

高強度レーザー衝撃圧縮を用いたメガバール領域における水の状態方程式計測

木村 友亮¹, 尾崎 典雅¹, 奥地 拓生², 佐野 孝好³, 清水 克哉⁴,
宮西 宏併¹, 遠藤 恭¹, 實井 辰也¹, 曾田 智史¹, 佐野 智一¹,
寺井 智之¹, 廣瀬 明夫¹, 掛下 知行¹, 坂和 洋一³, 兒玉 了祐¹

2011年1月5日受領, 2011年2月7日受理.

(要旨)

海王星や天王星のような巨大水惑星の内部構造や物質状態を理解するために、メガバール領域(およそ100GPa以上)における水の状態方程式を実験的に求めることが重要である。我々は、高強度レーザー誘起衝撃波による衝撃圧縮実験で、261GPaまでの水のユゴニオ状態(圧力・密度・内部エネルギー)を高精度で決定した。さらに、衝撃温度の同時計測にも初めて成功した。ここで得られた圧力・密度・温度は、最新の第一原理分子動力学計算とよく一致した。また、衝撃圧縮された水からの光反射計測の結果は、この圧力・温度域での水が、解離及び電離しているという第一原理計算の予測に矛盾がないことを示した。

1. はじめに

太陽系の巨大水惑星である天王星や海王星の内部には水、アンモニア、メタンが多く含まれており、圧力20~600GPa、温度2500~7000Kの領域で凝縮液体として存在していると考えられている[1, 2, 3]。これらの凝縮液体の対流が、惑星内部磁場を形成しているといわれている。特に水は質量比で約半分を占めているため、磁場形成にとって最も支配的であると考えられている。このことから惑星内部の圧力・温度下での水の状態を調べる試みが広く行われている。

惑星内部の物質状態を正確に知るためには、実験的にその環境を作り出し、その物質状態を計測、診断することが有効である。レーザー衝撃圧縮は、そのような惑星内部の高圧・高温状態を実験的に作り出す方法の一つである[4]。ダイヤモンドアンビルセルをはじめとする静的圧縮法による高圧発生実験も広く行われているが、衝撃圧縮によれば、より高圧力かつ高温度を比較的容易に実現することができる。特に

数100GPa・5000K以上といった、超高压・高温状態を実現できるのは衝撃圧縮実験以外、現状では難しい。レーザー衝撃圧縮実験では、高エネルギーのパルスレーザー光の照射により照射面に高温プラズマを発生させ、試料内部に衝撃波を駆動する。レーザー光は、空間的かつ時間的に集中させることができるので、非常に強い衝撃波を発生させることができる。この方法は、近年の計測精度の向上に伴い、水惑星内部に近い超高压・高温状態を作り出すことができる優れた実験研究の手法となってきた。

一般的な衝撃圧縮による状態方程式実験では、一軸圧縮とみなせる平面衝撃波を試料中に伝播させ、衝撃波面前後で成り立つランキン・ユゴニオ方程式を用いて衝撃圧縮時の状態量を決定する：

$$\rho_0 U_s = \rho_1 (U_s - u_p) \quad (1)$$

$$P_1 - P_0 = \rho_0 U_s u_p \quad (2)$$

$$E_1 - E_0 = \frac{1}{2} (P_1 + P_0) \left(\frac{1}{\rho_0} - \frac{1}{\rho_1} \right) \quad (3)$$

これらの3式はそれぞれ質量、運動量、エネルギー保存則を表している。ここで、 P 、 ρ 、 E 、 U_s 、 u_p はそれぞれ圧力、密度、比内部エネルギー、衝撃波速度、粒子速度を表し、添字の0と1はそれぞれ衝撃波面の

1. 大阪大学工学研究科
2. 岡山大学地球物質科学研究センター
3. 大阪大学レーザーエネルギー学研究中心
4. 大阪大学極限量子科学研究センター
kimura@ef.eie.eng.osaka-u.ac.jp

