

衝撃温度の光学的測定

杉浦 央*, 沢岡 昭**

Optical Measurements of Shock Temperatures

Hiroshi Sugiura and Akira Sawaoka

The measurement of temperature of a material at shock compression is one of the way to investigate the thermodynamic properties of the material and other phenomena induced by shock compression, which are sometimes difficult to be observed by conventional Hugoniot experiments. Optical measurement is the most available to estimate the shock temperature. There are, however, a few problems, because the material must be transparent for this measurement and/or the shock compressed state is not homogeneous from mechanical, optical and thermal views. To solve these problems, it is necessary to observe not only the time profile of radiance but also the spectrum of it. Fused silica is one of the materials well investigated by such method.

The absorption coefficient of shock compressed material is estimated from the radiance profile, and increases with pressure. In low pressure region, it is difficult to estimate the shock temperature, because heterogeneous emissions are comparable to homogeneous thermal radiation. In high pressure region, the radiance spectrum has not any anomalous structures, and the brightness can be related to the shock temperature.

The radiance profile indicates a characteristic property of shock compression. The temperature is the lower in the layer the closer to the shock front. It is the result of relaxation process from heterogeneous strain to heat behind the shock front.

1. はじめに

実験室で高圧を発生する方法は、二つに大別することができます。一つは高圧容器の中の物体を縮めてゆく、静的圧縮法であり、熱力学的には等温圧縮過程とみなされる。高圧容器としてはWC製の物のほか、ダイヤモンドのアンビルと金属のガスケットを組み合わせた物が広く使われている。もう一つの方法は、爆轟波や高速飛翔体の衝突によって発生する衝撃波を利用する、衝撃(動的)

圧縮法である。

衝撃圧縮は熱力学的にも静的圧縮とは異なり、エントロピーの増加を伴う特殊な断熱過程である。その圧縮曲線はウゴニオ(Hugoniot)と呼ばれ、等温圧縮曲線や一般的の断熱圧縮曲線と比較すると、同じ密度に対し高い圧力値をとる。このことは、衝撃圧縮が他の圧縮過程よりも多くのエネルギーを必要とし、大きな温度上昇を伴うことに対応している。したがって、ウゴニオによって物質の状態方程式について論ずる場合には、この点を考慮に入れる必要がある。比熱やグリューナイゼン定数を用いて、ウゴニオを他の圧縮曲線に引き直すことができるが、この作業はそれほど容易ではない。

測定技術の面では、衝撃圧縮の持続時間が 10^{-7} 秒程度と非常に短いために、様々な制約が生じてくる。この問題は、電子技術の進歩と研究者の工夫と努力によって克服されてきているが、静的圧縮実験における計測法とはかなり異なる方法を探らざるを得ない。

衝撃圧縮を少し微視的に捉えれば、圧縮と言ふよりも

* 横浜市立大学文理学部：横浜市金沢区瀬戸 22-2

〒226

Faculty of Literature and Science, Yokohama City University, 22-2 Seto, Kanazawa-ku, Yokohama, 236

** 東京工業大学工業材料研究所：横浜市緑区長津田町 4259 〒227

Research Laboratory of Engineering Materials, Tokyo Institute of Technology, 4259 Nagatsuta, Midori-ku, Yokohama, 227

むしろ不均一な変形であるということになり、衝撃圧縮の物性測定や相転移への不均一性の影響が最近注目されできている¹⁾。

以上のような事情にも拘わらず、衝撃圧縮は物質の状態方程式を求めるための、最も重要な実験技術となっている。例えば、現在の圧力スケールは、30 GPaまでは NaCl^{2~4)}、100 GPaまでは Cu や Mo などの金属⁵⁾の状態方程式が基本になっているが、ウゴニオのデータは、特に後者において、重要な役割を果たしている。状態方程式の研究における衝撃圧縮の利点は、第一に比較的容易に超高圧力が得られる点である。そして、最も重要なことは、圧力と体積が、速度という力学的な量の測定によって、流体力学的に求められるところであろう。そこにはいくつかの仮定が含まれているにしても、何らかの二次圧力計に頼っている静的圧縮における圧力測定とは大きな違いがある。

一般的ウゴニオ測定では、圧力、体積と投入されたエネルギー(ウゴニオエネルギー)を求めることができる。完全にウゴニオを記述するためには、ウゴニオエネルギーを正しく評価することが重要である。ウゴニオエネルギーは同体積への等温圧縮に必要なエネルギーより大きいわけであるが、この余分なエネルギーは試料の温度上昇を招く。その結果として起こる圧力の上昇分を熱圧力(thermal pressure)と呼んでいる。最終的な圧力がウゴニオ測定で求められた圧力と等しくなるように、温度や熱圧力を計算によって求めることが、すなわち、ウゴニオを等温圧縮曲線に引き直す作業である。その際必要となる高圧下の熱力学パラメータについての情報は不十分であり、何らかの仮定が用いられるのが普通である。

