適している。一方で、様々な高压構造相転移が室温静的圧縮下で確認されているが、動的圧縮下の格子の振る舞いや物質状態をさらに深く理解するため^{12,13)}、実験的検討が求められている。

2. その場実時間広角X線回折計測実験

X線回折は固体の結晶構造を直接決定するための強力な計測手法であるが、ここでは我々が用いたその場広角X線回折計測の原理について説明する。

2.1 広角X線回折原理

X線回折とは、原子が規則的に配列した結晶にX線が入射すると、ある特定の方向で強いX線が観察される現象のことである。これは、波長 λ のX線が結晶中のある格子面に対して入射角 θ で入射するとき、

$$2d\sin\theta = n\lambda \quad (1)$$

の関係式を満たすと、入射X線に対して 2θ の方向に強い反射X線を観測することができる。(1)式はブラッグの条件式であり、 d は格子面の間隔である。また、 n は1, 2, ...の整数で、回折の次数を示す。

単結晶試料に対するX線回折を考える。特定の波長の単色X線がコリメートされて単結晶試料に入射すると、回折パターンはスポットとなって検出器上に現れる。一方、Fig. 1で示すように、点X線源を単結晶試料の近距離に置いた場合、X線源を頂点、結晶の位置を底面とした円錐を考えると、この円錐底面の周の一点一点がブラッグの条件を満足する場合、回折パターンは線となって現れる。

衝撃波により格子が圧縮されると、(1)式において θ の値が大きくなる。よって、未圧縮状態の格子面からの回折線に対して広角側へ新たな回折線が現れる。Fig. 1で示す格子面の面間隔と近い他の格子面もブラッグの条件を満足する場合、複数の格子面の情報を一度に取得することができ、試料の格子パラメータを一度に決定することができる。一方、試料が多結晶化すると回折線が取得できない。

レーザープラズマX線は準単色であり、光源サイズが

Fig. 1 Principle of the wide-angle x-ray diffraction technique.

レーザースポット径程度であるという特徴があるため、Fig. 1で示した原理が成立する。本実験では光源サイズ約300 μm のレーザープラズマX線をプローブX線に用いた。

2.2 レーザープラズマX線プローブ

高出力のパルスレーザーを固体ターゲット上に集光照射すると、レーザーのエネルギーは電子の運動エネルギーの増加や多光子吸収過程など、様々な過程により高温高密度のプラズマになる。X線は、生じたプラズマ中のイオンと電子の相互作用により発生する。本実験では、鉄プラズマからのHe- α 線をプローブとして用いた。高温プラズマにより鉄原子の外殻電子が剥がされヘリウム様イオンを形成する。このとき電子配置が2p-1sから1s²に変化し、X線を放出する。我々が用いたHe- α 線はK α 線、K β 線に比べて単色性が悪い。単色性を向上させるために、一般的にX線フィルタを使用する。各元素には吸収端があり、吸収端近傍ではX線の透過率が急激に変化し、吸収端の長波長側では急激に透過率が増加し、その後、波長が長くなるにつれ緩やかに減少する。このため、フィルタの材料と厚みを適切に選ぶことにより、特定のX線を取り出すことが可能である。本実験では鉄をフィルタとして用いた。

2.3 パワーレーザー衝撃圧縮

実験は、大阪大学レーザーエネルギー学研究センターの激光XII号を用いて行われた。本実験で用いたターゲットの写真をFig. 2 (a)に示す。ターゲットは、(厚み20 μm)非測定試料面方位(001)の単結晶シリコンと(厚み5 μm)Cuアブレーターのレイヤー試料、レーザープラズマX線源となるFe(10 μm)平板、X線が直接入射することを防ぐための金シールドから構成される。また、X線は単結晶シリコンに入射する前に単色性を向上させるためのフィルタを通過する。本実験では、鉄プラズマのHe- α 線(フォトンエネルギー6.7 keV)をプローブX線として用いた。また、鉄箔をX線フィルタとすることで鉄

Fig. 2 (a) The target used for this experiment is made of a of 20 μm thickness single crystal Si, a 5 μm thickness Cu, Fe-foil of laser plasma x-ray source, and x-ray shield (Au). This is approximately 7 mm in size. (b) Geometry of the experiment using the in-situ wide-angle x-ray diffraction and line-imaging VISAR.

