

時間分解シングルショット X 線回折による 衝撃超高压力下の構造相転移ダイナミクス

中村一隆

東京工業大学 科学技術創成研究院 フロンティア材料研究所 〒226-8503 神奈川県横浜市緑区長津田町4259

一柳光平

高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所 〒305-8555 茨城県つくば市大穂 1-1

川合伸明

熊本大学 パルスパワー科学研究所 〒860-8555 熊本県熊本市中央区黒髪 2-39-1

要旨

超高压力下において、物質は弾塑性転移・構造相転移・融解などの構造変化を起こすが、その動的過程（ダイナミクス）は良く分かっていない。これは、短時間に圧力印可することと、高時間分解能での構造解析が非常に難しいためである。放射光のピコ秒 X 線パルスとパルスレーザー衝撃圧縮法を用いることで、10 GPa 程度の超高压力下における固体物質の構造変化をナノ秒の時間領域で計測することが可能となってきた。本稿では、高エネルギー加速器研究機構の放射光科学研究施設におけるレーザー衝撃圧縮下の時間分解 X 線構造解析システムと、それを用いて計測した単結晶 CdS, 多結晶 Bi, およびシリカガラスの超高压力下での構造変化のナノ秒ダイナミクスについて紹介する。

1. 研究背景

超高压力発生法にはプレス機やダイヤモンドアンビルセルを用いる静的圧縮法と衝撃銃やレーザー照射を用いた衝撃圧縮法がある¹⁾。衝撃圧縮法は、外部基準を用いずに衝撃波速度・粒子速度を計測することで独自に圧力を決定できることから、物質の状態方程式を求めることに用いられている。衝撃銃を用いる方法では、衝撃銃により飛翔体を加速し、ターゲットとなる物質との衝突により衝撃波を起こし超高压力状態を発生させる²⁻⁴⁾。この方法では、計測機器との同期の取りづらさや測定回数の限定などの問題点があった。一方、レーザーを用いた衝撃圧縮法が開発され、光学測定機器との高精度同期や繰返し実験が可能となった。レーザー照射を用いた衝撃圧縮では、表面のレーザーアブレーションの反作用により衝撃波を発生させる。この方法では、高強度パルスレーザーを用いることで1 TPaを超えるような超高压力を発生することが可能である⁵⁻⁷⁾。また、パルスレーザーを用いることで電気的同期や光同期系を用いることができ、衝撃波発生と検出器の動作タイミングをナノ秒以下の高時間分解能で同期させることができる。特に放射光や X 線自由電子レーザーからの X 線パルスを同期させることで、衝撃圧縮で誘起される非平衡超高压力状態における構造変化のダイナミクスを実時間で直接観測することが可能である。これにより、これまで分からなかった超高压力下における構造相転移のダイナミクスや、高ひずみ速度をもった圧縮下における非平衡

状態での特殊な物質構造特性などが明らかになってきている。本解説では、我々がこれまで開発した「パルスレーザーと放射光 X 線パルス」を用いた衝撃圧縮下のピコ秒時間分解 X 線回折測定システムとそれを用いたナノ秒時間スケールでの構造相転移ダイナミクス研究⁸⁾について紹介する。

2. 実験システム

実験は高エネルギー加速器研究機構の放射光科学研究施設 (Phonon Factory Advanced Ring (PF-AR)) ビームライン NW14A を用いておこなった。PF-AR は通年シングルバンチモード運転されており、アンジュレーターを用いると1パルス当たり 10^{12} photons/pulse の硬 X 線を使えることからポンプ・プローブ型の時間分解 X 線測定に適したリングである。時間分解 X 線回折測定には、レーザーパルスを励起光に X 線パルスを観測光とした、ポンプ・プローブ測定を用いている⁹⁻¹¹⁾。Fig. 1 にシングルショット型の時間分解 X 線回折・散乱装置の概略図を示す。衝撃圧縮に用いたレーザーは出力が1 J/pulse の Nd:YAG レーザー (基本波長1064 nm, パルス幅 8 ns) である。放射光の電子加速に用いる PF-AR の RF の 508 MHz をマスター信号としてパルス遅延発生器と分周器を用いて Nd:YAG レーザーを同期させる。放射光から発振する 794 kHz 繰返しの X 線パルスは回転式 X 線パルスセクターで 946 Hz に切り出し、さらにレーザー発振と同期し

