高出力パルスレーザーで加速した微小飛翔体の 衝突による衝撃実験

関根 利守, 小林 敬道, 吉田 正典*, 田中 和夫**

科学技術庁無機材質研究所 (〒 305-0044 茨城県つくば市並木 1-1)

*工業技術院 物質工学工業技術研究所 (〒 305-8565 茨城県つくば市東 1-1)

**大阪大学 レーザー核融合研究センター (〒 565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-6)

Impact Shock Experiments of Mini-Flyers Accelerated by High-Intensity Pulsed Lasers

Toshimori SEKINE, Takamichi KOBAYASHI, Masatake YOSHIDA,* and Kazuo TANAKA**

National Institute for Research in Inorganic Materials, 1-1 Namiki, Tsukuba, Ibaraki 305-0044

*National Institute of Materials and Chemical Research, 1-1 Higashi, Tsukuba, Ibaraki 305-8565

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

(Received January 18, 1999)

We have carried out impact experiment of Al mini-flyers, which have been accelerated by high intensity pulsed lasers to generate ultra-high, dynamic pressures. A laser intensity of about 50 TW/cm^2 can achieve an impact velocity of 40 km/s, corresponding to a terapascal range of pressure. Laser-shock recovery experiments of hBN and SiC were investigated up to 650 GPa, and recovered samples were compared with previous results by conventional shock experiments. Analyses of recovered samples reveal some differences in the quenched phase, which may apparently be attributed to short durations of laser-shock compressions.

Key Words: Laser shock, High-pressure generation, Sample recovery, hBN, SiC

1. はじめに

最近のレーザー技術の進展は目ざましいものがある。高密度パルス光の発生技術の進展に伴い、その高密度エネルギーを利用した超高圧力の発生は、米国や仏国などで研究が開始され1970年代に幾つかの基礎的な研究結果が発表されている^{1,4)}。この高密度パルス光レーザーを用いての超高圧力の発生は、通常の方法では達成不可能な圧力領域を目ざせる、くり返しが可能、測定系における制御の容易さ、などいくつかの点で従来の超高圧力発生技術とは大きく異なる。また同時に試料サイズが、通常の衝撃波実験^{注1)}の 10^{-1} ~ 10^{-3} 倍程度になるために注意しなければならない点が生じる。

特に、衝撃圧縮時間は従来の方法では数100ns ~ 数 μ s程度あるのに対して、レーザー衝撃波での持続時間は通常パルス幅程度になり、たかだか10nsであり1ns以下になることもあり得る。また試料サイズの点から発生できる衝撃波の平面性が問題になり一次元近似ができなくなり、精度の高いユゴニオ^{注2)}測定等を行う際には測定系の時間分解能

とともに空間分解能を高めたり、空間的に均一なレーザー光の制御が必要となる。

パルスレーザーによる衝撃波の発生には、直接レーザー照射法と間接レーザー照射法の2法がある。前者は、レーザー衝撃実験の初期から行われ現在も使用されている。一方、間接照射法には、X線を利用する衝撃波の発生法と微小飛翔体衝突法に大別される。

直接レーザー照射法ではアブレーションで生じる臨界電子密度を持つ層の役割が重要であり、この密度は $\lambda = 1.06\mu\text{m}$ の光に対して 10^{21} 個 cm^{-3} 位であり、これは常圧下での理想気体の1モルの密度の2~3桁大きい値である。この層は入射光が波長の長さ程度にわたって減衰する領域である。この層の前には急速に準安定的熱伝導帯が生じる。この熱伝導体はアブレーション流として粒子加速を行い衝撃波がたつ状態へと安定化する。一方、臨界電子密度層の背後には膨張プラズマが生じ、レーザー照射開始後数100psには音速で膨張する準定常流が生じる。この衝撃波で発生する圧力 P は、Alなどの場合レーザー波長 λ で強度

注1) 通常の衝撃波実験とは、1~10cmサイズの試料を用いて、爆薬法や衝撃銃での高速衝突法で得られる平面衝撃波を利用した従来の衝撃圧縮を言う。

注2) ユゴニオとは、衝撃波速度、圧力、密度、体積などの状態パラメータをプロットした関係。

I の時 $P(\text{GPa}) = 40 \left(\frac{I(\text{TW}/\text{cm}^2)}{\lambda(\mu\text{m})} \right)^{2/3}$ で近似される。典型的には、200GPa程度の圧力は発生可能である。しかし、強度 I が $10^3 \text{TW}/\text{cm}^2$ 程度になると、発生圧力は飽和し発生圧力の増加が見込めなくなる。