前後の状態を表している。以上の3つの関係式から、5つの未知量に対して、2つを決定できれば、残りの未知量全てを求められることがわかる。直接的かつ最も高精度に計測可能な量は U_s であるため、実際の実験では、状態方程式標準物質と試料の U_s をそれぞれ計測によって求め、式(1-3)の代数式とインピーダンスマッチング法と呼ばれる解析法を用いて残りの未知量全てを求める[5]。レーザー実験の場合、他の衝撃圧縮実験と比較して試料空間が小さく、圧力の持続時間も短いため、計測誤差が大きくなってしまふことが大きな課題であった。過去に行われた水のレーザー衝撃圧縮実験では、100 - 800 GPaの領域でデータが得られたが、衝撃波速度の決定精度が3%程度に達するため、最終的に得られる密度の誤差が10%を超えてしまふ。従って、水の状態方程式モデル間の判別はできていなかった[4]。最近になって、これまで標準物質として使われてきたアルミニウムを水晶におきかえることによって、衝撃波速度計測精度の飛躍的な向上が実現された。例えば、20 - 30 km/sの衝撃波速度域で、1%程度の精度で計測できるようになっている[6]。

通常の衝撃圧縮状態方程式実験では、ユゴニオ方程式に登場しない衝撃温度を直接決定できない。しかしながら、温度は状態方程式において最も基本的な変数であるため、実験的に求めることが重要である。近年のレーザー衝撃圧縮実験では、圧縮下の試料からの放射スペクトル強度と、衝撃波面反射率を計測することで、衝撃温度が計測可能になってきた[7]。この手法と衝撃波速度計測を組み合わせるにより、レーザー衝撃圧縮実験で、圧力・密度・温度を同時に決定することが可能である。つまり、レーザーの方法によれば、厳密な惑星内部の物質状態を生成し詳細に調べられる可能性がある。

我々は、水に関する高精度レーザー衝撃圧縮実験を行い、状態方程式データを取得することに成功した。メガバール領域で初めて、衝撃圧縮下の水の圧力・密度・温度を直接決定した。これらの実験結果の報告、及び第一原理理論計算結果との比較検討について述べる。

2. 実験方法

レーザー衝撃圧縮実験は、大阪大学レーザーエネルギー

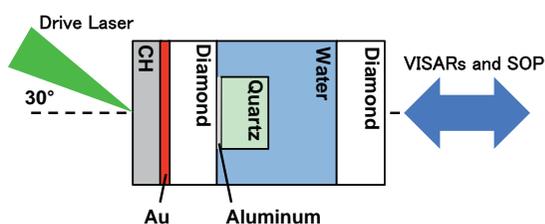


図1：実験配置とターゲット構成図。

ギー学研究センターの激光 XII号を用いて行われた。9本のレーザービームを一方から集光照射し、平面衝撃波による1軸圧縮を行った。レーザー波長は351 nm、照射スポットのサイズは直径600 μ m、パルス波形は半値幅2.5 nsの矩形波である。均一な照射強度分布を得るために、時空間カラーサイクル光 (Smoothing by Spectral dispersion : SSD) [8]を利用し、キノフォーム位相板 (Kinofom Phase Plate : KPP) [9]を用いた。ターゲット上での実効的なレーザー強度はおよそ $3.4 - 6.6 \times 10^{13}$ W/cm²であった。この強度のレーザーを試料表面に照射すると、表面からは高温のプラズマが発生し、レーザーのエネルギーはプラズマ中で吸収され、吸収されたエネルギーが熱伝導及び輻射によってプラズマ化していない固体表面に輸送される。そこで、アブレーションが起こりプラズマが噴出する。このアブレーションの反作用として物質内部に運動量が与えられ、衝撃波が発生する。衝撃波が通過することで形成される圧縮層を観測することによって、試料の状態方程式データを得ることができる。