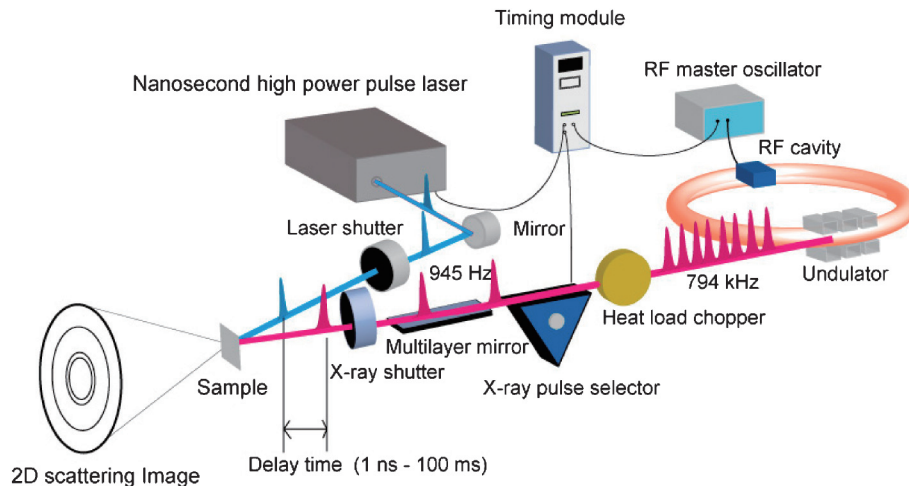


Fig. 1 (Color online) Schematic diagram of the single-shot time-resolved X-ray diffraction and scattering at the beamline NW14A, the PF-AR. The energy bandwidth can be changed by the X-ray multilayer optics from the default X-ray spectrum ($\Delta E/E = 15\%$) to the $\Delta E/E = 1.4\text{--}4.6\%$. The shock driving nanosecond laser and the X-ray pulse selector and each shutter are synchronized with the divided time clock of RF master oscillator. Reprinted from [8 Pacific Rim International Congress on Advance Materials and Processing, 4 (2013) 3489], ref.⁽¹¹⁾, Copyright 2013 by The Metals & Materials Society. Reprinted with permission.

た X 線シャッターを用いてシングルパルスの切り出しを可能にする。レーザーは X 線パルスセレクターの周波数 946 Hz の 1/100 の 9.46 Hz で発振し、光学シャッターによりシングルパルスを切り出せる。レーザーパルスをターゲットに照射し、設定した遅延時間後に X 線パルスを照射し、X 線回折像を X 線 CCD 検出器によりシングルショットで計測する。Fig. 1 に測定システムの模式図を示す。また、周期長 20 mm の NW14A の U20 アンジュレーターから得られる X 線のエネルギー幅は、非対称性かつ $\Delta E/E = 15\%$ の幅を持っている。Laue 回折測定をする場合は、アンジュレーター光をそのままを用いる。多結晶体やアモルファスに対しては X 線多層膜ミラーを用いた 1.5% もしくは 4.5% のエネルギー幅を持つ X 線パルスに成形し、粉末 X 線回折や X 線回折測定を行うことが可能になった。我々の開発した測定装置は、様々な構造の物質に対して時間分解 X 線回折測定を行えるようになっている。

ターゲットはレーザー照射による応力印下のために破壊してしまう。そのため、異なる遅延時間での X 線回折測定には、そのつどターゲットを交換して計測する必要がある。Fig. 2 に典型的なレーザー衝撃実験用ターゲット構成を示す。平板の試料表面にアルミニウム箔を張付けた構成になっている。パルスレーザーはアルミニウム表面に集光照射し、アルミニウムのレーザーアブレーションで発生する粒子放出（プラズマおよび中性粒子放出）の反作用として、衝撃波圧縮を誘起する。短時間の圧縮によって発生する衝撃波は試料内部を伝搬し、衝撃超高压状態を生成する。透過型の X 線回折測定を行う場合には、遅延時間に応じて既に衝撃波が進展した超高压状態と、衝撃波到達前の常圧状態の試料からの X 線回折像が合わさって観測

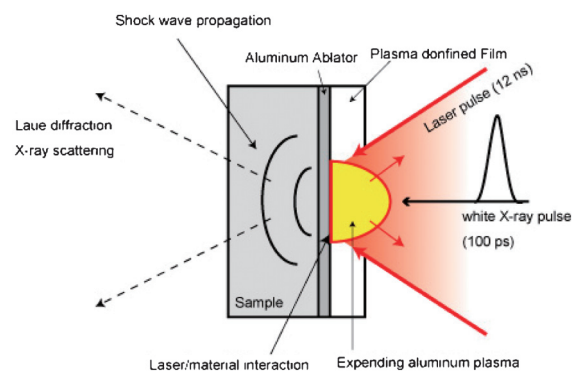


Fig. 2 (Color online) The sample target assembly of plasma confined target. The laser plasma generated at the ablator aluminum surface. The laser driving shock wave propagates into the sample through the aluminum. Reprinted from [8 Pacific Rim International Congress on Advance Materials and Processing, 4 (2013) 3489], ref.⁽¹¹⁾, Copyright 2013 by The Metals & Materials Society. Reprinted with permission.