間接レーザー照射法のうちX線を利用する方法は、 $10^3 \text{TW}/\text{cm}^2$ を超えるようなX線を発生する強度以上のレーザー光に対して有効であり、電子温度が $T(\text{keV})$ の時、発生圧力 $P(\text{GPa})$ は次式で近似される。

$$P(\text{GPa}) = 2.3 \times 10^5 (T(\text{keV}))^{7/2}$$

この方法は、大型レーザー施設で複数のビームを使用し、状態方程式等の決定に使用されている^{5,6)}。また、微小飛翔体加速法は、レーザー照射で金属箔を加速し試料に超高速で衝突させる衝撃波発生法である。この場合の発生圧力は、衝突速度からインピーダンスマッチ法で算出できる。このような間接レーザー照射法は、試料の初期状態が既知であるので状態方程式を決定する場合には特に重要な条件になる。

本研究の目的は、通常の衝撃実験より超高压力の発生が可能な衝撃圧縮実験で物質科学的に何ができるかを実験的に検討することである。小論ではパルスレーザーエネルギーを利用した微小飛翔体の超高速衝突による衝撃波の発生およびその衝撃波の物質科学への応用について述べる。特に衝撃圧縮時間が通常の場合に比べて $10^{-2} \sim 10^{-4}$ 程度短時間になるので、この点について実験的な検討を加える。

2. 実験方法

レーザーは阪大レーザー研のGM IIを使用した。パルス幅500ps、波長527nm、エネルギー5～30Jであり、真空チャンバー中でビーム径1mmに集光した。従って、強度はおおよそ $10 \sim 70 \text{TW}/\text{cm}^2$ の範囲となる。計算機シミュレーションによればこのような条件下で厚み18 μm Al薄膜にレーザーを照射するとAl薄膜は固体ではないが最初の厚みに対し

Fig.1 Illustration of target assembly used in the present study. Expansion A is for shots to measure the impact velocity and expansion B is for recovery shots.

て大半の部分が一体となって加速され約1ns以降はほぼ等速度運動になる。従って、距離約100 μm の飛行後はほぼ等速度と近似される。

本実験では、まず、このレーザーパルスによって加速された微小飛翔体の速度を測定し、その衝突速度からインピーダンスマッチ法^{注3)}で圧力の算出をする。使用したターゲットはFig.1のようなものである。例えば10 μm 厚のAlが30km/sでAlに衝突したとすると発生圧力は、Alに対し衝撃波速度 U_s 、粒子速度 u_p の関係式

$$U_s = 5.35 + 1.34u_p \quad (1)$$

を使うと $P = 1030 \text{GPa}$ で圧縮持続時間は1ns程度になる。飛翔体の速度の測定は、カバーガラス(厚さ約150 μm)でできたステップ(Fig.2)にAl微小飛翔体が超高速で衝突した時に発光する現象をストリークカメラで記録し、ステップ段差の飛行時間(発光時間差)からその平均速度を算出する方法を採用した⁷⁾。

次に、衝撃回収実験を通して、試料回収を行う。衝撃回収実験については、通常の方法では特に100GPaを超える圧力領域からの試料回収は困難をきわめるが、総エネルギーの比較的小さいレーザー衝撃実験では、1TPa(1000GPa)領域からの試料回収も比較的容易であるので、BNやSiCなどに関する回収実験を行った。試料はFig.1に示されたように白金箔にサンドウィッチされ衝撃波の破壊から保護された。

出発原料の黒鉛状六方晶窒化ほう素(hBN)粉末⁸⁾は、厚さ約0.3 μm で粒径1～5 μm の板状結晶粉末である。 α -SiC粉末⁹⁾は平均径約0.4 μm で構造的には主として75%6H、15%15R、6%4Hからなり、 β -SiC粉末⁹⁾は平均粒径0.03 μm のほぼ球状な粒子で構造的には3Cタイプからなる。これらの粉末をピストンの間にはさみプレス成形し厚さ約50～100 μm で3mm×3mm程度の大きさにし、厚さ10 μm の白金箔でサンドウィッチしたものをターゲットとして作製した。