のK吸収端7.1 keVより短い波長域のX線をカットした。鉄プラズマのHe- α 線を発生させるレーザーは波長351 nm, 鉄箔上でスポット径100 μm , レーザー強度約 10^{15} W/cm^2 である。Fig. 2 (b)は、本実験のセットアップである。波長527 nm, スポット径1 mm, 半値幅2.5 nsのレーザーをショックドライブレーザーとして用いて、試料に衝撃波を伝搬させる。衝撃波がCu/Siを越えてSiに入射すると、単結晶シリコンが[001]方向に衝撃圧縮される。衝撃圧縮されたシリコンの裏面にプローブX線を照射して衝撃圧縮下のシリコンのその場実時間X線回折計測を行った。X線回折像はイメージングプレートを用いて検出した。40 mm $\times$ 70 mmの大きさのイメージングプレートを試料から約20 mm離れた位置に設置した。

同時に、シリコン裏面に波長532 nmのプローブレーザーを照射し、その反射光をVISAR干渉計に導入し結像させてからストリークカメラ上に入射させ、シリコンの自由表面運動を計測した。VISARでは、反射面の高速運動による反射光のドップラーシフトを利用して、反射面の高速運動に応じたフリンジ(干渉縞)シフトを観測することができる。反射体の速度はシフト量から決定する。本実験では材質がBK7, 厚さ19.975 mmのエタロンを用いた。波長532 nmのプローブ光に対する速度感度 (Velocity Per Fringe: VPF) は2.24 km/sであった。

3. その場X線回折計測とVISAR計測の結果

Fig. 3 (a)と3 (b)に単結晶シリコンのその場広角X線回折計測の画像データを示す。Fig. 3 (a)はドライブレーザー照射前の未圧縮シリコンからの回折線イメージである。シリコンの複数の格子面からの回折線が得られていることがわかる。Fig. 3 (b)に、レーザー強度 $1.3 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ で衝撃圧縮されたシリコンからの回折線イメージを示す。衝撃圧縮方向に垂直な面である(004)面と、(004)面の格子間隔と近い格子間隔を持つ(113)面、(113)面、(224)面が観測された。ドライブレーザーとプローブX線の遅延時間は約3.1 nsであり、プローブX線のパルス幅は約800 psであった。Fig. 3 (a)で示した未圧縮のシリコンからの回折線に加えて、広角側(Fig. 3 (a), 3 (b)の上側)にシフトした回折線が明瞭に観測されている(Fig. 3 (b)中矢印)。(004)面について考

Fig. 3 The x-ray diffraction images from (a) uncompressed silicon, and (b) compressed silicon at a laser intensity $1.3 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$. This image shows that diffraction from cubic-diamond lattice, uniaxial compressed cubic-diamond lattice, and high pressure phase. (c) Sketch of lattice planes: (004), (113) and (113).

えると、未圧縮時の回折角度は 78.2° 、シフトした(004)面の回折角度は 84.1° であった。これは衝撃圧縮方向である[001]方向に約7%一軸圧縮された格子の状態を示す。

Fig. 4 (a)に同じ実験条件で取得されたVISARの画像データを示す。横方向は時間、縦方向は空間を表す。時間軸はショックドライブレーザー照射時を0 nsとしている。ショックドライブレーザー照射から約7.7 ns後、シリコン裏面で明瞭な自由表面運動が観測された。Fig. 4 (b)はVISARの画像データの一次元プロフィールを示す。ショックドライブレーザー照射から約7.7 ns後のシリコン裏面のピークの自由表面速度は約1.7 km/sであった。圧縮波が裏面に到達するまでに要する時間と、実験前に測定した試料の厚さから、圧縮波の速度を求めると、衝撃波速度は約8.4 km/sとなった。ランキンユゴニオの関係式を用いると圧縮率は約7%であった。Fig. 3 (b)で示すX線回折実験の結果から求めた圧縮率と非常に良く一致した。このことは、X線プローブと可視光プローブを同時に用いて衝撃圧縮下のシリコンのダイナミクスを観測できたことを示している。

また、圧縮波が裏面に到達するまでに要する時間と、実験前に測定した試料の厚さから求めた衝撃波速度はシリコンの音速と非常に良く一致した。このことから、7%の格子圧縮が弾性波によりなされたと考えられる。良く知られたシリコンの弾性限界応力に対応する格子圧縮率は5.5%であることから、本実験の結果は格子の状態が速度に強く依存する可能性を示唆している。動的圧縮下のこのような格子の振る舞いを理解するためには、応力や速度を変化させてさらに詳細な研究を

進めていく。

4. まとめ

パルスレーザー誘起衝撃波により動的圧縮された単結晶シリコンに対して、レーザープラズマX線プローブのその場広角X線回折計測による結晶構造の変化の直接観測と可視光プローブのVISARによる物質応答計測を同時に行うことを試みた。X線回折の結果より、未圧縮のシリコンからの回折線に加えて広角側にシフトした回折線を取得した。これにより衝撃圧縮下のシリコンの結晶構造の変形をサブナノ秒時間分解で観測することができた。シフトした回折線はシリコン内部を伝搬する弾性波により圧縮されたシリコンによるものであった。また、VISARの結果より、衝撃波がシリコン裏面に到達すると同時に明瞭な自由表面運動を観測した。両計測結果から求めた格子圧縮率は非常に良い一致を示した。

