

課題番号 : 2021A-E09
利用課題名(日本語) : ベッセルビーム微小爆発による高圧相の凍結
Program Title (English) : High-pressure phase quenching by focused Bessel beam induced microexplosion
利用者名(日本語) : 尾崎典雅¹⁾, 中村浩隆¹⁾, 上村拳生¹⁾, 橋田昌樹²⁾, 宮川鈴衣奈³⁾, 村山大輔¹⁾, Tatiana Pikuz¹⁾, Ludovic Rapp⁴⁾, Andrei Rode⁴⁾, 瀬戸雄介⁵⁾, 菖蒲敬久⁶⁾, 富永亜希⁶⁾
Username (English) : N. Ozaki¹⁾, H. Nakamura¹⁾, G. Kamimura¹⁾, H. Hashida²⁾, R. Miyagawa³⁾, D. Murayama¹⁾, Ludovic Rapp⁴⁾, Andrei Rode⁴⁾, Y. Seto⁵⁾, T. Shobu⁵⁾, A. Tominaga⁵⁾
所属名(日本語) : 1) 大阪大学大学院工学研究科, 2) 京都大学化学研究所, 3) 名古屋工業大学大学院物理工学専攻, 4) オーストラリア国立大学, 5) 神戸大学大学院理学研究科, 6) 原子力機構
Affiliation (English) : 1) Osaka Univ., 2) Kyoto Univ., 3) Nagoya Institute of Technology, 4) Australia National Univ., 5) Kobe Univ., 6) JAEA

キーワード : 超高速ショック圧縮、フェムト秒レーザー、新物質新構造、凍結プロセス、微小爆発

1. 概要 (Summary)

圧力発生装置として一般的に知られている油圧プレスやダイヤモンドアンビルセル(DAC)を用いた静的圧縮法に比べ、パルスレーザーを用いる動的超高速の圧縮法では、圧力温度の立ち上がりや解放、および冷却に要する時間を極端に短くすることができる。したがって、常温常圧では不可能と考えられていた高圧準安定構造が凍結することが期待されている[1-3]。顕微鏡対物レンズのような高開口数のレンズを用いて、マイクロジュール程度のエネルギーのフェムト秒レーザーパルスを通明な材質内部に集光すると、圧力 1000 万気圧、温度 1 万度を超えるプラズマが固体内部に瞬間的に生成し、1 ミクロン程度のサイズの微小爆発が起こる。これまでの研究により、単結晶アルミナから面心立方構造および体心立方構造のアルミニウムが、圧縮された状態で試料内部に凍結することが確認されている[2]。

これまでの研究で微小爆発による試料内部のボイドの状態が試料のバンドギャップの大きさに影響を受けることを示唆する結果が得られている。そのため本研究では、バンドギャップが酸化物に比べて大きい物質での微小爆発ボイド(ベッセルボイド)と生成物の観察を行った。その結果、バンドギャップが非常に大きいフッ化物などの物質に対しても酸化物など同様の微小爆発の状態を誘起でき、かつ分解反応後生成物凍結の可能性も示された。

2. 実験(目的,方法) (Experimental)

本研究グループは、これまで確認されていない物質や

構造を新たに確認すること、さらには効率よくそれらを回収する方法論を確立することを目標として研究を推進している。アルミナをはじめとした絶縁透明結晶内部の微小領域にマイクロジュール程度までの超短パルスレーザーを集光することで、数 10 万度、1000 万気圧以上の高エネルギー密度状態を瞬間的に実現できる。この現象は微小爆発(Micro-explosion)と呼ばれ、局所的な高温高圧状態から急激なエネルギー解放が起こることから、解放過程の途上で準安定構造などが試料内部に凍結する可能性があると考えられる。2020 年度の Spring8 BL22XU 実験において、微小爆発によって Al₂O₃ や MgO などの酸化物から、fcc-Al 及び bcc-Al, hcp-Mg などの高圧状態の生成を示唆する結果を得た。特に、アキシコンレンズを用いたベッセルビーム内部集光により、高アスペクト比円柱状の微小爆発(ベッセルボイド)を誘起し、単純なマイクロボイドに比した生成量の増大を実証した。

今回の 2021A 実験では酸化物に比べてバンドギャップが高く、より高い透過率が維持されるフッ化物を試料として初めて用いた。試料内部で微小爆発による高圧下準安定物質の生成を行い、2020 年度実験と同じ条件で X 線回折(XRD)観察を行った。また酸化物としてクォーツ SiO₂ のベッセルボイドにおいても、同様の条件で観察を行った。

図 1 に透明試料内部に微小爆発を誘起するレーザー実験のセットアップを示す。波長 1030 nm のフェムト秒レーザーを、アキシコンレンズと対物レンズによってベッセルビームとし、結晶試料内部に集光照射した。このベッセルビームを試料

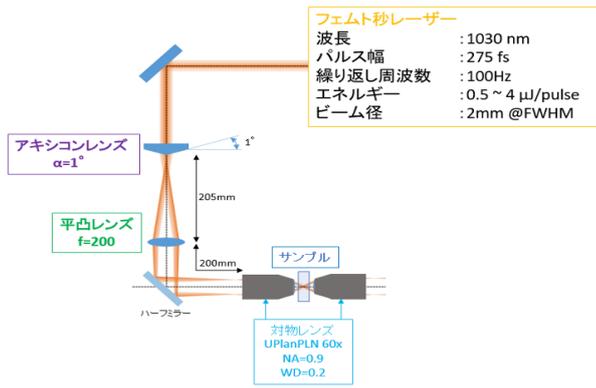


図 1. ベッセルビーム誘起微小爆発実験配置

面 $50 \times 100 \mu\text{m}^2$ の領域に計 500 ショット分入射させた。レーザーのパルスエネルギーは偏光子を用いておよそ 4 $\mu\text{J}/\text{pulse}$ までの範囲で制御し、微小爆発が生じると同時に試料に深刻なクラックが発生しない条件となるように調整した。2 $\mu\text{J}/\text{pulse}$ の場合、集光位置での対応するレーザー強度はおよそ $1 \sim 10^{14} \text{ W}/\text{cm}^2$ となる。