3. 実験結果

Fig.2に示されているように、衝突速度はストリーク写真によるステップ段差での発光開始時間のずれ $t_1 - t_0$ から平均速度が得られた。これらの測定された平均速度はTable 1にまとめられた。40km/s程度までの衝突速度が得られた。この時、微小飛翔体は既に固体ではないが、一体となって飛翔しているものと考えられる。衝突によって発生する圧力の推定には、この微小飛翔体の衝突前密度および衝撃波速度 U_s と粒子速度 u_p との関係式が必要であるが、本実験では大雑把であるが、使用したAl合金2024の密度 $2.70 \text{g}/\text{cm}^3$ および(1)式を使用した。これらの値を利用して、試料回収実験の際の照射エネルギーの測定から飛翔体速度を推定し、インピーダンスマッチ法により発生圧力の算出を行った。しかし上記の通り、飛翔体の衝突時の密度の不確かさが主な理由としてこの算出圧力値は10～20%程度大きく見

注3) インピーダンスマッチ法とは、境界面を衝撃波が伝播する時にその境界面で圧力と粒子速度が連続であるとする。実験的に良い近似であることが確認されている。

Fig.2 Laser accelerated Al flyer impacting on the step and a typical streak record observed in experiment. The step thickness was 150 μm .

Table 1 Velocity measurements of laser accelerated Al foil.

Al thickness (μm)	Laser energy (J)	Intensity (W/cm^2)	Impact velocity (km/s)
18	15.9	4.0×10^{13}	35
18	17.6	4.5×10^{13}	42
25	25.9	6.6×10^{13}	25

$\lambda = 527 \text{ nm}$, FWHM = 0.5 ns

積もられている。

回収実験の場合の圧力の算出は、インピーダンスマッチ法、および試料の U_s - u_p 関係式を使って算出された。試料が hBN の場合には、初期密度 $2.0 \text{ g}/\text{cm}^3$ で高压相領域の関係式

$$U_s (\text{km/s}) = 1.0 + 1.95u_p (\text{km/s})^{10} \quad (2)$$

SiC の場合には初期密度 $2.5 \text{ g}/\text{cm}^3$ で

$$U_s (\text{km/s}) = -0.2 + 2.8u_p (\text{km/s})^{11} \quad (3)$$

また白金に対しては密度 $21.4 \text{ g}/\text{cm}^3$,

$$U_s (\text{km/s}) = 3.68 + 1.46u_p (\text{km/s})^{10} \quad (4)$$

をそれぞれ使用した。実験後は、回収試料を白金箔からはがして衝撃を受けた部分(約直径 1mm)を採取し、電顕観察した。回収実験の実験条件は Table 2 にまとめられている。

Table 2 Experimental conditions of laser shock-recovered samples.

Run #	Sample	Al flyer (μm)	Energy (J)	Flyer velocity (km/s)	Pressure (GPa)
7R 3	hBN	25	4.4	4	11
7R 1	hBN	18	5.1	9	53
8R 5	hBN	18	16.1	33	640
7R16	αSiC	25	9.3	8	58
7R15	αSiC	18	13.8	28	670
7R 8	βSiC	18	11.4	22	420

hBN では圧力 11~640 GPa, SiC では 58~670 GPa の圧力領域で回収された。

Fig.3 と Fig.4 は hBN 回収試料の TEM 像と電子線回折図が示されている。実験 7R3 で圧力 11 GPa の回収試料からは特に変化は認められなかった。7R1 及び 8R5 の試料からは非晶質物質が含まれていることが確認された。また微細化された粒子が生成していて、それらの電子回折図からは低压相の hBN であることが確認できた。しかし、hBN の高压相であるウルツ鉱型 BN (wBN) やジंकブレンド型 BN (cBN) の存在は確認できなかった。また電顕観察中に不規則な形をした試料部分は電子線を受けて形を変えたり発泡したりする影響を受けるのが認められた。

Fig.3 Microphotographs of run product #7R1 showing amorphous spheres. Electron diffraction pattern is given at the right-hand side.

Fig.4 Microphotographs of run product #8R5 showing very fine particles of hBN (top) and amorphous grain (bottom). Each electron diffraction pattern is given at the right-hand side.