衝撃圧縮下の単結晶シリコンの結晶構造の変化とシリコン内部を伝搬する衝撃波を観測することができた。また、その場広角X線回折計測とVISARを用いた計測を同時に行うことができた。この手法を用いれば単結晶物質の高圧相の結晶構造を直接決定することが可能であり、テラパスカルといった極超高压力状態での新物質探索に繋がっていくものと期待される。また、超短パルスレーザープラズマ光源等を用いてX線のパルス幅を本実験で用いたX線のパルス幅より短くすれば、本実験を上回る時間分解能で広角X線回折計測をすることが原理的に可能であり、衝撃負荷下の物質のダイナミクスのさらなる解明が可能となる。

Fig. 4 (a) Experimental image obtained with VISAR interferometer showing motion of the silicon rear surface. (b) Free surface velocity history.

謝 辞

本研究の一部は、大阪大学レーザーエネルギー学研究中心の共同利用・共同研究のもとに実施されたものです。また、日本学術振興会「先端拠点研究事業」、科学技術振興会「JST-CREST」、文部科学省グローバルCOE「次世代電子デバイス教育研究開発拠点」および文部科学省X線自由電子レーザー重点戦略研究課題による支援を受けて進められました。

参考文献

- 1) A. Loveridge-Smith, A. Allen, J. Belak, T. Boehly, A. Hauer, B. Holian, D. Kalantar, G. Kyrala, R. W. Lee, P. Lomdahl, *et al.*: Phys. Rev. Lett. **86** (2001) 2349.
- 2) R. F. Smith, J. H. Eggert, R. E. Rudd, D. C. Swift, C. A. Bolme, and G. W. Collins: J. Appl. Phys. **110** (2011) 123515.
- 3) R. F. Smith, J. H. Eggert, D. C. Swift, J. Wang, T. S. Duffy, D. G. Braun, R. E. Rudd, D. B. Reisman, J.-P. Davis, M. D. Knudson, *et al.*: J. Appl. Phys. **114** (2013) 223507.
- 4) K. Wakabayashi, S. Hattori, T. Tange, Y. Fujimoto, M. Yoshida, N. Kozu, K. A. Tanaka, N. Ozaki, Y. Sasatani, H. Takenaka, *et al.*: Jpn. J. Appl. Phys. **39** (2000) 1815.
- 5) H. Nagao, K. G. Nakamura, K. Kondo, N. Ozaki, K. Takamatsu, T. Ono, T. Shiota, D. Ichinose, K. A. Tanaka, K. Wakabayashi, *et al.*: Phys. Plasmas. **13** (2006) 052705.
- 6) T. Sano, H. Mori, E. Ohmura, and I. Miyamoto: Appl. Phys. Lett. **83** (2003) 3498.

- 7) K. Miyanishi, N. Ozaki, E. Brambrink, H. G. Wei, A. Benuzzi-Mounaix, A. Ravasio, A. Diziè, T. Vinci, M. Koenig, and R. Kodama: J. Phys.: Conf. Ser. **215** (2010) 012199.
- 8) J. Wang, R. F. Smith, J. H. Eggert, D. G. Braun, T. R. Boehly, J. R. Patterson, P. M. Celliers, R. Jeanloz, G. W. Collins, and T. S. Duffy: J. Appl. Phys. **114** (2013) 023513.
- 9) 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, *et al.*: Phys. Rev. Lett. **95** (2005) 075502.
- 10) F. Coppari, R. F. Smith, J. H. Eggert, J. Wang, J. R. Rygg, A. Lazicki, J. A. Hawreliak, G. W. Collins, and T. S. Duffy: Nature Geoscience **6** (2013) 926.
- 11) J. Hu, K. Ichiyangi, T. Doki, A. Goto, T. Eda, K. Norimatsu, S. Shinichi, D. Horiuchi, Y. Kabasawa, S. Hayashi, *et al.*: Appl. Phys. Lett. **103** (2013) 161904.
- 12) H. Kishimura, H. Morishita, Y. H. Okano, Y. Hironaka, K. Kondo, and K. G. Nakamura: Phys. Rev. B **74** (2006) 224301.
- 13) Y. Hironaka, A. Yazaki, F. Saito, K. G. Nakamura, K. Kondo, H. Takenaka, and M. Yoshida: Appl. Phys. Lett. **77** (2000) 1967.