されることになる。衝撃波が試料裏面に到達すると、裏面側から希薄波が伝搬し、試料は引っぱり応力により膨張する。長い遅延時間の計測を行うと、引っぱり応力による物質の膨張・破壊現象を調べることも可能である。

比較的低出力のレーザー照射の場合には、プラズマ閉込め型ターゲットとよばれるターゲット構成¹²⁾が用いられる。これは、レーザーアブレータのアルミニウム箔上を透明材料（ガラス、プラスチック、水など）で覆うもので、噴出したプラズマを試料と透明材料の間に閉じ込めることで、発生する応力の大きさと持続時間を増加させることができる。この方法は、透明材料のブレイクダウンしきい値（ $\sim 10^{14}$ W/cm²）以下で有効な方法である。水を用いた

レーザー衝撃圧縮法はレーザーピーニング¹³⁾による物質改変等にも用いられている。

3. 構造相転移ダイナミクス

3.1 半導体単結晶の過剰圧縮状態

半導体 CdS は従来の衝撃銃を用いた衝撃圧縮実験から約 3 GPa において、ウルツ鉱型構造から岩塩型構造に構造相転移することが知られている^{14,15)}。ここでは厚さ 50 μm の CdS 単結晶 ((001) 配向) を試料としてプラズマ閉込め型ターゲット構成で、10 ns のパルス YAG レーザー光を 200–250 μm^2 領域に集光照射した。X 線回折は、透過型 Laue 法を用いた¹⁶⁾。レーザーの集光強度から、試料に印可される圧力は 3.92 GPa と見積もられ、構造相転移圧力を超えている。Fig. 3 にレーザー衝撃圧縮下における Laue 回折像を示す。レーザー照射前には、6 回対称の回折スポットが観測され、ウルツ鉱型構造を取っていることが確認できる。レーザー照射後 12 ns までは、回折スポットが動径方向外側に向かって筋状になる。その後 22 ns にかけて内側に向かって筋を引いていることがわかる。これは、結晶構造の対称性を保ったまま、格子間隔が圧縮されたのち元に戻っていくことを示している。このことは、衝撃圧縮時間約 10 ns の間には構造相転移しないことを示している。また回折スポットの変形から、格子定数の最大圧縮をもとめると 4.4% であることがわかる。この値は、通常の衝撃圧縮実験から求められる弾性変形の延長線上にあり、通常存在しない非平衡特有の過剰圧縮状態になっていることを示している。

レーザー衝撃実験において、衝撃銃を用いた実験で相転

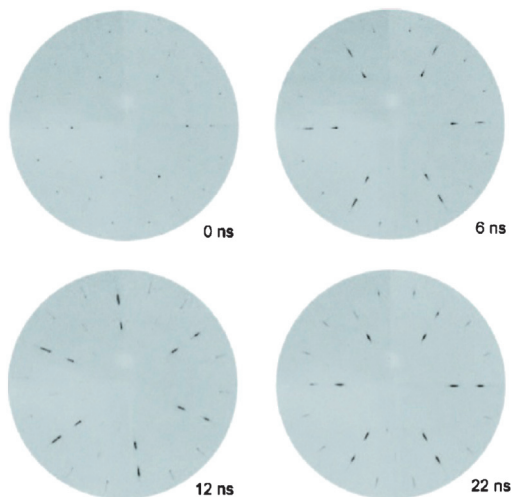


Fig. 3 (Color online) The Laue patterns of the CdS single crystal are obtained by single-shot time-resolved Laue X-ray diffraction measurements. The data at each delay times are taken as 0, 6, 12, and 22 ns after the laser irradiation¹⁶⁾. Reproduced from [Applied Physics Letters, 91 (2007) 231918.] with the permission of AIP Publishing.

移を超える圧力を印可しても構造相転移を起こさなかった理由として、衝撃圧力保持時間の違いが考えられる。衝撃銃では、衝撃保持時間がマイクロ秒程度（飛翔体の大きさにも依存する）であるのに対して、レーザー衝撃圧縮ではレーザーパルス幅程度の 10 ns 程度である。衝撃圧縮により、結晶のある部分が構造相転移して核形成したとしても、その影響が圧縮された試料全体に伝わるためには伝達時間がかかるため、圧縮試料全体にわたる構造相転移が起こりにくいと考えられることができる。

3.2 半金属ビスマス多結晶の多形構造相転移

多結晶を用いた構造相転移の研究として、半金属ビスマスをを用いた実験を行った¹⁷⁾。ビスマスは 10 GPa 以下の比較的低い圧力において 5 つの安定構造を持つ^{18,19)}。特に、常温近傍では、Bi-I, Bi-II, Bi-III, Bi-V 相（各相の構造は Fig. 5 挿入図に示す）を持ち、その構造相転移圧力は静的圧縮実験における圧力基準点として用いられている。試料には 20 μm 厚さの多結晶ビスマスをを用い、アプレータとして 3 μm 厚さのアルミニウム箔、25 μm 厚さのプラスチックフィルムで構成されるプラズマ閉込め型ターゲットを用いて実験を行った。レーザー照射前のシングルショット X 線回折像 (Fig. 4(a)) は多結晶によるリングパターンを示し、角度方向に積分して求める回折ピーク (Fig. 4(b)) は Bi-I 相構造によるものと同定できる。レーザー衝撃後の典型的な回折ピークを Fig. 5 に示す。レーザー照射後 4 ns の回折ピークは Bi-V 相に、14 ns の回折ピークは Bi-III 相、22 ns の回折ピークは Bi-II 相に同定される。計算から見積もった圧力の時間変化と比較すると、レーザー強度の時間的立ち上がりに対応した応力発生過程では最大応力 (約 11 GPa) に達する 5 ns の短時間に Bi-I 相構造から Bi-V 相構造へ相転移し、その後の応力解放過程では応力の大きさに対応した V-III-II-I 相構造への逐次的な構造変化をしていることが分かる。また常圧相である Bi-I 相のもっとも強い (200) ピーク強度の時間変化をみると、レーザー照射後 10 ns までは衝撃波の試料内部伝搬にともなってピーク強度が減少するのに対して、その後の応力解放過程ではピーク強度が増加していくことも確認できる。試料厚さが 20 μm の試料では、衝撃圧縮下における構造と圧縮前の構造の両方からの X 線回折ピークが観測されているが、さらに薄い 5 μm の試料を用いることで遅延時間 5 ns には Bi-V 相構造のピークだけが得られている。