SiCの場合には、最初の粒形がhBNに比べて1桁以上小さく、粒子の微細化は認められなかった。また非晶質物質の生成も確認できず、高压結晶質相の生成も確認できなかった。従って、SiCの回収試料は、衝撃圧縮の効果を認める結果は得られなかった。

4. 考 察

本実験では強力パルスレーザーにより加速されたAl微小飛翔体の超高速衝突により衝撃波の発生および発生した衝撃波の物質科学的研究の検討を行った。hBNとSiCに対する衝撃波の効果を衝撃圧力11~670GPaで検討したが、いずれの回収試料中にも高压相の生成は確認されなかった。hBNについては非晶質化と微細化が認められたが、SiCについてはそれらは観察されなかった。これらの実験結果は、これまでの通常法による衝撃圧縮実験結果と比較することによって、レーザー衝撃波で物質科学的に何が出来るようかに対して検討を加えるための基礎となるであろう。

まずhBNについて考察する。通常の衝撃圧縮実験⁸⁾では、数々のhBN試料に対してユゴニオ結果が既知であり、約10GPaを超えると高压相転移が開始し、その高压相は回収試料の検討からwBNとして同定されている。またcBNを得るためには初期温度を高めたりくり返し衝撃圧縮する必要がある。これらの実験結果と対比して考えると今回のレーザー衝撃波実験では条件はシングルショックの状

態で試料厚みから考えて、衝撃波の反射による繰り返しショックは行われていないものと考えられる。従って、同じピーク圧力で比較した場合に通常の衝撃圧縮実験に比べて、試料はより高い衝撃温度を受けていると考えられる。例えば、実験7R1に相当するピーク圧力の時では通常の衝撃圧縮実験では回収試料中には70%以上のwBNが同定され、非晶質物質は観察されない。また、このhBN-wBN高压相転移機構は、hBNの層間つまりc軸方向に圧縮を受けるとファンデルワールス力で結合していた原子間に新たな結合ができ高压相へと転移する、非拡散転移と考えられている。従って、速度論的には充分速く進行する。hBN-wBN転移速度は、それぞれの結晶構造の相異から原子の動きをみると黒鉛-ダイヤモンド転移より速いと考えられ、黒鉛-ダイヤモンド相転移の場合にはユゴニオ測定から<10nsと実測されている¹²⁾。しかしながら、今回のレーザー衝撃波の実験では高压相が同定されなかったことから考えると高压相が急冷できなかったことになる。圧縮状態でユゴニオ上に現れる高压相が、そのまま凍結されるためには、圧縮状態からの圧力解放過程で断熱膨張から高压相がブロックされ残存しなければならない。このブロックには、生成した高压相を成長させ安定化させるためのある程度の時間がhBNの場合には必要だったのかも知れない。この点については通常の衝撃圧縮実験で圧縮時間を短くしてあるいはレーザー衝撃実験で圧縮時間を長くして検討する必要がある。

hBNは黒鉛に構造的にも物理化学的性質においてもよく

似ている。黒鉛の場合のレーザー衝撃波実験では、TPa領域の回収実験から非晶質炭素が同定され、また発泡したダイヤモンドが急冷された⁷⁾。この発泡ダイヤモンドの生成は、衝撃圧縮下で融解した単一原子から構成する液体炭素から断熱膨張過程で生成したものと考えられる。このことはhBNの液体から高压相が同様に生成するためには、炭素の場合程容易でないことを示している。2原子から構成される液体BNからは、それぞれの原子が周期的な結晶格子を組むのに、より長い時間が必要であるとして説明される。この考察においては、BNの相図は炭素の相図にきわめて類似していて、しかも平衡論的議論を前提としている。この前提は、近い将来実験的に確認する必要があることは言うまでもない。

