小特集レーザー誘起衝撃波圧縮を用いた状態方程式研究 3.レーザー誘起衝撃波圧縮による状態方程式計測 3.3 衝撃超高圧力下におけるタンタルの状態方程式計測

若 林 邦 彦

(独立行政法人 産業技術総合研究所 爆発安全研究センター 爆発衝撃研究チーム)

Equation-of-State Measurements by Laser-Induced Shock Compression Measurement of Equation of State of Tantalum Under Shock-Compressed State

WAKABAYASHI Kunihiko

Research Center for Explosion Safety, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST), Tsukuba 305-8565, Japan (Received 25 February 2004)

We performed equation of state measurements of tantalum using laser-induced shock waves. A strong shock wave (> TPa) was generated in tantalum by the direct irradiation of laser beams from the GEKKO/HIPER glass laser system (laser wavelength $\lambda_L = 351$ nm, laser pulse width $\tau_L = 2.5$ ns) of the ILE of Osaka University. A two-step, two-materials target, called a double-step target, was used in this experiment. The target assembly was fabricated from a base plate (aluminum or copper), a standard step (aluminum or copper), and a sample step (tantalum). The shock velocity was measured directly by observation of the emission from high temperature material or the change of the reflectivity of the rear surface of the target resulting from the arrival of the shock wave. Particle velocity and pressure were calculated using an impedance-matching technique. The obtained EOS data showed close agreement within the limits of experimental error with the extrapolation of the shock compression curve obtained by the conventional experimental shock technique.

Keywords:

ultra-high pressure, laser-induced shock wave, equation of state, tantalum

3.3.1 はじめに

衝撃圧縮技術とその実験手法は、大型の圧力プレスやダ イヤモンドアンビルセルなどの静的圧縮手法では到達困難 な超高圧力・超高温状態における物質の力学的(構成方程 式)・熱力学的(状態方程式)情報[1]を提供してきた.衝 撃圧縮実験によって得られた状態方程式データは、超高圧 力科学研究における圧力の一次基準(圧力スケール)とし て利用されており、これまでに、爆薬や軽ガス銃を用いて 多くの実験がなされ、様々な物質に関するデータが蓄積さ れている[2-6].また、衝撃圧縮誘起に特有な様々な相転移 現象も数多く観測され、これらの現象は、例えば衝撃圧縮 曲線の"不連続な折れ曲がり"や"飛び"として測定され てきた.これら衝撃波の伝播に伴う相転移現象は、通常の 熱的・光化学的励起機構とは異なり、純粋に原子間距離の 減少による力学的励起機構による相転移現象であるという ことができ、その詳細を正確に理解するためにも精密に状 態方程式を測定することが重要となる.

火薬類の爆発力や衝撃銃などを用いた従来型手法による 圧力の発生限界は、タングステンのような衝撃インピーダ ンスの高い物質同士を高速度に加速させ衝突させた場合で も数百 GPa(数百万気圧)程度であり、核爆発の爆発力を author's e-mail: k-wakabayashi@aist.go.jp 利用した実験[7,8]を除くと、これより高い圧力領域の データはほとんどない.

一方、慣性核融合研究のために開発されたレーザーシス テムはエネルギーフルーエンスが極めて高いため、このよ うなレーザーを照射することによって誘起されるアブレー ション反作用力を利用すると、容易に数 TPa(数千万気圧) の超高圧力を発生させることができる[9]. そのため, 誘起 された衝撃波に先行して試料を予備加熱してしまう影響 (X線等による先行過熱)が無視できる程度に小さい条件で は、状態方程式研究における非常に有用な超高圧力発生 ツールであるといえる. さらに, 膜厚さを最適化させた多 層構造のターゲットにレーザーを照射し、飛翔体を加速・ 衝突させる手法 (レーザーフライヤー法) は、レーザー直 接照射法で問題となる試料の先行過熱の影響を回避するこ とができるため,保存則を満たす理想的な実験条件で状態 方程式測定が可能となる.この場合,飛翔体は凝縮相のま ま高速度に加速・衝突させることが望ましく、飛翔体物質 としては例えば衝撃インピーダンスが高く、高融点物質で あるタンタルが適当である.