3.3 非晶質系の構造変化

結晶性の試料に比べると回折強度は小さくなるが、 $\Delta E/E = 4.5\%$ のエネルギー幅を持つ X 線パルスを用いることで本計測システムでは非晶質系物質からのシングルショット X 線回折計測も可能となっている。シリカガラスを試料としたプラズマ閉込め型ターゲットを用いたレーザー衝撃圧縮では、Fig. 6(a) に示すような X 線回折ピークが得

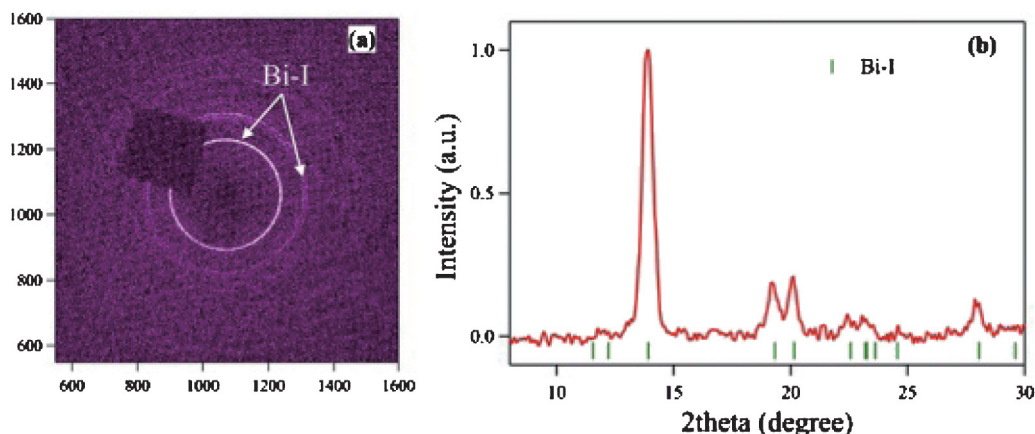


Fig. 4 (Color online) Debye-Scherrer diffraction pattern from the pristine sample of polycrystalline bismuth (a), and its integrated intensity profile (b)¹⁷⁾. Reproduced from [Applied Physics Letters, 103 (2013) 161904.] with the permission of AIP Publishing.

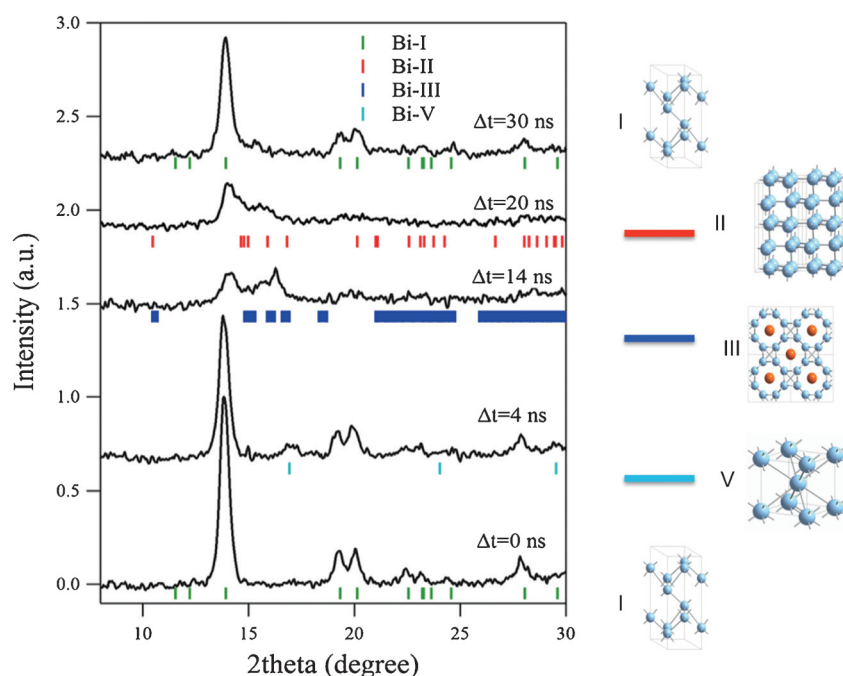


Fig. 5 (Color online) Time evolution of the normalized diffraction intensity profiles for delays at 0, 4, 14, 20, and 30 ns after the laser irradiation. The series of bar show the calculated diffraction peaks of the Bi-I, Bi-II, Bi-III, and Bi-V phases¹⁷⁾. Reproduced from [Applied Physics Letters, 103 (2013) 161904.] with the permission of AIP Publishing.