図1に実験配置とターゲット構成を模式的に示す。ターゲットは、レーザー照射側からポリプロピレン (CH)、金 (Au)、ダイヤモンド、水晶、水、ダイヤモンドで構成されている。試料である水は、2枚のダイヤモンドの板で封入されている。将来的には、ダイヤモンドアンビルセルの要領で、この2枚のダイヤモンドで水を予備圧縮し、水の初期密度を変化させ、より広範な状態方程式データを得る予定である [10]。CH層に高強度レーザーを照射し、駆動された衝撃波は、CH、Au、ダイヤモンド、水晶、水という順に伝播する。封入された水の層の厚さは約100 - 150 μ mであった。水の前方に配置された水晶は、前述したように衝撃圧縮時の水の圧力・密度を決定するための標準物質として用いた。反射光計測のために、水晶のレー

ザー照射側の面にアルミニウム薄膜をコートした。一方、厚さ1.5 μm の金膜と、その上の厚さ30 μm のCH膜は、アブレーションプラズマからの放射によって試料が先行加熱されることを防ぐという役割を持っている。

我々は、ストリークカメラと結合した2台の線結像型VISAR(Velocity Interferometer for Any Re-lector)を用いて衝撃波速度計測を行った[11]。ターゲットの裏面側から波長532nmのプロープレーザー光を照射し、その反射光をVISAR干渉計に導入した。VISARの画像から、反射体の速度変化に応じた干渉縞(フリンジ)のシフトを計測することができる。このフリンジのシフト量と反射体の速度には、以下の式のような関係があるため、

$$v(t) = \frac{\lambda_0}{2\tau n_s} \frac{F(t)}{1 + \delta} \quad (4)$$

反射体の速度を直接計測することができる。ここで、 $v(t)$ 、 λ_0 、 n_s 、 $F(t)$ は、それぞれ反射体の速度、プロープ光の波長、試料の屈折率、フリンジのシフト量を表している。また、 τ と δ は、一方の光路にエタロンを通して加えられた光路遅延の大きさに決まる変数、エタロンの屈折率とプロープ光の波長から決まる変数をそれぞれ表している。今回の実験では、1フリンジあたりの速度変化量は水の屈折率1.33を考慮すると4.783と11.342(17.051) km/sであった[4]。VISARの空間分解能、時間分解能は、それぞれ7.3 μm と6.8 μm 、80 psと100 psであった。

温度計測にはSOP(Streak Optical Pyrometer)と呼ばれる同じくストリークカメラを用いた放射輝度温度計を用いた[7]。ターゲット裏面をストリークカメラスリット上に結像し、圧縮下の試料から放射される自発光強度を計測した。観測中心波長は455nm、バンド幅は38nmであり、この放射スペクトル強度から輝度温度を求めた。SOPの空間分解能、時間分解能は、それぞれ15.0 μm 、140 psであった。

3. 実験結果

図2(a)と(b)に、今回の実験でVISARとSOPから得られた衝撃波速度と放射光強度の結果をそれぞれ示す。挿入図はVISARとSOPの生画像である。図2(a)

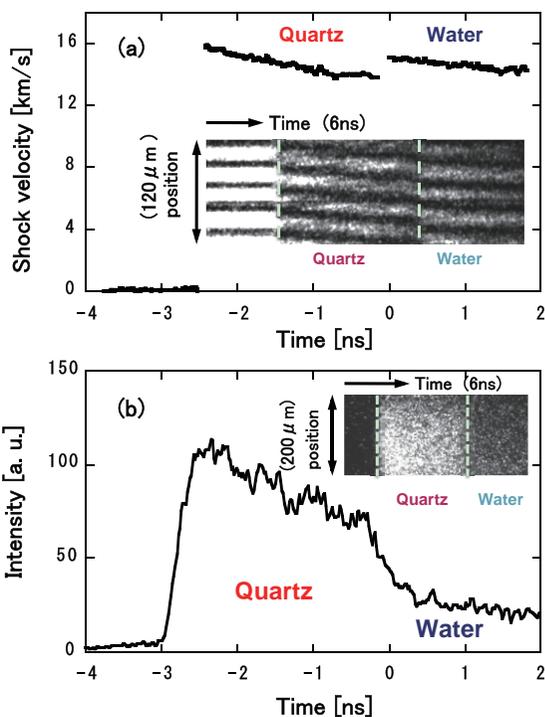


図2：(a)VISARから得られた水晶と水の衝撃波速度の時間履歴。挿入図はVISARの画像。(b)SOPから得られた水晶と水のスペクトル放射強度の時間履歴。挿入図はSOPの画像。