タンタル(Ta)は、金属物質の中でも最も融点が高い (2664℃)物質であり衝撃インピーダンスも高いなど特徴的 な性質を持つ金属物質であるため,将来的なレーザーフラ イヤー法による超高圧発生と状態方程式計測において有望 な飛翔体物質の一つと考えられている.また,常温・常圧 下では体心立法格子構造であるため,高圧力下ではより稠 密な構造へ相転移する可能性が考えられ物理的にも興味深 い物質の一つである.

ここでは、大阪大学レーザー核融合研究センターの HIPER/GEKKO レーザーシステムを用い、レーザー誘起 衝撃波圧縮によってタンタルの状態方程式測定を行い、核 爆発を利用した手法をも凌ぐ圧力領域における状態方程式 データを取得した結果について紹介する.

3.3.2 実験方法

衝撃波発生用レーザー

レーザー照射によって誘起される衝撃波面の形状はレー ザー照射強度の空間分布に強く依存し,圧縮状態(物質内 部の圧力分布)はレーザー照射強度の時間分布に強く依存 する.よって,レーザー誘起衝撃圧縮法によって信頼性の 高い状態方程式を決定することや,解析の容易さ,さらに は従来型手法によって測定されたデータと比較検討するた めには,空間的に平坦な波面を有し時間的に定常な衝撃波 を発生させることが非常に重要である[10].

本実験で使用した GEKKO/HIPER ガラスレーザー装置 は、レーザー核融合研究を目的としたレーザーである、こ の装置は12ビームのガラスレーザー(波長 1,053 nm)であ り、世界で二番目に大きな出力をもつ巨大なレーザー装置 である.レーザー発振器からターゲットチャンバまでの光 路長は約270mもあり、クリーンルーム内に設置されてい る. レーザー発振器での出力ビーム径は約5mm, エネル ギー 10 μJ 程度であるが,多数のガラスロッド型とガラス ディスク型増幅器を通過させながら12ビームに分割し、さ らにビーム径は次第に拡大されて、最終出力ビーム径 350 mmとなる. レーザーパルス幅は 0.1~3.0 ns の間で可変で あり、レーザー光の強度時間プロファイルも制御できる (矩形波形,三角波形など).12ビームの総出力エネルギー は最大 25 kJ で最大パワーは 55 TW (パルス幅 0.1 ns) を発 生でき、これは出力100万kWの原子力発電所の55,000個分 もの瞬間出力に相当する.GEKKO/HIPER レーザー装置 は、一方向からの12ビームバンドル照射配位となってお り、一次元的衝撃圧縮実験には適当なビーム配位となって いる. 12ビームのうち3ビームは2倍高調波 ($\lambda_{L} = 527$ nm), 9ビームは三倍高調波 ($\lambda_L = 351$ nm) であり,本実 験ではレーザー光エネルギーから圧力への変換効率の高い 三倍高調波を衝撃波発生用ドライバーレーザーとして使用 した.この三倍高調波レーザーは2次元時空間カラーサイ クル光 (2-Dimensional Smoothing by Spectrally Dispersion; 2D-SSD) とキノフォルム位相板 (Kinoform Phase Plates; KPPs)の導入により、照射強度分布の不均一性が顕 著に改善されている、両者を併用することで優れた照射強 度の均一性を達成し、ターゲット面上でのレーザー照射強 度は 10¹⁴ W/cm² 程度である(照射スポット径600または $1,000 \,\mu m$).



Fig. 1 Schematic drawing of experimental setup for equation of state measurements.

計測方法

実験装置の設置状況(模式図)を Fig.1 に示す. ターゲッ ト表面にHIPERレーザーを直接照射し、誘起された衝撃波 が試料内部を伝播した後、ターゲット裏面に到達した時刻 を観測した.予め試料の形状や厚さがわかっている場合. 状態方程式がわかっている標準物質の衝撃波伝播時間と被 測定物質(タンタル)の衝撃波伝播時間を測定することで それぞれの衝撃波速度を測定することができ、インピーダ ンスマッチング法によって、被測定物質の状態方程式点を 決めることができる、ターゲット裏面に衝撃波が到達した 時刻を測定するためには、次のような2種類の方法を用い た、一つは自発光法と呼ばれる方法であり、衝撃波がター ゲット裏面に到達した際に発生する高温プラズマの発光現 象をストリークカメラで時間・空間分解計測する方法であ る.この手法は計測光学系が単純であるため調整が容易で あり,発生圧力が高く十分な強度の発光が期待できる実験 条件の場合には非常に有効な方法である。もう一つの方法 は反射光法と呼ばれる方法であり、ターゲット裏面に診断 光(プローブ光)を照射しておき、衝撃波が試料背面に到 達したときにターゲット裏面の反射率が変化する現象をス トリークカメラで観測する方法である.この方法は、噴出 プラズマから十分な発光強度を得られない実験条件(比較 的低圧力の場合)の場合,非常に有効である.本実験では プローブ光として、インジェクションシーダー付 Nd³⁺: YAG レーザーの2倍高調波を用い,0.7 MW/cm² 以下の強 度でターゲット裏面に照射した.