この過剰エネルギーの評価という問題に対し、実験的には次のようなアプローチがなされる。衝撃圧縮後の物質はただちに膨張し、元の圧力に戻るが、一般的の断熱膨張過程であるので、温度は元に戻らない。この時の温度を残留温度と呼び、だいたいエネルギーの過剰分に相当する程度であるので、残留温度を測定することはこの評価のために非常に有効である^{6,7)}。

一方、衝撃圧縮中の温度は衝撃温度と呼ばれる。一般的ウゴニオ測定に加えて、衝撃温度の測定を行なえば、ウゴニオ上の圧力、温度、体積が求められるわけであるから、ウゴニオが状態方程式としての体裁を整えたことになり、衝撃誘起の相転移などの現象については、その結果を使って直接議論することができる^{8,9)}。また衝撃温度の正確な測定値は、ウゴニオを他の圧縮曲線に引き直す際の、一つの境界条件を与えることになり、より正確な評価を可能にする。

衝撃実験における温度測定は光放射を利用したものが

ほとんどである^{8~10)}。衝撃温度の測定と残留温度の測定では、測定の目的が多少異なっているが、測定系は基本的に同じである。試料が透明であれば、試料に衝撃波が侵入した瞬間から反対側へ抜けまるまでを、反対側より観測することができるので、衝撃温度に対応する放射を測定できる。試料が不透明であれば、衝撃波が反対側(観測側)へ抜けた瞬間以降の放射しか観測できないのであり、この放射は残留温度に対応する。しかし、適当な窓材があれば、窓材による反射衝撃波によって不透明体の衝撃圧縮状態を観測することは可能である。

ここでは最初にウゴニオ測定と状態方程式の計算法について簡単に述べ、そして1979年から1981年にかけて東京工業大学で行なった実験^{11,12)}に基づいて、衝撃圧縮下の透明体の温度評価のための光放射測定法について述べる。

2. ウゴニオ測定

衝撃圧縮の方法も様々であるが、最も計測に適している方法として、Fig.1に示した二段式軽ガス銃が広く使われている。1段目は火薬室(powder chamber)と圧縮管(pump tube)から成り、圧縮管にはHeガスを充填する(2~数atm^{*1})。2段目は発射管(launcher tube)と試料室(sample chamber)から成り、数Torr以下に減圧する。1段目と2段目を接続するのが、高圧室(high pressure coupling)である。Heガスは火薬によって推進されたピストンによって圧縮される。すると高圧室のダイアフラムが破れ、飛翔体がHeガスの膨張によって加速され、高速で試料に衝突する。この時試料に高圧が発生する。

試料は通常Fig.2のように金属などの板(target plate, delay plate)の上に乗せる。Fig.2には、試料と飛翔体の衝突前後の各界面の動きが太い実線で示されている。細い実線は衝撃波の伝播を示しており、物質の流れる速さや圧力はここでほぼ不連続となる。破線は圧力を下げる波で希薄波と呼ぶ。衝撃圧縮されている領域は細い実線と破線で囲まれた部分ということになる。Fig.2の試

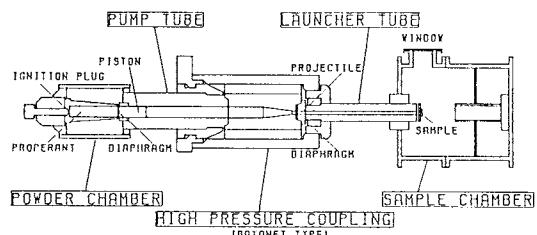


Fig. 1 Schematic principles of a double stage light-gas gun.

^{*1} atm = 101 325 Pa

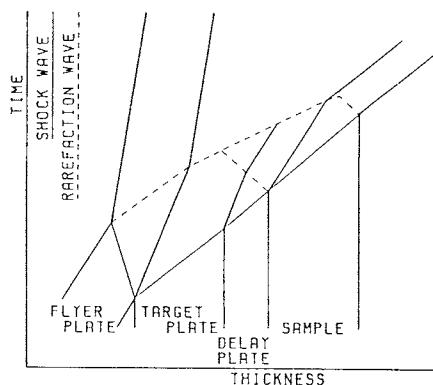


Fig. 2 A schematic flow diagram at a high velocity impact.

料構成では、試料の衝撃インピーダンスが前段の金属板より小さいという設定であり、その界面を衝撃波が通過した後、少し圧力が下がっている。

Fig. 2 では、試料などの物質の流れを、衝突面に垂直な断面で捉えていることになるが、衝撃圧縮の圧力(P)や密度(ρ)を求める場合にも、やはり一次元流れとして扱う^{13,14)}。

$$P = \rho_0 u U \quad (1)$$

$$1 - \frac{\rho_0}{\rho} = \frac{u}{U} \quad (2)$$

これらの式は運動方程式と連続の式から導びかれる。 ρ_0 は初期密度、 u 、 U はそれぞれ粒子速度、衝撃波速度である。 u 、 U はそれぞれ、Fig. 2 の太い実線、細い実線の傾きの逆数に対応する量であるから、衝撃圧縮時の歪を表わしている(2)式などは、Fig. 2 から直観的にも理解できるものと思う。

