

水素化物の高圧物性計測および新奇物性探索に関する研究

榮永茉莉¹, 森岡信太郎², 清水克哉¹, 奥地拓生³, 佐野孝好⁴,
宮西宏併³, 梅田悠平², 兒玉了祐^{2,3}, 尾崎典雅^{2,3}

¹ 大阪大学基礎工学研究科附属極限科学センター, ² 大阪大学大学院工学研究科,
³ 岡山大学惑星物質研究所, ⁴ 大阪大学レーザー科学研究所

はじめに

水素は宇宙で最もありふれた元素であるが、単体およびその化合物は他の物質とは全く異なる特徴的な挙動や物性を示すことが知られている。例えば近年では、硫化水素 H_2S が静的な高圧下(おおよそ 150 万気圧)において、203 K というこれまでの記録を大きく上回る超伝導転移温度を示すとの報告がなされている[1]。また、当該研究代表者を中心とした研究グループにより、超伝導転移を示す圧力・温度領域における結晶構造が実験的に明らかにされている[2]。他にも様々な水素化物において、超高压下の構造相転移や金属化、超伝導化の予測が第一原理計算によってなされている。しかしながら、静的圧縮技術では到達困難な圧力領域のものもあるため、新たな挑戦的試みも肝要となってきた。

本研究では、水素化合物の高温高圧下の反応過程や、構造相転移および相関係を解明するための手がかりを得ることを目指して、高強度レーザーを用いた動的圧縮実験を開始した。当該年度では、常温常圧で固体である MgH_2 を用いて、レーザー衝撃圧縮法を用いた基本ユゴニオ計測を行うと共に、ダイヤモンドアンビルセルに封入して液化させた H_2S 試料を用いた予備実験も初めて実施した。

実験

激光 12 号 (GXII) レーザーシステムを用いて、レーザー衝撃圧縮実験を行なった。パルス幅は 2.5 ns、波長 527 nm または 351 nm、集光スポット径は 1 mm または 600 μm であった。速度干渉計 VISAR (Velocity Interferometer System for Any Reflector) と放射温度計 SOP (Streaked Optical Pyrometer) を用い、衝撃波速度 (U_s) と衝撃温度 (T) を計測した。粒径 3 μm の粉末をプレスすることによって作成した MgH_2 試料を用いた。試料ごとのポロシティをあらかじめ測定し、10-15% の範囲内のものを実験に用いた。作成した試料は可視光に対して不透明である為、YAG (532 nm) レーザーをプローブとした VISAR によって試料内部を伝播する衝撃波を直接計測することは不可能であった。そこで、Fig. 1 のような試料中の衝撃波伝播時間を精度よく測定するためのターゲットアセンブリを採用し、平均衝撃波速度を決定することでユゴニオデータを取得した。

ターゲットにおいて、CH はアブレーター、アルミニウムはプローブ光の反射材としての役割を果たす。レーザー照射側の α -クォーツ (SiO_2 結晶、以下クォ

ーツと記述) は、インピーダンスマッチング法を使用して状態量を決定するための標準物質である。また、被測定試料の裏面に貼り付けたクォーツと試料の間に配置したポリスチレンを用いて、衝撃波が MgH_2 を伝搬中の衝撃圧力の減衰効果を推量するとともに、 MgH_2 /クォーツ 界面に到達時刻を正確に決定した。この最裏面のクォーツには波長 532nm の光に対する無反射コーティングを施した。

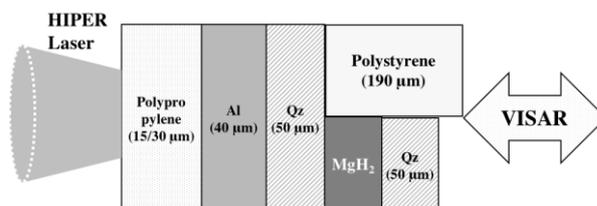


Fig. 1 ターゲット概念図

結果と考察

本実験によって、先行研究[3]では取得がなされていない、最大 350 万気圧 (350 GPa) までの超高压力データを得ることができた。VISAR 画像において、 MgH_2 中において、衝撃波が空間的に一様に伝搬しており、衝撃波伝搬速度を精度よく決定可能であることがわかった。先に述べたような衝撃波速度の補正を行って得られた我々のデータと、ポロシティの異なる試料を用いた低圧領域の先行研究のデータを