ターゲット

レーザー誘起衝撃波を利用して物質の状態方程式を測定 するためには、誘起される衝撃波のキャラクタリゼージョ ン(時間,空間プロファイル)と、その結果を考慮した上 でのターゲット設計が重要である.本実験では、金属箔平 板や金属製ウェッジ板を用いた衝撃波面形状や衝撃波の定 常性検証実験の結果と計算機シミュレーションを併用し、 ターゲット構成や厚さ等を決定した.ラグランジアン一次 元流体力学コード MY1dl-laser[11]を使用し、標準物質内 部を伝播した衝撃波が被測定物質(タンタル)内部に伝播 し、タンタル内部で衝撃波が定常的に伝播できる距離 (レーザー照射面から侵入する希薄波が衝撃波面の追いつ Special Topic Article

Measurement of Equation of State of Tantalum Under Shock Compressed State



for reflected light measurement

Fig. 2 A static drawing of the configuration of the laser irradiation setup and the target assembly. Ta ; tantalum sample, Std ; Al or Cu (as standard material).

く距離)を数値計算から類推し、余裕を持って状態方程式 測定が可能なタンタル試料の厚さを決定した.この計算 コードでは、アブレーション圧力式(式(1))[9]を用いて レーザー強度時間分布に応じた矩形の圧力パルスを物質に 与え、物質内部の衝撃波の発生にはノイマン型人工粘性項 を用いた.

$$P = 0.86\lambda^{-2/3}I^{2/3} \tag{(1)}$$

ここで, 圧力 *P* [TPa], 波長 λ [μm], レーザー照射強度 *I* [10¹⁴ W/cm²]である.

本実験ではダブルステップターゲットと呼ばれるター ゲット構成を使用した. Fig. 2にその模式図を示す. 状態方 程式がわかっている標準試料[4-7]には、アルミニウムま たは銅を使用した. アルミニウム箔は、東洋アルミニウム (㈱製 (密度: $\rho_0^{\text{Al}} = 2.710 \text{ g/cm}^3$)を入手した状態のまま使用 した. 銅 ($\rho_0^{Cu} = 8.94 \text{ g/cm}^3$) およびタンタル ($\rho_0^{Ta} = 16.66$ g/cm³)は(㈱ニラコ社製のものを用い、両面をコロイダル シリカの研磨液とダイヤモンドペーストで凹凸が 30 nm 以下になるまで研磨して使用した. 基板となる標準物質箔 (アルミニウム 40 µm または銅 20 µm 厚さ)の上に標準物質 ステップ (アルミニウム 20 μm または銅 20 μm 厚さ) と被 測定物質(タンタル10または15µm厚さ)ステップを約100 μmの間を隔てて単分子膜接着法[12]によって接着した. 単分子膜接着法を用いると、金属箔同士を接着剤を用いず に分子レベルの接着層(10 nm 以下)で接着させることが可 能である.また自発光法によって噴出プラズマを観測しや すくするために、ターゲット裏面に1,000Å厚さのアルミニ ウムを蒸着した. 自発光試料の表面状態およびステップ高 さは表面形状測定器(Keyence 社製 VF-7510 および LT-8100) で測定した.

3.3.3 実験結果

自発光法および反射光法により測定されたストリーク画 像の代表例を, Fig. 3 および Fig. 4 にそれぞれ示す. Fig. 3 および Fig. 4 のレーザー照射条件は, それぞれ 1.7×10¹⁴ W /cm², 0.14×10¹⁴ W/cm² であった.比較的レーザー照射条 件が高く高圧力が発生している条件では自発光法







opuce o to mill

Fig. 4 Streak camera records of the reflectivity change at the target rear-surface.