一方、エネルギー保存則からは、体積を V とすると、

$$E = \frac{1}{2} P (V_0 - V) \quad (3)$$

が得られ、衝撃圧縮によって投入されるエネルギー(ウゴニオエネルギー、 E)が求められる。Fig. 3 はウゴニオと他の圧縮曲線を比較したものである。等温圧縮や断熱圧縮は可逆的であり、圧縮曲線はその圧縮の道すじを示しているのに対し、ウゴニオは1回1回の衝撃圧縮の最終状態を示すにすぎない。(3)式はその道すじを初期状態と最終状態を結ぶ直線と考えれば良いことを示している。

(1)式から(3)式はランキンウゴニオの式であり、衝撃実験で広く使われているが、ここには一つの仮定が含まれている。それは圧力と粒子速度の位相速度が等しいということであり、衝撃波面が不連続である時、または波面の形状が一定であるような定常流れの時、これが成

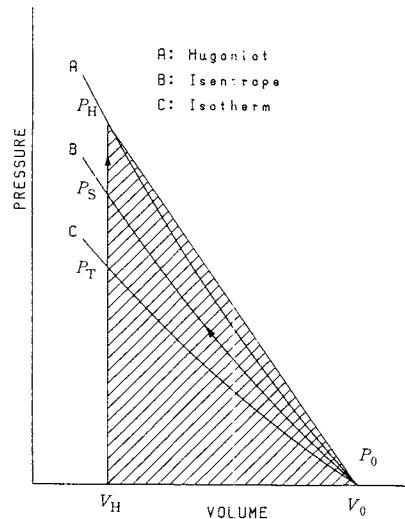


Fig. 3 Three curves of compression from V_0 to V_H are expressed on P - V plane. Hatched area corresponds to Hugoniot energy. Arrows indicate a hypothetical path of the shock compression for thermodynamical calculation.

り成つ¹³⁾。特殊な場合を除き、一般的の衝撃実験、特に我々が光測定を行なったような、十分圧力の高い領域ではこの仮定が正しいと考えて良い。

(1)式から(3)式によって、 P 、 V 、 E を求めるためのウゴニオ測定とは、衝撃波速度(U)と粒子速度(u)という二つの速度を測定することである。それぞれの測定法については、他の文献^{14~16)}を参考にしていただくこととし、ここではウゴニオが既知である物質のウゴニオパラメータを簡単に求める方法について述べる。

ウゴニオを Fig. 3 のように P - V 平面上に書けば、圧縮曲線として見易い形になるが、衝撃実験ではあまり便利な形ではない。ウゴニオの別の表現としては、 U と u 、 u と P の関係などが良く用いられる。特に u - P 関係は以下に述べるような使い方ができる。

衝撃圧縮は初期状態(u_0 、 P_0)から圧縮状態(u_1 、 P_1)へジャンプするものと考えられる。Fig. 2 の flyer と target が衝突した直後の圧縮状態について考えてみる。衝突後界面は分離しないから二つの物質の実験室系での粒子速度は等しい。圧力も等しい。一方初期状態の圧力は共に 0 であるが、粒子速度は target が 0、flyer が u_i である。したがって、flyer では $(u_i, 0)$ から (u_1, P_1) 、target では $(0, 0)$ から (u_1, P_1) のジャンプが起きたことになる。これを u - P 平面で表わすと Fig. 4 のようになる。 (u_1, P_1) は二つの曲線の共有点でなければならないから、二つの物質の u - P 関係がわかっていないれば、 u_i すなわち衝突速度を測定することによって、他のウ

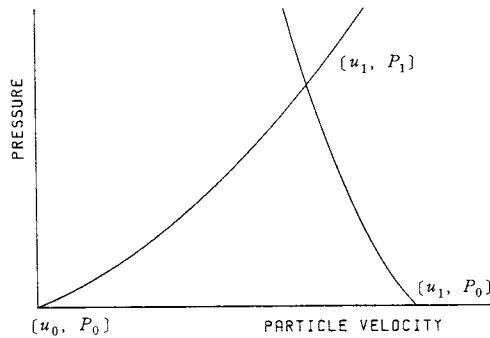


Fig. 4 Hugoniot curves of materials at impact are expressed on u - P plane. The curve of the flyer plate is inversely drawn on the basis of u_i , which is the initial particle velocity of the flyer plate in laboratory coordinate, that is, the impact velocity. (u_1, P_1) is the final shocked state.