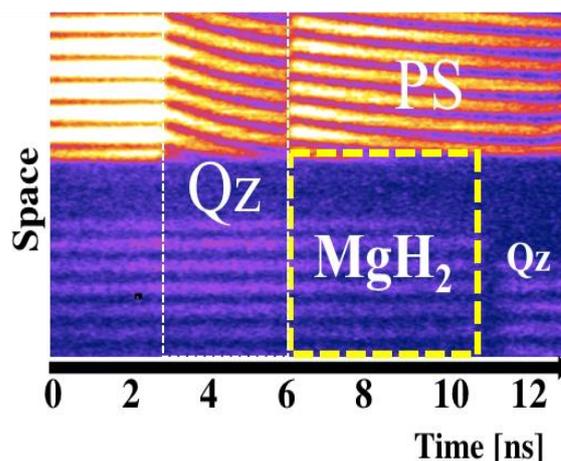


Fig. 2 VISAR 画像の例

比較したものを Fig. 3 に示す。それぞれのユゴニオ圧縮曲線の違いは、よく知られたポロシティモデルで説明可能であることがわかった。

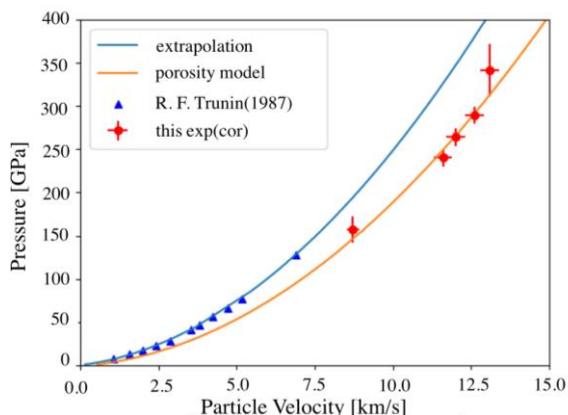


Fig. 3 粒子速度と圧力の関係

結論と今後の展望

本研究によって、常温常圧で固体の水素化物のユゴニオ状態方程式計測の手法を確立することができたとともに、既存の報告に比べて2倍以上高い300 GPa領域のデータを取得できることがわかった。今後の展望としては、 MgH_2 に関して、SOP 取得データをさらに解析することで衝撃温度を決定し、静的超高压データと比較検討するなど、圧力-温度相図の理解を進めていく予定である。また、今回得られた状態方程式データに加えて、反射率計測実験や、レーザー波形を適切に制御することによる低エントロピー圧縮実験を行う。

常温常圧で気体の硫化水素に対して衝撃圧縮を行うためのターゲット開発と予備実験も行った。Fig. 4 に示すようなプリコンプレッションターゲットを用いて、液体窒素で冷却したセルに、気体の H_2S を吹き付けて一度固体化し、圧力をかけてから常温に戻すことで液体として封入した。予備圧力としては0.2 MPa 付近で安定したターゲットを実現できた。このターゲットに対して予備実験を行い、データ取得が可能であることがわかった。

今度、高压高温領域の相関係を解明することにより、これまでの H_2S の静的超高压実験や理論計算による結果と比較して、 MgH_2 と同様に相図や状態方程式

の理解を進める予定である。

謝辞

安全で円滑な実験の遂行にご尽力頂きました受入研究者の佐野考好助教、並びに大阪大学レーザーエネルギーセンターの皆様へ感謝致します。また、本研究は、JSPS 科研費 16H02246 及びコンポン研究所の支援のもとで、進められました。

REFERENCES

- [1] A. P. Drozdov *et al.*, Nature **525**,73-77(2015)
- [2] M. Einaga *et al.*, Nature Phys. **12**, 835-858(2016)
- [3] R. F. Trunin, M. V. Zhernokletov, N. F. Kuznetsov, Yu. N. Sutulov, Fiz. Zemli. **11**, 65-70 (1987)

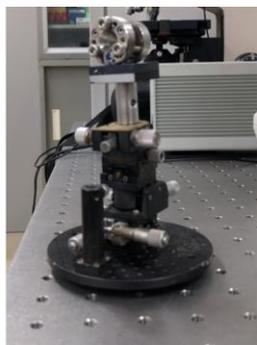
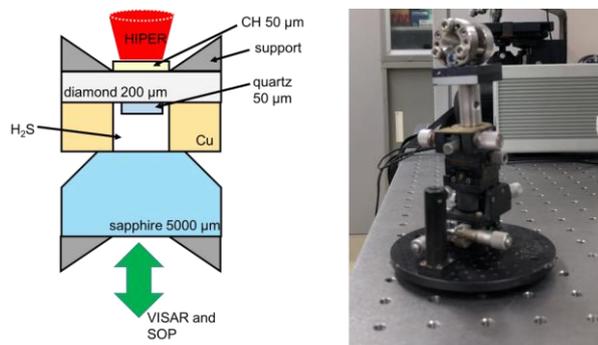


Fig. 4 (左)プリコンプレッションターゲット概念図と(右)プリコンプレッションターゲットの写真