(Fig.3)が有効であり、低圧力領域での実験では反射光法 (Fig.4) による測定が有効であることがわかる. 実験に よって得られたストリーク画像から、それぞれのステップ 部分での発光または反射率減衰の時間差を読み取り、ス テップ高さから衝撃波速度を求め、インピーダンスマッチ ング法によってタンタルの圧力と粒子速度関係を求めた結 果を Fig.5 に示す. これまでにレーザー誘起衝撃波を用い て200~1.700 GPaの領域で状態方程式データが得られてい る.本実験によって得られた状態方程式データは、従来型 手法によって低圧力領域で測定されたデータの外挿曲線 と、実験誤差の範囲内でほぼ同様な傾向を示した。超高圧 力下においてタンタルがより稠密な構造へ相転移を起こし た場合(例えば bcc→fcc など), 圧縮率に大きな変化が観測 されるはずである.また、衝撃圧縮下の音速測定から300 GPa 付近で液相に入ることも報告されている[13].よっ て、本実験では 1.7 TPa までのタンタルの状態方程式を測

Journal of Plasma and Fusion Research Vol.80, No.6 June 2004



Fig. 5 Experimental results (▲) for tantalum EOS in the P vs. Up plane, along with the data from literature (□: Mitchell and Nellis[2], △: K.K. Krupuikov *et al.*[6] and ●: L.V. Al'tshuler *et al.*[5]).

定したが、この圧力領域におけるタンタルは液相状態であ ると考えることができる.

3.3.4 まとめ

レーザー誘起衝撃波を用いて, 1.7 TPa までのタンタル の状態方程式を測定した.得られた結果は,既存のデータ の外装曲線と比較的良く一致していることがわかった.

本実験結果はレーザーを直接照射することによって得ら れたものだが、本実験結果を基礎データとして、将来的な レーザーフライヤー法による状態方程式測定につなげたい と考えている.レーザーフライヤー法は[14,15],直接照射 法に特有なプラズマからの輻射X線や高速電子による試料 の先行加熱の影響がないため、熱力学的に厳密な状態方程 式に関する知見が得られることや、直接照射法と比較して エネルギー変換効率が高く、より高い圧力を発生できるこ とが示唆されている.このような手法によって得られる超 高圧力環境下では、炭素のような軽元素でさえも金属化す ることが予想されており、状態方程式研究のみならず、材 料開発・新物質探索にも役立つものと期待している.

参考文献

- [1] High-Pressure Shock Compression of Solids, eds. J.R. Asay and M. Shahinpoor (Springer-Verlag, New York, 1992).
- [2] A.C. Mitchell and W.J. Nellis, J. Appl. Phys. 52, 3363 (1981).
- [3] A.C. Mitchell, W.J. Nellis, J.A. Moriarty, R.A. Heinle, N.C. Holmes, R.E. Tipton and G.W. Repp, J. Appl. Phys. 69, 2981 (1991).
- [4] *LASL Shock Hugoniot Data*, ed. S.P. Marsh (University of California Press, Berkeley, 1980).
- [5] L.V. Al'tshuler, A.A. Bakanova, I.P. Dudoladov, E.A. Dynin, R. F. Trunin and B. S. Chekin, J. Appl. Mech. Tech. Phys. 22, 145 (1981).
- [6] K.K. Krupuikov, A.A. Bakanova, M.I. Braznik and R.F. Trunin, Soviet Phys. -JETP, 8, 205 (1963).
- [7] C.E. Ragan III, Phys. Rev. A 25, 3360 (1982).
- [8] W.J. Nellis, J.A. Moriarty, A.C. Mitchell and N.C. Holms, J. Appl. Phys. 82, 2225 (1997).
- [9] A. Benuzzi, T. Lower, M. Koenig, B. Faral, D. Batani, D. Beretta, C. Danson and D. Pepler, Phys. Rev. E 54, 2162 (1996).
- [10] N. Ozaki et al., Phys. Plasmas 11, 1600 (2004).
- [11] M.Yoshida, CETR Report No. C-06-86, 1986 (unpublished).
- [12] K. Nagai et al., Jpn. J. Appl. Phys. 41, 1184 (2002).
- [13] J.M. Brown and J.W. Shaner, Shock Waves In Condensed Matter (1983) p.91.
- [14] N. Ozaki et al., J. Appl. Phys. 89, 2571 (2001).
- [15] T. Kadono et al., J. Appl. Phys. 88, 2943 (2000).