ゴニオパラメータを求めることができるのである。この方法はインピーダンスマッチ法と呼ばれている。

以上のようにして求められた、ウゴニオ上の P 、 V 、 E から他の圧縮曲線を引き直したり、衝撃温度を求める熱力学的計算は以下のようにして行なう。衝撃圧縮は非可逆過程であるから、まず第一に、ウゴニオ上の P 、 V 、 T へ達する可逆的な道すじを考える必要がある。例えば Fig. 3 の矢印が示すような、 (V_0, P_0, T_0) から (V_H, P_S, T_S) への断熱圧縮と、 V_H 一定の下での (P_S, T_S) から (P_H, T_H) への過程の組み合わせである^{17,18)}。

最初の断熱圧縮過程についてのエネルギー保存則は、

$$E_1 = - \left(\int_{V_0}^{V_H} P dV \right)_{\text{断熱}} \quad (4)$$

で表わされ、この時の温度上昇は、

$$\frac{T_S}{T_0} = \exp \left(- \int_{V_0}^{V_H} \left(\frac{\gamma}{V} \right) dV \right) \quad (5)$$

で与えられる。 γ はグリューナイゼン定数である。

同様に第2の過程について考えると、

$$E_2 = \int_{T_S}^{T_H} C_V dT = \int_{P_S}^{P_H} \left(\frac{V}{\gamma} \right) dP \quad (6)$$

で表わされ、 E_1 と E_2 の和は、衝撃圧縮時のエネルギー変化、すなわち、(3)式のウゴニオエネルギーに等しい。

以上の関係から、 γ が既知であるとすれば、(6)式の後半を用いて P_S を計算することができる。

$$P_S = P_H - \left(\frac{\gamma}{V} \right) \left\{ \frac{P_H}{2} (V_0 - V_H) + \left(\int_{V_0}^{V_H} P dV \right)_{\text{断熱}} \right\} \quad (7)$$

ここで、 (γ/V) が一定であるという仮定が用いられている。 T_S は同じ仮定によって(5)式から求められるが、 T_H を求めるためにはさらに C_V について何らかの仮定をす

る必要がある。仮に C_V も一定であるとすれば、(6)式の前半を用いて、

$$T_H = T_S + \frac{1}{C_V} \left\{ \frac{P_H}{2} (V_0 - V_H) + \left(\int_{V_0}^{V_H} P dV \right)_{\text{断熱}} \right\} \quad (8)$$

のように求めることができる。

3. 衝撃誘起の発光現象

熱平衡にある物体の単位面積より出る熱放射の放射パワーはプランクの放射法則によって、

$$J_B d\lambda = \frac{2\pi h c^2}{\lambda^5} \left\{ \exp \left(\frac{hc}{kT\lambda} \right) - 1 \right\}^{-1} d\lambda \quad (9)$$

と表わされる。添字 B は黒体であることを示す。実際の物体からの放射は、これに放射率 $\epsilon(\lambda)$ をかけて、

$$J d\lambda = \epsilon(\lambda) J_B d\lambda \quad (10)$$

となる。衝撃圧縮を受けた物体がかなりの高温になると間違いない。したがって衝撃圧縮における発光現象として第一にこの熱放射を挙げることができる。しかし試料は元々透明であるので放射率は 0 に近い。にもかかわらず発光が起こるのは、衝撃圧縮によって放射率が増加するからである。

放射率は、反射を無視すれば吸収率に等しく、吸収係数を α 、物体の厚さを x とすると、

$$\epsilon(\lambda) = \{1 - \exp(-\alpha x)\} \quad (11)$$

で表わされる。一方衝撃圧縮を受けている領域は、Fig. 2 に示されているように時間 t に比例して増加しており、その厚さ x は $(U-x)t$ で与えられる。したがって、この領域の温度や吸収係数が一様であれば、放射の立ち上がりは厚さ x の増加に対応した形となり、このことを利用して吸収係数を見積もることも可能である¹⁹⁾。

吸収の機構について Kormer ら¹⁹⁾は、NaCl の実験結果について検討し、自由電子のバンド内遷移を挙げている。自由電子の供給源は、衝撃波の通過によって生成する多くの点欠陥、それに伴うドナーであるとしている。自由電子による吸収には大きな波長依存性がある。しかし実験によって求めた吸収係数には波長による差が見られない。この原因は測定の精度にあるとしているが、自由電子による吸収の他に、波長依存性の小さい別の機構による吸収が重なっていると考えることもできる。

衝撃圧縮によって物体が光学的に不均一になることは十分考えられる。そのような媒質を光が通過すると、物質固有の吸収が弱くても、散乱などによってその強度が減衰する(turbidity)。これは見かけ上吸収と同じであり、(11)式と同じ形になる。衝撃圧縮における不均一のスケールは、別の観点から 10 μm 前後と考えられており²⁰⁾、可視光の波長よりはるかに粗いスケールであるので、波長依存性はほとんどないものと考えられる。

熱放射以外の発光として有名なものに、石英や石英ガラスの発光がある²¹⁾。一つの特徴として、正方形試料の周辺部から始まる発光がある。これはtriboluminescenceとして知られている現象であり、希薄波の侵入に伴うクラックの発生に対応している。石英ガラスおよび石英のY, Z方向の衝撃圧縮にこうした発光が見られ、衝撃波面にはほとんど発光が見られない。しかしX方向の石英では、衝撃波面上にelectroluminescenceが観測されている。このような発光は比較的弱い衝撃圧縮において観測されている。