において、衝撃波がアルミニウム/水晶界面に到達するまでは、反射面は静止しているため、VISARのフリンジに変化は見られない。衝撃波がアルミニウム層を抜けて水晶に入射すると、水晶中を伝播する衝撃波面からのプロープ光の反射が観測された。これは、水晶中を伝播する衝撃波面の速度に応じて、プロープ光にドップラーシフトが生じ、フリンジの位相が変化したことを示している。その後、衝撃波が水晶を抜けて水に入射した時にフリンジの位相が不連続に変化し、衝撃圧縮下の水から反射光が観測された。これらの計測されたフリンジのシフト量から、水晶と水を伝播する衝撃波速度の時間変化を図2(a)のグラフのように求めることができた。ここで、衝撃波が水晶から水に入った瞬間を時刻ゼロとしている。フリンジの位置決定精度がCCD画像上で数ピクセルであることから、これに対応する衝撃波速度の計測精度は1.5%以上であった。図2(a)のグラフから、水晶と水を伝播する衝撃波は時間と共に減衰していることがわかる。これは、レーザーのパルス時間幅が2.5 nsと短いことから、

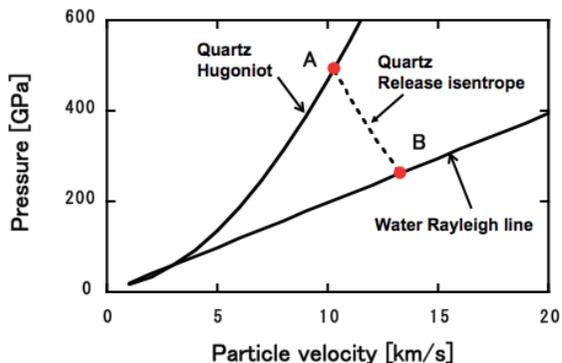


図3：粒子速度 - 圧力平面での水晶と水のインピーダンスマッチング。実線曲線，点線曲線，直線は，それぞれ水晶のユゴニオ曲線，水晶の等エントロピー曲線，水のレイリー線を示している。

衝撃波が水晶の前のダイヤモンドを伝搬している間にレーザーによるエネルギー供給が終わってしまうためである。

図2(a)に示されたショットにおける，SOPによる放射スペクトル強度の結果を図2(b)に示す。挿入図はSOPで得られた生画像で，放射強度の空間分布の時間変化を表している。画像の空間領域で積算した強度の時間履歴が図2(b)のグラフである。衝撃波がアルミニウムから水晶に入った時，強度が急激に立ち上がり，水に入った時に強度が急激に下がっているのがはっきりと観測された。

4. 解析と議論

衝撃波が水晶と水の界面を通過する直前・直後の，水晶と水の衝撃波速度を用いたインピーダンスマッチング解析により試料の粒子速度を決定した。水晶の衝撃圧縮下におけるユゴニオ衝撃圧縮曲線は，サンディア研究所のグループによってよく調べられており，水晶の衝撃波速度 U_s^Q と粒子速度 u_p^Q は， $U_s^Q = a + bu_p^Q - cu_p^Q \exp(-du_p^Q)$ の関係で表されている [12]。ここで， $a = 6.26 \pm 0.35 \text{ km/s}$ ， $b = 1.20 \mp 0.02$ ， $c = 2.56 \mp 0.15$ ， $d = 0.37 \pm 0.02 \text{ (km/s)}^{-1}$ である。計測した水晶の衝撃波速度とこの関係式から圧縮時の u_p^Q を求め，これら U_s^Q と u_p^Q と式(2)から水晶の圧力を求めた。この状態は粒子速度と圧力の平面で考えた時，図3中のA点に対応する。一方，計測した水の衝撃波速度と式(2)からは水のレイリー線 ($P = \rho_0^w U_s^w u_p^w$) を引くことができ，圧縮