次に、SiCについて考察する。最近の α -SiCと β -SiCのユゴニオ測定からそれぞれ100~120GPaで高压相への転移が開始し約140GPa以上では高压相領域になることが明らかになっている¹¹⁾。通常の衝撃圧縮実験での100GPa以上での回収試料からは、高压相の生成は認められていない¹³⁾。しかし、高压相については理論的考察¹⁴⁾やダイヤモンドアンビルでの実験結果¹⁵⁾で低压相と高压相との観測された体積差から配位数の増加を伴うNaCl型であると提案されている。レーザー衝撃実験で回収されたSiCにおいては、hBNの場合に認められたような非晶質化や微細化などの衝撃効果は認められなかった。これらのことからユゴニオ測定で認められた衝撃誘起高压相は、可逆的で急冷困難であると考えられる。しかしながらこのSiCにおける高压相転移は、含まれている炭素に注目すると、低压相ではダイヤモンドと同等の4配位であるが高压相がNaCl型だとすると6配位になり6配位炭素を有することになる。6配位炭素は、ダイヤモンドの高压相として現在注目されている¹⁶⁾。この6配位炭素は化学的にも物理的にもきわめて特異的な性質を有するものと考えられ、その合成は挑戦的なものであろう。そのためには少なくともTPa領域の圧力発生および持続時間の長い圧縮法が必要となる。このような超高压力の発生には、MJオーダの強力レーザーの利用は必要なのである。

5. まとめと今後の展望

高出力レーザーパルス利用による微小飛翔体の加速、超高速衝突による衝撃波の発生、超高压力の発生について実験的研究を行った。また、このレーザー衝撃圧縮を受けた試料の解析を通して物質科学的検討を行った。その結

果、通常の衝撃圧縮の結果とは異なることが明らかになった。これは衝撃圧縮時間が通常の衝撃圧縮時間の 10^{-3} ~ 10^{-2} 倍になっていることが大きく影響しているものと考えられる。

今後は、加速された微小飛翔体の形状の平面性、つまり発生する衝撃波の平面性を高め、通常の衝撃圧縮実験の結果と比較検討した上で、発生圧力領域を高めてゆく必要があり、更に精度の高い実験のためには基礎的データの取得が必要である。

謝 辞

本研究は、阪大レーザー研での共同研究として実施されたものである。本研究の費用の一部は、科学技術振興調整費総合研究「高密度パルス光の発生と先端物質制御に関する研究」から支援を受けた。

参考文献

- 1) C. G. M. van Kessel and R. Sigel: Phys. Rev. Lett. **33** (1974) 1020.
- 2) L. R. Veaser and J. C. Solem: Phys. Rev. Lett. **40** (1978) 1391.
- 3) R. J. Trainor, J. W. Shaner, J. M. Auerbach, and N. C. Holmes: Phys. Rev. Lett. **42** (1979) 1154.
- 4) R. Decoste, S. E. Bodner, B. H. Ripin, E. A. McLean, S. P. Obenshain, and C. M. Armstrong: Phys. Rev. Lett. **42** (1979) 1673.
- 5) R. Cauble, T. S. Perry, D. R. Back, K. S. Budil, B. A. Hammel, G. W. Collins, D. M. Gold, J. Dunn, P. Celliers, L. B. Da Silva, M. E. Foord, R. J. Wallace, R. E. Stewart, and N. C. Woolsey: Phys. Rev. Lett. **80** (1998) 1248.
- 6) 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, and R. Cauble: Science **281** (1998) 1178.
- 7) T. Sekine, M. Yoshida, and K. A. Tanaka: in *Advanced Materials '96 - New Trends in High Pressure Research* (NIRIM, Tsukuba, 1996) p.29.
- 8) T. Sekine, T. Kobayashi, and H. Nameki: J. Appl. Phys. **81** (1997) 527.
- 9) Y. Q. Zhu, T. Sekine, T. Kobayashi, and E. Takazawa: J. Mat. Sci. **33** (1998) 5883.
- 10) *LASL Shock Hugoniot Data*, ed. S. P. Marsh (Univ. of California Press, Berkeley, 1980) p.658.
- 11) T. Sekine and T. Kobayashi: Phys. Rev. **B55** (1997) 8034 and in *Shock Compression of Condensed Matter-1997* ed. S. C. Schmidt, D. P. Dandekar, and J. W. Forbes (AIP, Woodbury, 1998) p.141.
- 12) D. J. Erskine and W. J. Nellis: Nature **349** (1991) 317 and J. Appl. Phys. **71** (1992) 4882.
- 13) 関根 利守: 未発表.
- 14) K. Karch and F. Bechstedt: Phys. Rev. **B53** (1996) 13400.
- 15) M. Yoshida, A. Onodera, M. Ueno, K. Takemura, and O. Shimomura: Phys. Rev. **B48** (1993) 10587.
- 16) T. Sekine: Appl. Phys. Lett. **74** (1999) 350.