4. 光放射測定装置の概要

Fig.5とFig.6は、それぞれ、光放射測定装置の構成と測定のタイミングを示したものである¹¹⁾。flyerとtargetの衝突(impact)後、衝撃波はFig.2のように伝搬する。そして、delay plateに達した時にtriggerが発生し、sampleに達した時にsampleからの熱放射が立ち上がる。熱放射はFig.5に示したように、試料の背面より観測するので、圧縮される前の試料は透明でなければならない。

衝撃実験では、測定された量と衝撃波伝搬との時間的対応を明確にすることが重要である。熱放射の測定ではさらに分光スペクトルを測定することが望ましい。したがって、理想的にはスペクトル測定を10+1秒以下の時間分解能で繰り返し行なうことである。例えば、吸収スペクトルの時間分解測定がストリーカカメラを用いて行なわれている²²⁾。しかし、熱放射ではその光量が不十分であることもあり困難である。そこで時間分解測定とスペクトル測定を独立に行なうようにした。

集光系は共通とし、splitterによってそれぞれの測定

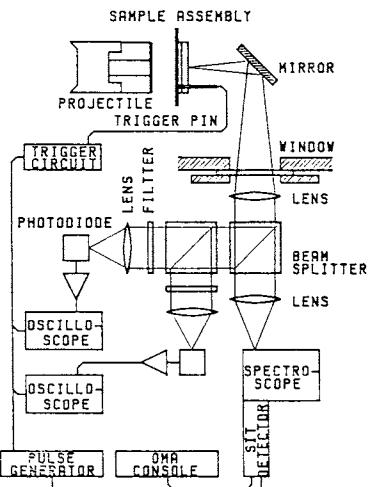


Fig. 5 Optical measurement system to observe light emission of a material at shock compression¹¹⁾.

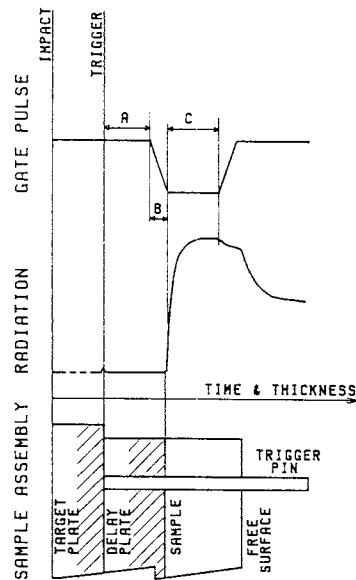


Fig. 6 Timing diagram of spectral measurement with accumulation. The period A, B, and C are the delay of pulse generator, the rising time of the pulse, and the accumulation duration, respectively.

系に光を分割する。時間分解測定系では、さらに二つに分割し、2波長帯の放射強度の時間変化をPIN photodiodeとoscilloscopeによって測定する。このユニットの数を多くすれば、スペクトル解析も可能であるが、用意できるオシロスコープの数には限りがある。6波長帯までの測定を行なった例はある¹⁰⁾。

スペクトル測定は、150本/mmの粗い回折格子を使った分光器とSIT管によって行なう。Fig.6のように、gate pulseによって衝撃圧縮中の放射のみを積算し測定する。積算時間はCで示されている。パルス発生器やゲーティング動作には時間的遅れが必要があるので、試料構成はFig.6のようにdelay plateを入れ、triggerを早めに起こす必要がある。

photodiodeはタングステン標準電球によって較正した。したがってこの測定値から輝度温度を見積もることができる。しかし、ゲーティング動作におけるSIT管およびSIT管へ至る光学系の複雑さを考えると分光測定系における分光強度の絶対値の信頼性は低いと考えなければならない。そこで、相対強度、すなわちスペクトルの形状による温度の推定を試みることにした。この場合にも回折格子などいくつかの光学要素の波長分散について補正をしなければならない。最も大きな補正を必要とするのはSIT管の分光感度であった。

衝撃温度の測定精度は発光と温度の対応をどこまで正確に評価できるかにかかっており、そのことが現段階で

の大きな課題である。単純に輝度を温度に対応させることができるとすれば、輝度温度の推定精度は数%程度であると考えている。

光測定を行なった衝撃装置は、Fig.1に示した二段式軽ガス銃、HB-3B²³⁾(HS-3^{24,25)}のマイナーチェンジ)である。HS-3-BにはX線ビームによる衝突速度測定装置が備えられている。ウゴニオパラメーターは、これを利用し、インピーダンスマッチ法によって求めた。flyerおよび、targetの材料は、それぞれタンクステンと銅である。