られる²⁰⁾。アブレータ層のアルミニウムからの回折線に重畳して、4 Å のシリカガラスからの FSDP (first sharp diffraction peak) が観測され、レーザー照射前後でそのピーク強度と形状に変化が見られる (Fig. 6(b)参照)。アルミニウムの回折はレーザー照射によりアブレーションしきれずに残った残留アルミニウムに由来するものである。このアルミニウムの回折ピークの角度変化から、印可された応力の大きさを求めることが可能であり、この場合にはシリカガラス中に最大3.5 GPa の衝撃応力が発生していると見積もることができている。遅延時間10 ns の X 線回折

から FSDP ピークは高 Q 側にシフトしていることが分かり、Si-O-Si 結合角が弾性的な衝撃圧縮により変化していることが分かった²⁰⁾。

3.4 10 GPa を超える超高压状態での構造ダイナミクス計測

PF-AR NW-14ビームラインではさらに高い衝撃圧力状態を発生させるために、励起用レーザーとして3段からなる Nd ドープのガラスロッドのアンプを持つ高出力ガラスレーザー (最大16 J/pulse) を用いた実験システムの

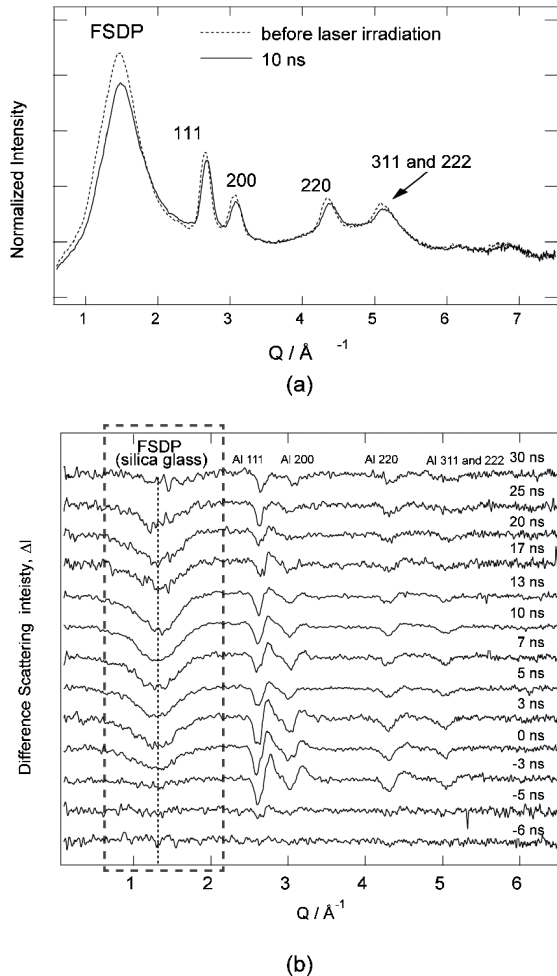


Fig. 6 (a) X-ray scattering spectra before laser shot (dash line) and at 10 ns delay time (solid line). X-ray scattering from silica glass is superimposed with aluminum film X-ray diffraction peaks. (b) Difference X-ray scattering intensity, $\Delta I(Q)$, are subtracted from the before laser irradiation at each delay time. Dashed area is the FSDP of silica glass which is associated with the intermediate-range structure about 4 \AA . The shock wave generated on the aluminum surface around -5 ns , and propagated into silica glass around 0 ns (20). Reproduced from [Applied Physics Letters, 101 (2012) 181901.] with the permission of AIP Publishing.

構築を行っている。ガラスロッドの冷却時間のため20分間に1ショット程度の照射実験となるが、最大衝撃圧力を約30 GPa程度まで上昇させることが可能となる。到達圧力域の拡大に伴い、これまでのシステムでは困難であった、無機結晶やセラミックスなどの高強度材料における動的降伏過程や、衝撃超高压下で生じる様々な固体反応過程におけるX線回折測定へ着手し始めており、それらのデータを基にした構造ダイナミクス研究の展開を目指している。

物質の降伏現象(弾性-塑性転移)は、顕著なひずみ速度依存性を示し、ひずみ速度が $10^6/\text{s}$ 以上にも達する衝撃圧縮下では、静的な材料試験で得られる降伏強度の数倍も大きくなる²¹⁾。実際、金属材料ではGPaオーダー、無機