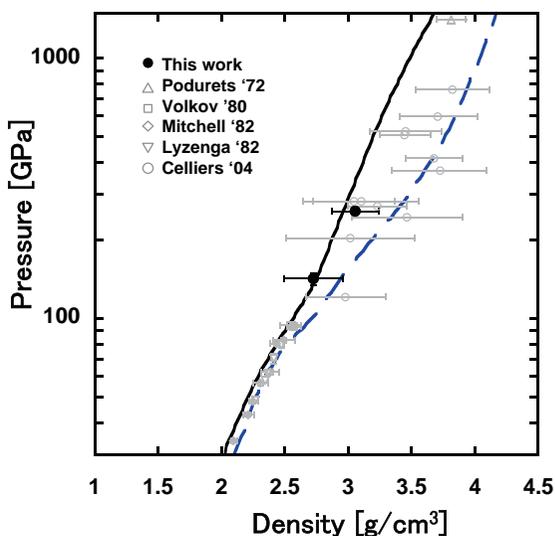


図4：水の圧力 - 密度平面でのユゴニオ曲線。四角，菱形，逆三角はガス銃[15, 16, 14]，三角は核爆発[17]，白丸は高強度レーザー [4] の実験結果をそれぞれ示している。実線と破線は，それぞれ第一原理計算，SESAME 状態方程式モデルの予測を示している [18, 19]。

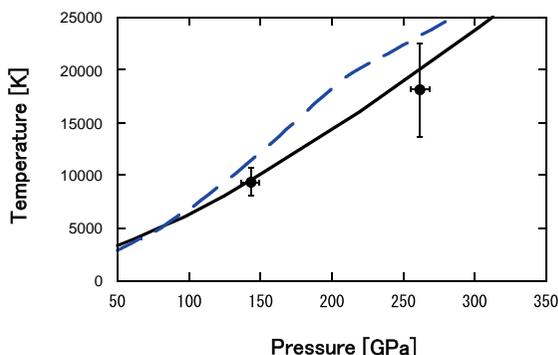


図5：水の衝撃温度と衝撃圧力の関係。実線と破線は，それぞれ第一原理計算，SESAME状態方程式モデルの予測を示している [18, 19, 20]。

時の水の状態はこの直線上のどこかに存在することになる。衝撃波が水晶から水に伝播すると同時に，水晶中には境界面からの希薄波が衝撃波と逆向きに伝播する。その希薄波によって作られる状態は，A点からの等エントロピー線上のどこかに存在する。水晶と水の境界面上では作用・反作用の関係が成り立つので，両者の状態は水晶の等エントロピー線と水のレイリー線の交点(B点)として求められる。今回の解析では，水晶の等エントロピー線には水晶のユゴニオの反転曲線を近似的に利用した [13]。

このようにして水の粒子速度と圧力を決定し、また式(1)を用いて密度を求めた。得られたユゴニオデータ(圧力-密度)を図4に示す。我々の実験結果以外にも、過去のガス銃、核爆発、高強度レーザーによる衝撃圧縮実験の結果と、いくつかの理論モデルの予測を示している[4, 15, 16, 17, 14, 18, 19]。衝撃波速度の計測誤差から圧力と密度に伝播した誤差をランダム誤差とし、また水晶の状態方程式が持つ不定性から圧力と密度に伝播した誤差を系統誤差として、それぞれ見積もった。ランダム誤差と系統誤差の二乗和平方根で表される値を総合誤差として、図中に示した。我々の実験で得られた密度誤差は5.9%以下であり、これは過去のレーザー衝撃圧縮実験データよりも大きく改善されているといえる。これは、水晶を標準物質に用いたことで標準物質と試料との境界面の直前・直後の衝撃波速度を直接計測できたことに起因している。第一原理計算は、100 GPa以下と1000 GPaを超える超高压領域では、過去のガス銃[15, 16, 14]と核爆発実験[17]による高精度実験の結果とよく一致しており、また100 GPa以上ではSESAMEの状態方程式モデルと大きく異なっている。我々の実験データは、ガス銃と核爆発実験データの間の圧力領域で、第一原理の予測とよく一致していた。