5. 石英ガラスの衝撃温度の測定

我々は前節で述べた装置によって、石英ガラスの衝撃温度の測定を試みた¹²⁾。結果について述べる前に、衝撃圧縮下の石英ガラスの特徴を挙げておくことにする。

衝撃圧縮においても弾性変形が最初に起り、ある圧力に達すると塑性変形が始まる。この時点での塑性変形の波は弾性波に比べかなり遅いので2波構造が現われる。弾性波の圧力の限界をHugoniot elastic limit(HEL)と呼ぶ。HELでは弾性波の速さも限界に達しているが、塑性波の速さは圧力とともに増加し、ついには弾性先行波の速さを越え、この時2波構造も消える。しかし相転移などがあれば、再び多重構造が出現することになる。

石英ガラスでは、約9GPa(HEL)まで弾性変形が起り、これを越えると永久密度增加が起こる²⁶⁾。これによる2波構造が消えるのは約20GPaである。しかし、弾性波自体に、石英ガラスの弾性定数が約2.5GPaまで減少する²⁷⁾という特徴を反映した、構造がある。つまり、圧力の低い波が速いことになり、衝撃波にならずに、傾斜波として先行する^{26,28)}。約9GPaの弾性衝撃波の速さが5.06km/s²⁶⁾であるのに対し、先行傾斜波の先端は、常圧での縦波音速、5.96km/s²⁷⁾にはほぼ等しい²⁸⁾。したがってこの構造が消えるのは、次にくる衝撃波速度が5.96km/s以上となる約39GPa以上である²⁹⁾。

永久密度增加はSiが4配位のままで高密度化する現象である^{30,31)}。回収実験によれば、HELから約30GPaまでの衝撃圧縮後の試料から、このような高密度ガラスが見い出されている³²⁾。しかし一方では16.6GPaの衝撃圧縮後、ステショバイトを回収したとする報告がある³³⁾。ステショバイトは6配位の高圧相であり、最終的には石英ガラスもこれに転移すると考えられる。したがって石英ガラスのウゴニオ^{29,34)}はステショバイトの一つの状態方程式として重要視されている。しかし、ウゴニオには相転移を示すようなものが見られないし、22GPa以上では衝撃波の詳しい構造が不明である。ステショバイトへ至る過程を解明する上で、単なるウゴニオ測定が一つ

の限界に達しているのであり、衝撃温度の測定は重要な情報をもたらすと期待できる。

しかし我々が測定した領域は、約32GPaから65GPaまでであり、上で述べた点について解明しようとすればもう少し圧力の低い領域からの測定が必要であったかもしれない。逆に考えれば、比較的問題点の少ない領域であるので、光測定による温度評価と、その有効性について議論するために絶好の領域である。

衝撃発光の機構を探る上で、分光スペクトルは欠かせない情報である^{35,36)}。Fig.7は40GPaの衝撃圧縮によって得られた発光スペクトルであり、分光放射率が一定の灰色体の熱放射であるとすると、衝撃温度3600Kが得られた¹¹⁾。このようにして求めた温度は、後で述べる輝度温度より多少高いが、スペクトルに目立った構造は見られない。700nm以上の領域での落ち込みは、使用した光検出器に難点があったものと思われる。

Kondoら³⁷⁾は同じ石英ガラスについて、我々の測定より低い圧力領域において同様の測定を行なっている。低圧領域での色温度と輝度温度の差は、40GPaの時よりもかなり大きい。この理由として、不均一な変形による局部的な高温部の存在を挙げている。またスペクトルには、500nm付近に線スペクトル状の構造が見られ、これが色温度をさらに高い値にしている。しかしこのような傾向は圧力が高くなるほど弱くなるようである。

以上のように高圧領域と低圧領域では発光機構が異なると考えてもよさそうである。その境界を示す実験事実として、約40GPaでの電気抵抗の不連続な減少¹⁸⁾を挙げることができる。NaClの場合のように、自由電子のバンド内遷移が吸収に寄与する¹⁹⁾としても、石英ガラスにおいてそれが支配的となるのは40GPa以上ということになる。低圧では、衝撃圧縮によるバンド構造の乱れ

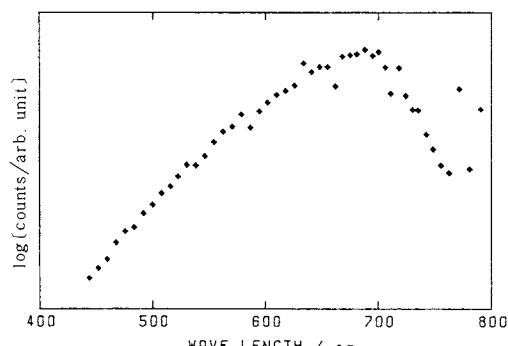


Fig. 7 Radiant spectrum of shock compressed fused silica at pressure of 40 GPa¹¹⁾. Each dot is an average of every 10 channels' data.