材料では10 GPaオーダーの降伏強度を示すことも珍しくない。この衝撃圧縮下における降伏応力の著しい上昇に関しては、塑性変形を支配する転位の運動速度よりも、応力・格子ひずみを伝える衝撃波の伝搬速度が速いことが原因であるとされている。そして、転位の運動は加えられた応力に対する時間緩和現象として変形挙動に影響すると考えられている²¹⁾。このような応力緩和機構を実際に検証するためには、km/sオーダーの衝撃波速度で伝播する格子ひずみの時間変化過程を観測する必要がある。これまで、主に分子動力学法による数値シミュレーションを中心として衝撃降伏機構の研究が進められてきた²²⁾。近年では、米国の国立研究所を中心として、kJクラスの巨大なパルスレーザーを用いたレーザープラズマ誘起パルスX線とレーザー誘起衝撃圧縮法の組み合わせにより、実験的な降伏機構解明が行われ始めている^{23,24)}。しかし、システムの巨大さから、繰返し実験が困難であり、その大部分が衝撃圧縮下における1状態を切り取ったスナップショット実験に留まり、格子ひずみの時間変化の取得には至っていない。一方、我々のシステムでは、テーブルトップ型のハイパワーレーザーを衝撃波誘起に用いることにより繰返し実験を容易にしており、ポンププローブ型の時間分解測定による格子ひずみの時間変化過程の取得を可能にしている。現在、予備的に行っている単結晶Si(111)のレーザー衝撃圧縮において、従来の1 J/pulseのYAGレーザー照射による8 GPa圧縮では(-1 3 -1)回折スポットの変化から弾性変形による格子圧縮のみが観測されたことに対して、16 J/pulseのガラスレーザー照射による約27 GPa圧縮では塑性変形によるピークシフトが4.5 nsの時間内に起こることが観測されている。今後、様々な遅延時間条件および圧力条件での測定を継続していくことにより、高ひずみ速度変形下における格子スケールでの応力緩和機構を検証していく予定である。

衝撃超高压下における固体反応に関して、地球を形成する岩石や、セラミックスなどは20 GPa以上で分解反応に起因する混合相などが存在していることが音速測定により分かっている。しかしながら、衝撃圧縮下における反応ダイナミクスはひずみ速度にも依存しているとも考えられているが、詳細は分かっていない。固体中の衝撃波伝搬下における動的構造と時間依存性について明らかにすることで静的圧縮実験との比較だけでなく、応用として衝撃破壊のメカニズムの解明と破壊制御や、地球形成に関わる隕石衝突までのスケールと時間を拡大してより正確な議論が今後可能となると考えている。

3.5 ピコ秒・フェムト秒時間領域でのダイナミクス

放射光X線パルスを用いた時間分解計測は現状では、そのパルス幅から100 ps程度が限界である。近年、X線自由電子レーザーからのフェムト秒X線パルスを用いることでピコ秒・フェムト秒の時間分解計測が可能となり、

レーザー衝撃圧縮による圧縮初期における相転移や構造変化過程の研究が始まっている。特に米国の the Linac Coherent Light Source (LCLS) では精力的に研究が進められている。LCLS では X 線回折計測用の X 線パルスとして 50–80 fs 程度のパルスが用いられている。ナノ秒の Nd:ガラスレーザーを用いた衝撃実験では、ビスマスに 14 GPa までの衝撃圧縮を行い、80 fs の X 線パルスで X 線回折測定を行うことで、固体-固体構造相転移に加えて、3 ns 以下で固体-液体相転移過程が起こることが報告されている²⁵⁾。レーザービーム 2 本を集光照射して、グラフィットに 228 GPa までの衝撃圧縮を行った実験ではナノ秒スケールでおこるダイヤモンド相転移もその場観測されている²⁶⁾。また熔融石英の衝撃圧縮では 18 GPa 以上の圧力でアモルファスからステーションパイトのナノ単結晶転移が観測されている²⁷⁾。さらに 170 fs のパルスレーザーを用いた Cu 多結晶の衝撃圧縮測定では、73 GPa のピーク圧力での格子変形や弾塑性転移が 50 ps 以下の時間分解能で測定されている²⁸⁾。こうした X 線自由電子レーザーを用いた衝撃圧縮下での構造ダイナミクス研究は、フランスや日本でも始まっている。

X 線自由電子レーザーは構造ダイナミクスの研究において非常に強力な実験施設であるが、ビームラインの数が限られている。ナノ秒領域のダイナミクスの研究には放射光施設を使い、さらに速いダイナミクスを詳細に調べるには X 線自由電子レーザーを使うといった使い分けが重要となってくるだろう。

4. まとめ

Nd:YAG レーザーを用いたレーザー衝撃圧縮法と放射光の 100-ps X 線パルスを用いたシングルショット時間分解 X 線回折測定により、約 10 GPa までの衝撃超高压力下における固体物質の構造変化のナノ秒ダイナミクスを調べることができる。単結晶 CdS の衝撃圧縮 (3.92 GPa) では、10 ns の圧力保持時間内には、構造相転移を起こさずに、非平衡状態に代特有な過剰圧縮構造を持つことが示された。多結晶 Bi を 11 GPa まで衝撃圧縮すると、圧縮過程の 5 ns の間に Bi-I 構造から Bi-V 構造への構造相転移が起こることを見いだした。また、圧力解放過程では、20 ns 程度の時間をかけて圧力に応じた逐次構造相転移が起こることを直接計測した。また、非晶質の計測も可能であり、シリカガラスの 3.5 GPa の衝撃圧縮下における弾性的変形による、Si-O-Si 結合角変化を実時間計測できることを示した。PF-AR のシステムでは高強度ガラスレーザーを用いることで、発生衝撃圧力の高圧力化の改良を進めている。これにより、30 GPa 程度の圧力下での相転移過程や物質の降伏現象のダイナミクス研究への展開が期待される。