図5には、図4の圧力-密度データに対応する衝撃温度結果を示す。この温度は、衝撃圧縮下の水が灰色体であることを仮定して、次のプランクの式から求められた：

$$I(T) = \frac{2\pi hc}{\lambda^5} \frac{1}{\exp\left(\frac{hc}{\lambda kT}\right) - 1} \cdot \epsilon(\lambda) \quad (5)$$

ここで、 I 、 T 、 h 、 c 、 λ 、 k は、放射スペクトル強度、温度、プランク定数、光速、波長、ボルツマン定数を表している。この式をSOPの観測波長域で解くことになる。放射率 ϵ はVISARで計測された衝撃波面反射率 R により、キルヒホッフの法則から $\epsilon = 1 - R$ として求められた。計測された反射率の波長532 nmとSOPで用いた波長は異なっているが、波長依存性は十分小さい。

図5には、図4と同様、SESAMEと第一原理の予測も合わせて示している[18, 19, 20]。

今回の実験では、この領域で初めて、水の圧力・密度・温度を同時に直接決定することに成功した。

SESAMEと第一原理の予測は、圧力・密度の関係

と同じように、100 GPa以上の領域で異なっている。我々の実験で得られた温度データは、100 GPa以上の圧力領域で第一原理の予測とよく一致していた。このことと圧力・密度の結果を合わせると、我々が取得した状態方程式データは、圧力・密度・温度の状態方程式曲面で第一原理の予測と整合性がよかった。

VISARから得られた反射率は、我々の実験圧力領域で最大約16%になっていた。水が絶縁体のままであるとした場合、質量密度が3倍になることで水の屈折率 n が増加することを考慮しても(例えば $n - 1 \propto \rho$)、16%もの高い反射率は説明できない[21]。従って、この反射率は、圧縮下の伝導電子の増加に起因するものであると考えられる。第一原理計算によれば、我々の実験による圧力領域での水はプロトンと酸素イオンに解離し、さらに酸素イオンが電離した状態で存在していると予測されている。この酸素から電離した電子が伝導電子として反射率に寄与している可能性が高い[22, 23]。反射率計測の結果は第一原理の予測と誤差の範囲内で一致しており、第一原理計算による水の状態予測と矛盾のない結果であった。この高压・高温下の水に関する光学的特性と電気伝導度についての検討は、今後の研究の重要な課題である[22]。

5. まとめと今後の展望

今回の実験で圧力261 GPa、温度19300 Kまでの水の状態を、高強度レーザーによる衝撃圧縮によって生成することに成功した。常圧下で透明な水晶を標準物質として用いることで、従来よりも高い精度で圧力・密度を決定できた。また、温度の同時計測も行い、初めてメガバル領域の衝撃圧縮実験で、水の圧力・密度・温度を同時に決定することに成功した。今回得られた計測データは、圧力・密度・温度の状態方程式曲面で第一原理計算とよく一致していた。反射率も誤差の範囲内で第一原理計算と一致しており、我々の実験圧力領域での水が解離及び電離しているという第一原理計算による物質状態の予測が妥当であることを示す証拠が得られた。光学的反射率から、適切な状態モデルを用いれば、水の伝導電子密度を見積もることができるので、その結果と第一原理計算との比較を今後行っていく予定である[4]。