に乗じたバンド間遷移が起こるために、スペクトルに構造が現われ色温度を高くするのだと考えられる。

分光スペクトル測定のための積算時間中の放射強度は一定ではない。放射強度の時間変化の一例をFig.8に示す。圧力は41 GPa、中心波長および半値幅は、それぞれ620 nm, 10 nmである。衝撃圧縮部分の放射が均一であると考えると、放射強度の変化は、3節で述べたように、厚さの増加によるものであるから、スペクトルへの影響はない。また放射の立ち上がりは、厚さ x を $(U-u)t$ とした、(11)式で表わされるはずである。Fig.7にはそれを点線で示した。吸収係数 α の値として、39/cmを用いた。測定した圧力領域全般にわたって、同じような形状の時間変化が記録されている。ただし、吸収係数は圧力とともに増加するので、60 GPa以上での放射の立ち上がりはほとんど不連続に近くなっている。吸収係数の波長による差はほとんどなかった。

Fig.9は、放射強度より推定した衝撃温度をプロット

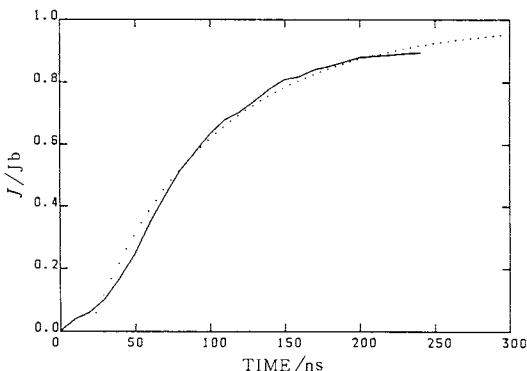


Fig. 8 Radiant profile of shock compressed fused silica at pressure of 41 GPa¹²⁾. Dotted profile is a result of fitting with respect to equation (11).

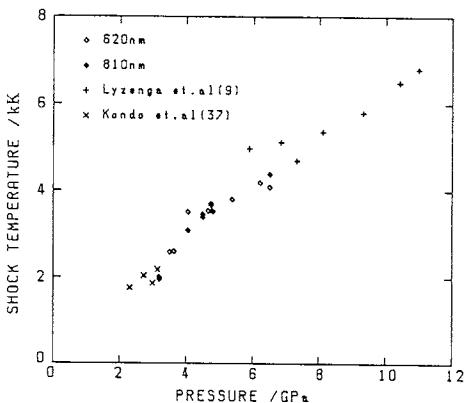


Fig. 9 Results of shock temperature measurements on fused silica.^{12, 9, 37)}

したものである。一部を除き、二つの波長帯の結果はほぼ一致した。32 GPa以下および60 GPa以上の領域には他の実験者による結果^{9, 37)}がある。それらとのつながりを見ると、高圧側ではあまり良くない。何らかの技術的问题が残されているのかもしれない。

我々の結果だけに注目すれば、40 GPa附近に折れ曲がりを見い出すことができる。40 GPa附近といえれば電気抵抗の異常も見い出されている¹⁸⁾ことからも、何らかの相転移が起きている可能性が強い。衝撃圧縮下の物質についての物性測定には制約があるので、相転移がどのようなものであるかを判定することは非常に難しい。しかし、常圧相からの相転移をすべて見落とすことなく確認できれば、回収実験や静的実験の結果を参考することによって推定が可能であるから、低圧から高圧までを密度高く連続的に測定することが重要である。

(11)式を用いた解析において、最も問題となったのは時間 t の0点の設定である。時間的関係についてはFig.6を見ていただきたい。実測のオシログラムにはtriggerの瞬間を示す雑音が出る。その瞬間から衝撃波がsampleに到着するまでの時間は、delay plateの厚さと衝撃波速度から求められる。Fig.8の0点はこうして決めてある。しかし、(11)式による計算をこの0点から行なうと、どうしても良い一致が得られない。放射の立ち上がりは(11)式のように単調ではなくし、Sの字形になっているのである。したがって(11)式の0点を10~20+1秒遅らせて考えねばならなかった。

41 GPaでの石英ガラスの衝撃波速度は、約6 km/sであり、先行傾斜波よりわずかに速い。したがって衝撃波は単純な構造となっているはずであり、時間的な遅れの原因は実験技術上の問題であると考えてきた。しかし本当の原因是、衝撃圧縮の機構そのものにあると考えることもできる。

すでに述べたように、衝撃圧縮では一般の圧縮より大きなエネルギーを必要とする。それに伴う温度上昇は、結果として起こるのであって、余分なエネルギーを必要とすることの原因ではない。この余分なエネルギーは、本来衝撃圧縮による変形には不可欠なものであり、原因是その変形の特殊性にある。

比較的圧力の低い衝撃圧縮において先行して現われる弾性波では、そのHELが物質によって異常に高くなるものがある³⁵⁾。それは鋭いピークを形成し、急速に緩和する。そしてその余分なエネルギーは不均一な変形によって熱となり、局部的に高温部分を生成すると考えられている²⁰⁾。この現象は、応力や粒子速度のゲージを試料内に埋め込むなどの測定法によって、応力や粒子速度の時間変化として捉えることができる。応力や粒子速度のビ