謝辞

本稿で紹介した研究は、高エネルギー研究機構共同利用研究課題番号 2009G644, 2011G632, 2013G225, 2009G644, 2011G632, 2013G624, 2015S2-006 で行われたものである。実験にあたり、物質構造科学研究所の足立伸一氏、野澤俊介氏、深谷亮氏、船守展正氏、若林大佑氏、筑波大学の興野純氏、高木壮大氏、ドイツ電子シンクロトロン線の佐藤篤志氏、東京工業大学の胡建波氏、則松桂氏の協力を頂いた。また、東京工業大学応用セラミックス研究所共同利用研究、大阪大学レーザーエネルギー学研究所共同研究の支援も頂いた。

参考文献

- 1) 「新しい高圧力の科学」毛利信男 (編) 講談社 (2003).
- 2) A. H. Jones, W. M. Isbel and C. J. Maiden: *J. Appl. Phys.* **37**, 3493 (1966).
- 3) N. C. Holmes, J. A. Moriarty, G. R. Gathers and W. J. Nellis: *J. Appl. Phys.* **66**, 2962 (1989).
- 4) T. Moritoh, N. Kawai, K. G. Nakamura and K. Kondo: *Rev. Sci. Instrum.* **72**, 4270 (2001).
- 5) R. Cauble, D. W. Phillion, T. J. Hoover, N. C. Holmes, J. D. Kilkenny and R. W. Lee: *Phys. Rev. Lett.* **70**, 2102 (1992).
- 6) D. Batani, A. Balducci, D. Beretta, A. Bernarinello, T. Löwer, M. Koenig, A. Benuzzi, B. Faral and T. Hall: *Phys. Rev. B* **61**, 9287 (2000).
- 7) H. Nagao, K. G. Nakamura, K. Kondo, N. Ozaki, K. Takamatsu, T. Ono, T. Shiota, D. Ichinose, K. A. Tanaka, K. Wakabayashi, K. Okada, M. Yoshida, M. Nakai, K. Nagai, K. Shigemori, T. Sakaiya and K. Otani: *Phys. Plasma* **13**, 052705 (2006).
- 8) K. Ichyanagi and K. G. Nakamura: *Metals* **6**, 17 (2016).
- 9) S. Nozawa, S. Adachi, J. Takahashi, R. Tazaki, L. Güerin, M. Daimon, A. Tomita, T. Sato, M. Chollet, E. Collet, H. Cailleau, S. Yamamoto, K. Tuchiya, T. Shioya, H. Sasaki, T. Mori, K. Ichyanagi, H. Sawa and S. Koshihara: *J. Synchrotron Rad.* **14**, 313 (2007).
- 10) K. Ichyanagi, T. Sato, S. Nozawa, K. H. Kim, J. H. Lee, J. Choi, A. Tomita, H. Ichikawa, S. Adachi and S. Koshihara: *J. Synchrotron Rad.* **16**, 391 (2009).
- 11) K. Ichyanagi, N. Kawai, S. Nozawa, T. Sato, J. Hu, K. G. Nakamura, S. Adachi and Y. C. Sasaki: *8 Pacific Rim International Congress on Advanced Materials and Processing* **4**, 3489 (2013).
- 12) D. Devaux, R. Fabbro, L. TOLLIER and E. Bartnicki: *J. Appl. Phys.* **74**, 2268 (1993).
- 13) Y. Sano, K. Masaki, T. Gushi and T. Sano: *Materials & Design* **36**, 809 (2012).
- 14) Z. P. Tang and Y. M. Gupa: *J. Appl. Phys.* **64**, 1827 (1988).
- 15) Z. P. Tang and Y. M. Gupa: *J. Appl. Phys.* **81**, 7203 (1997).
- 16) K. Ichyanagi, T. Dato, S. Nozawa, A. Tomita, Y. Hironaka, K. G. Nakamura, S. Adachi and S. Koshihara: *Appl. Phys. Lett.* **91**, 231918 (2007).
- 17) J. Hu, K. Ichyanagi, T. Doki, A. Goto, T. Eda, K. Norimatsu, S. Harada, D. Horiuchi, Y. Kabasawa, N. Kawai, S. Nozawa, T. Sato, S. Adachi and K. G. Nakamura: *Appl. Phys. Lett.* **103**, 161904 (2013).
- 18) E. Yu Tonkov and E. G. Ponyatovsky: *Phase Transformations of Elements under High Pressure* (CRC, Boca Raton, 2005), p. 148.
- 19) J. L. Pelissier and N. Wetta: *Physica A* **289**, 459 (2001).