微小爆発の回収試料に凍結している物質の構造を明らかにするため、SPring-8 のビームライン BL22XU において X 線回折実験 (XRD) を行った。X 線光子エネルギーは十分な透過能をもつ 30 keV とした。実験セットアップの概略図を図 2 に示す。X 線はベリリウムレンズによって集光されたのち、試料直前の 4 象限スリットによって、 $100 \times 100 \mu\text{m}^2$ に切り出して使用した。検出器には高ダイナミックレンジの Pilatus 300K を用い、長時間露光を行うことで試料内部に存在する微量の高圧物質の検出を行った。X 線の照射は大気中で行い、試料の保持のために独自に作成したジュラコン製のターゲットホルダーを用いた。ターゲット

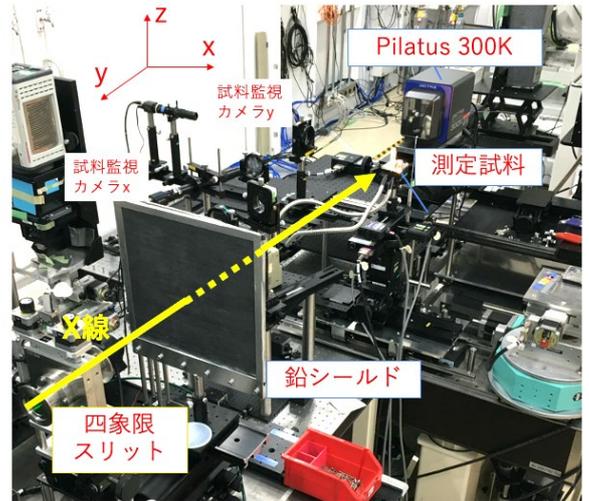


図 2. X 線回折実験のための実験配置図

ホルダーは XYZ 方向の 3 軸平行移動ステージと、 ϕ 方向の回転ステージで構成されたターゲットステージに設置した。試料観察領域を ϕ 回転中心に固定し、 0.1° 刻みで回転させながら回折パターンを取得することで、粉末 X 線回折に相当する観察を行なった。

3. 結果と考察 (Results and Discussion)

レーザーエネルギー 2 $\mu\text{J}/\text{pulse}$ の条件で集光した CaF_2 試料から得られた X 線回折パターンの典型的な例を図 3 に示す。図中の丸で示したように、標準状態の母相 CaF_2 とは異なる回折スポットが多数確認できた。試料を回転させることで同様に回折スポットが観察されたが、回折角はほぼ一定であり、30 GPa 等方圧力下の bcc-Ca(110) で理論的に予測される回折角と高い一致を示した。この圧力はこれまでの酸化物を用いた実験と同等のレベルであった。一方、 SiO_2 の試

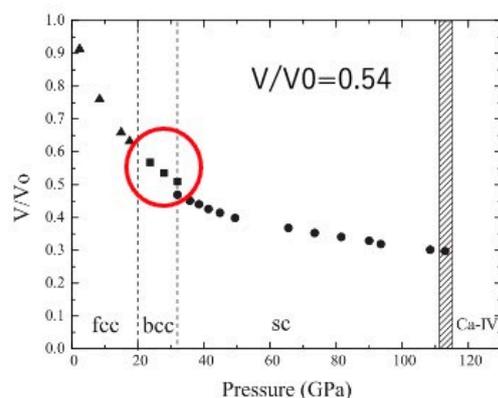
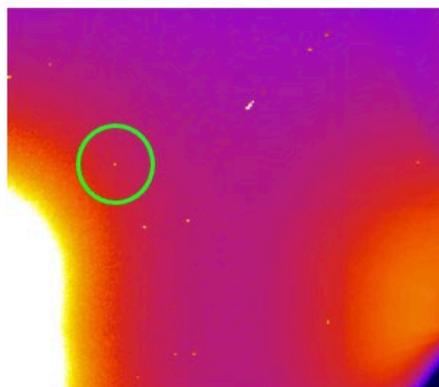


図 3. (左)XRD 実験による母相 CaF_2 と bcc-Ca(110) (緑円内)の回折ピーク。(右)DAC 実験により診断された Ca 相図 (Ref. 6)と微小爆発で生成した Ca の残留応力領域(赤円)

料では顕著なピークが観察されなかった。高温状態から急冷したシリカ、またはシリカから分解したシリコンの場合も、アモルファス状態となっている可能性があり、詳細な解析を引き続き行う予定である。

4. その他・特記事項 (Others)

参考文献

- [1] S. Juodkazis *et al.*, Phys. Rev. Lett. 96, 166101(2006).
- [2] A. Vailionis *et al.*, Nat. Commun. 2, 445(2011).
- [3] L. Rapp *et al.*, Nat. Commun. 6, 7555 (2015).
- [4] L. Rapp *et al.*, Sci. Rep. 6, 34286 (2016).
- [5] V. Anand *et al.*, J. Phys. Photonics 3, 024002 (2021).

謝辞

本研究は、文部科学省委託事業「光・量子飛躍フラッグシッププログラム (Q-LEAP)」(課題番号 JPMXS0118067246)、および株式会社コンボン研究所の助成を受けて行われました。