今回得られた2点の計測データだけでSESAMEと

第一原理計算の妥当性を議論するのは尚早であるが、惑星科学に本質的に寄与できるような高精度の物性実験が高強度レーザーを用いて可能になり始めた。今後、さらなる高精度データが得られるようにVISARの1フリンジあたりの速度変化量をより小さい条件にして、データ数を増やし、どちらの理論計算が正しいのか明らかにしていきたい。また、氷惑星の内部構造を議論するには、メガバール圧力領域で10000 K以下といった、今回の計測データよりも低い温度領域の物性をさらに調べていく必要がある。我々は、このような氷惑星の内部状態を実験的に忠実に模擬できるよう、図1に示されたダイヤモンドセルによる予備圧縮した試料を用いた実験にも着手している[10, 24]。試料に予備圧縮を加えることで、今回の実験で行ったような通常の衝撃圧縮よりも低温度状態を実現でき、より氷惑星の内部状態に近づくことができる。この方法を用いたデータの取得もルーティンになりつつあり、これらの実験結果についても今後報告していきたいと考えている。

6. 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」、および科学技術振興機構「JST-CREST」プログラムの支援を受けて進められました。また、本論文中の第一原理計算との比較は、M.French博士を始めとした、ロストック大学の研究者達の協力の下で行うことができました。心より謝意を表します。

参考文献

- [1] Hubbard, W. B., 1981, *Science* 214, 9.
- [2] Hubbard, W. B., 1984, *Planetary Interiors* (New York: Van Nostrand Reinhold).
- [3] Stevenson, D. J. et al., 2003, *Earth Planet. Sci. Lett.* 208, 1.
- [4] Celliers, P. M. et al., 2004, *Phys. Plasmas* 11, L41.
- [5] Zel'dovich, Y. B. and Raizer, Y. P., 1966, *Physics of Shock Waves and High-Temperature Hydrodynamic*

Phenomena (New York: Academic Press).

- [6] Ozaki, N. et al., 2009, *Phys. Plasmas* 16, 062702.
- [7] Miller, J. E. et al., 2007, *Rev. Sci. Instrum.* 78, 034903.
- [8] Skupsky, S. et al., 1989, *J. Appl. Phys.* 66, 3456.
- [9] Dixit, S. N. et al., 1996, *Opt. Lett.* 21, 1715.
- [10] Kimura, T. et al., 2010, *Phys. Plasmas* 17, 054502.
- [11] Celliers, P. M. et al., 2004, *Rev. Sci. Instrum.* 75, 4916.
- [12] Knudson, M. D. and Desjarlais, M. P., 2009, *Phys. Rev. Lett.* 103, 225501.
- [13] Enig, J. W., 1963, *J. Appl. Phys.* 34, 746.
- [14] Volkov, L. P. et al., 1980, *JETP Lett.* 31, 513.
- [15] Mitchell, A. C. and Nellis, W. J., 1982, *J. Chem. Phys.* 76, 6273.
- [16] Lyzenga, G. A. et al., *J. Chem. Phys.* 76, 12.
- [17] Podurets, M. A. et al., 1972, *Sov. Phys. JETP* 35, 375.
- [18] French, M. et al., 2009, *Phys. Rev. B* 79, 054107.
- [19] See National Technical Information Service Document No. DE94-011699. (J. D. Johnson, SESAME Tables, 1994). Copies may be ordered from the National Technical Information Service, Springfield, VA 22161. For the water we used SESAME table 7150.
- [20] French, M. and Redmer, M., 2009, *J. Phys: Condensed Matters* 21, 375101.
- [21] Souers, P. C., 1986, *Hydrogen Properties for Fusion Power* (California: University of California Press).
- [22] French, M. et al., to be submitted to *Phys. Plasmas*.
- [23] French, M. et al., 2010, *Phys. Rev. B* 82, 174108.
- [24] Kimura, T. et al., submitted to *Rev. Sci. Instrum.*