- 20) K. Ichiyangi, N. Kawai, S. Nozawa, T. Sato, A. Tomita, M. Hoshino, K. G. Nakamura, S. Adachi and Y. C. Sasaki: Appl. Phys. Lett. **101**, 181901 (2012).
- 21) D. E. Grady: Mech. Mater. **29**, 181 (1998).
- 22) B. L. Hollian and P. S. Lomdahl: Science **280**, 2085 (1998).
- 23) M. J. Suggit, A. Higginbotham, J. A. Hawreliak, G. Mogni, G. Kimminau, P. Dunne, A. J. Comley, N. Park, B. A. Remington and J. S. Wark: Nat. Commun. **3**, 1224 (2012).
- 24) A. J. Comley, B. R. Maddox, R. E. Rudd, S. T. Prsbrey, J. H. Hawreliak, D. A. Orlikowski, S. C. Peterson, J. H. Satcher, A. J. Elsholz, H. S. Park, B. A. Remington, N. Bazin, J. M. Foster, P. Graham, N. Park, R. A. Rosen, S. R. Rothman, A. Higginbotham, M. Suggit and J. S. Wark: Phys. Rev. Lett. **110**, 115501 (2013).
- 25) M. G. Gorman, R. Briggs, E. E. McBride, A. Higginbotham, B. Arnold, J. H. Eggert, D. E. Fratanduono, E. Galter, A. E. Lazicki, H. J. Lee, H. P. Liermann, B. Nagler, A. Rothkirch, R. F. Smith, D. C. Swift, G. W. Collin, J. S. Wark and M. I. McMahon: Phys. Rev. Lett. **115**, 095701 (2015).
- 26) D. Kraus, A. Ravasio, N. Gauthier, D. O. Gericke, J. Vorberger, S. Frydrych, J. Helfrich, L. B. Fletcher, G. Schaumann, B. Nagler, B. Barbrel, B. Bachmann, E. J. Gamboa, S. Göde, E. Granados, G. Gregori, H. J. Lee, P. Neumayer, W. Schumaker, T. Döppner, R. W. Falcone, S. H. Glenzer and M. Roth: Nature Commun. **7**, 10970 (2016).
- 27) A. E. Gleason, C. A. Bolme, H. J. Lee, B. Nagler, E. Galtier, D. Milathianaki, J. Hawreliak, P. G. Kraus, J. H. Eggert, D. E. Fratanduno, G. W. Collins, R. Sandberg, W. Yang and W. L. Mao: Nature Commun. **6**, 8191 (2015).
- 28) D. Milathianaki, S. Boutet, G. J. Williams, A. Higginbotham, D. Ratner, A. E. Gleason, M. Messerschmidt, M. M. Seibert, D. C. Swift, P. Hering, J. Robinson, W. E. White and J. S. Wark: Science **342**, 220 (2013).

著者紹介



中村一隆

東京工業大学科学技術創成研究院フロンティア材料研究所 准教授
E-mail: nakamura.k.ai@m.titech.ac.jp
専門：光物性，非平衡物質科学

【略歴】

1989年東京工業大学大学院理工学研究科博士課程修了，工学博士，科学技術庁金属材料技術研究所・研究員，1993年科学技術庁金属材料技術研究所・主任研究官，1998年東京工業大学応用セラミックス研究所・助教授，2016年より現職。



川合伸明

熊本大学パルスパワー科学研究所 准教授
E-mail: nkawai@kumamoto-u.ac.jp
専門：衝撃超高压科学

【略歴】

2006年東京工業大学大学院総合理工学研究科博士課程修了，博士(工学)，東京工業大学応用セラミックス研究所・博士研究員，2009年宇宙航空研究開発機構・宇宙航空プロジェクト研究員，2011年宇宙航空研究開発機構宇宙科学研究所・助教，2013年より現職。



一柳光平

高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所 特任准教授
E-mail: kouhei.ichiyangi@kek.jp
専門：レーザー衝撃超高压科学，時間分解 X 線計測

【略歴】

2006年東京工業大学大学院総合理工学研究科博士課程修了，博士(理学)，高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所・博士研究員，2008年 JST ERATO 腰原非平衡ダイナミクスプロジェクト・研究員，2009年東京大学大学院新領域創成科学研究科物質系専攻・助教，2014年より現職。

Dynamics in structural phase transition of solids under shock-induced high pressures studied with time-resolved single-shot X-ray diffraction

Kazutaka NAKAMURA Laboratory for Materials and Structure, Institute of Innovative Research, Tokyo Institute of Technology, 4259 Nagatsuta, Yokohama 226-8503, Japan

Kouhei ICHIYANAGI Photon Factory, High Energy Accelerator Research Organization, 1-1 Oho, Tsukuba 305-8555, Japan

Nobuaki KAWAI Institute of Pulsed Power Science, Kumamoto University, 2-39-1 Kurokami, Kumamoto 860-8555, Japan

Abstract Dynamic of structural phase transition under high pressures, such as structural phase transformation, elastic-plastic transition, and melting, has now been well understood, because of its difficulty of generation of high pressures and measurement within a very short time scale. Combination of pulsed X-rays from synchrotron radiation and laser-shock compression enables to directly monitor structural change of solids in a nanosecond time scale under high pressures around 10 GPa. In this paper, we describe the experimental system at KEK for time-resolved X-ray diffraction of solids under the shock compression and the observed nanosecond dynamics of structural change in a single crystal of CdS, polycrystalline Bi, and silica glass.