

レーザー衝撃圧縮下におけるシクロヘキサンの分子構造変化

(東工大・応セラ研*, 分子研†)

小口史朗*, 松田晃孝†, 近藤建一*, 中村一隆*†

【序】レーザー誘起衝撃圧縮とはレーザー光を金属に集光照射し、そのアブレーションの反作用力として生じる衝撃波が試料に伝播することによって試料を圧縮状態にする方法である。衝撃圧縮下における物質の構造変化・化学反応過程を理解するためには時間分解分光測定が非常に有効である。ラマン分光法により分子振動を観測することで、分子性物質の微視的な構造を解明することができる。本研究ではポンプ・プローブ光を用いて、シクロヘキサンのレーザー衝撃圧縮下における時間分解コヒーレント反ストークスラマン散乱(CARS)測定によって高压領域の ring-breathing モードのシフト、C-C stretching モードのシフトを観測し、構造変化過程の測定・考察を行った。

【実験】レーザー誘起衝撃圧縮実験システムの概念図を図 1 に示す。衝撃圧力を誘起するためにナノ秒 Q スイッチ Nd:YAG レーザーの基本波(波長: 1064 nm、パルス幅: 10 ns)を用いた。レーザー光をアルミニウム箔(厚さ: 30 μm)の表面に集光することによって、衝撃波を発生させた。衝撃波はアルミニウム箔を通過して試料へと伝播する。ピコ秒モードロック Nd:YAG レーザーの二倍高調波(波長: 532 nm、パルス幅: 25 ps)及び三倍高調波(波長: 355 nm、パルス幅: 25 ps)によって励起されたパラメトリック発振器からの波長可変なレーザー(本実験では ring breathing モードでは 555.8 nm、C-C stretching モードでは 562.9 nm を用いた)をプローブ光として用いた。ポンプ光に対してデジタル遅延パルス発生器によって適当な遅延を与えられたプローブ光をターゲットの裏面より衝撃波誘起用のレーザーの中心になるように集光した。CARS 信号はカメラレンズを用いて集光し、光ファイバーを用いて分光器に導入した。分光器によって波長分解された光を iCCD カメラで撮影した。分光器の波数分解能は約 1.5 cm^{-1} である。

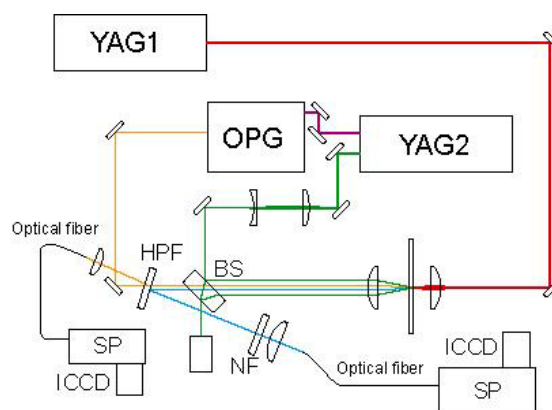


図 1 : レーザー誘起衝撃圧縮実験システムの概略図

【結果と考察】

レーザー速度干渉計を用いてシクロヘキサン・アルミ界面粒子速度を測定した。図2に衝撃波誘起用レーザー500 mJ時における速度履歴を示す。このレーザー速度干渉計による測定の結果とインピーダンスマッチング法、シクロヘキサンの初期密度

$\rho_0 = 0.78 \text{ g/cm}^3$ および Hugoniot 曲線 $U_s = 1.80U_p + 1.42$ を用いることによってシクロヘキサンの衝撃圧力を導出した。これによって本実験で用いた衝撃圧力は約 1.0 GPa および 2.0 GPa と導出された。

約 1.0 GPa の衝撃圧縮下において ring-breathing モードは 10.0 cm^{-1} 高波数側にシフトした。また、C-C stretching モードは 8.0 cm^{-1} シフトした。2 GPa において ring-breathing モードは 14.5 cm^{-1} シフトした。図3に発生圧力に対する高波数へのシフト量を示す。は J.Haines ら^[1]により静的圧縮法を用いて得られている固相でのシフト量のデータ、は A.Mastuda ら^[2]により衝撃圧縮によって得られたデータであり、は本実験で得られたデータである。図中の点線は固相におけるシフト量のフィッティングであり、本実験の結果はこれによく一致している。

高波数シフトしたピークは圧縮された領域からのスペクトルであり、衝撃波の伝播による圧縮領域の増加に伴い強度は増加した。未圧縮領域と圧縮領域のピーク積分強度比の変化から見積られた衝撃波速度は 1 GPa、2 GPa 共に速度干渉計の結果から計算された衝撃波速度と良く一致した。このことにより、時間分解 CARS 測定によって衝撃波速度が求まることが示された。

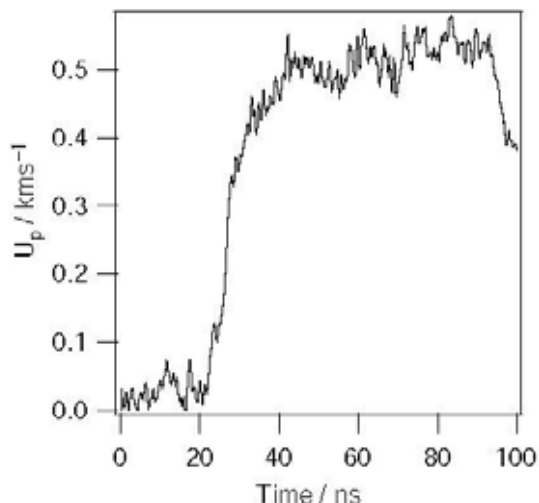


図2：500 mJ時のシクロヘキサン・アルミ界面粒子速度履歴

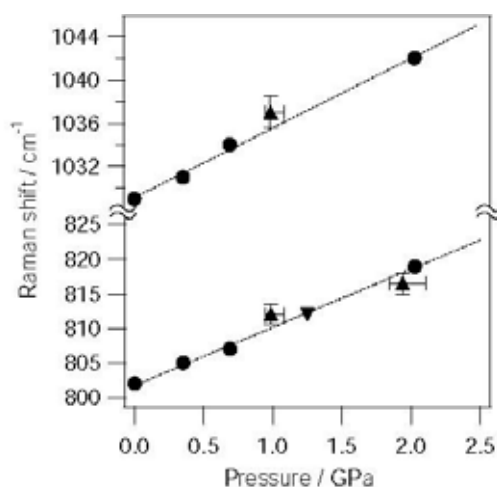


図3：シクロヘキサンのring breathing・C-C stretchingモードの衝撃圧縮下におけるシフト量

[参考文献]

[1] J.Haines *et al.*, J.Phys.Chem. **93**, 7920 (1989)

[2] A.Matsuda, K.G.Nakamura and K.Kondo, Phys. Rev. B **65**, 174116 (2002)