ークの幅は、ゲージの位置などによって異なるが、10~100ナノ秒程度であり、急速な緩和といつてもそれだけの時間がかかるのである。

一般の定常的な衝撃波には、オーバーシュートは見られないにしても、衝撃圧縮直後の(P_H , V_H)という状態が、複雑な歪の蓄積した準安定な状態と考えれば、上述の弾性波に見られるような緩和過程を考えられる。温度上昇は不均一な歪エネルギーが緩和し、静水圧的圧縮状態に至る過程において起こるので、時間的に遅れることになり、衝撃圧縮の深さ方向の温度分布が生じる。Sの字形の立ち上がりは、衝撃波面に近いほど温度が低いという分布に対応するのであり、上述のモデルを支持している。

衝撃温度の測定は、したがって衝撃波面より少し深い部分を観測しなければならない。そこには当然温度分布の影響が表われるので、衝撃温度の評価について再検討する必要があるかもしれない。内部からの発光が低温部分で吸収されるならば、観測される放射強度は低下してしまう。しかし、吸収は機械的変形よりもむしろ温度の上昇と密接な関係があるので、温度分布の測定温度への影響はそれ程大きくないと考えている。

6. ま と め

石英ガラスを例に挙げ、衝撃温度の測定について述べたが、衝撃温度測定における事情はそれぞれの物質によって異なっているものと考えられるので、一つ一つの物質について十分に検討することが必要である。一般的な問題点としては、衝撃圧縮の不均一性によって生じる温度分布が挙げられる。これには次の二つの形がある。

一つは衝撃圧縮の深さ方向の分布であり、いわば衝撃波面の厚さの問題である。温度に注目すると、おそらく機械的衝撃波面よりも厚いものになる。そしてその部分の温度は内部より低い。しかしこのことの温度測定への直接的影響は小さいと考えられ、むしろ光測定が、温度評価だけではなく衝撃圧縮の機構の解明の手掛りになることを示したと言える。

もう一つは局部的な高温部の存在である。色温度と輝度温度の大きな差の原因がここにあるとすれば、少なくとも石英ガラスについては高圧になるほど分布が弱くなっていると言うことはできる。

ほかにも物質特有の問題点が出てくる可能性はある。しかし、従来のウゴニオ測定が見落としていた事実を、温度の測定によって見い出すことは十分ありうるのであるから、温度測定は粒子速度や衝撃波速度の測定と同様に、衝撃波実験における重要な要素であることは疑いない。

この文章を書くにあたって、また基本となった東京工業大学における実験に関して、同大学の近藤建一助教授より多大な御助力を賜わりました。ここに心より感謝の意を表します。

文 献

- 1) 近藤建一, 固体物理, **19**, 127 (1984).
- 2) D. L. Decker, *J. Appl. Phys.* **36**, 157 (1965).
- 3) D. L. Decker, *J. Appl. Phys.* **37**, 5012 (1966).
- 4) D. L. Decker, *J. Appl. Phys.* **42**, 3239 (1971).
- 5) H. K. Mao, P. M. Bell, J. W. Shaner and D. J. Steinberg, *J. Appl. Phys.* **49**, 3276 (1978).
- 6) J. W. Taylar, *J. Appl. Phys.* **34**, 2727 (1963).
- 7) S. A. Raikes and T. J. Ahrens, *Geophys. J. R. astr. Soc.* **58**, 717 (1979).
- 8) S. B. Komer, M. V. Sinitsyn, G. A. Kirillov and V. D. Urlin, *Soviet Phys. JETP* **21**, 689 (1965).
- 9) G. A. Lyzenga, T. J. Ahrens and A. C. Mitchel, *J. Geophys. Res.* **88**, B3, 2431 (1983).
- 10) G. A. Lyzenga and T. J. Ahrens, *Rev. Sci. Instrum.* **50**, 1421 (1979).
- 11) H. Sugiura, K. Kondo and A. Sawaoka, *Rev. Sci. Instrum.* **51**, 750 (1980).
- 12) H. Sugiura, K. Kondo and A. Sawaoka, *J. Appl. Phys.* **53**, 4512 (1982).
- 13) R. Fowles and R. F. Williams, *J. Appl. Phys.* **41**, 360 (1970).
- 14) W. J. Murri, D. R. Curran, C. F. Petersen and R. C. Crewdson, "Advances in High-Pressure Research Vol. 4", Edited by R. H. Wentorf, Jr., Academic Press, London and New York (1974), pp. 1-164.
- 15) 澤岡 昭, 近藤建一, 藤原修三, 日下部正夫, "化学総説No.22 超高圧と化学"(日本化学会編), p.31, 学会出版センター, 東京(1979).
- 16) 庄野安彦, "地球科学2 地球の物質科学I"(秋本俊一, 水谷 仁編), p.245, 岩波書店, 東京(1978).
- 17) R. W. Goranson, D. Bancroft, B. L. Burton, T. Blechar, E. E. Houston, E. F. Gittings and S. A. Landeen, *J. Appl. Phys.* **26**, 1472 (1955).
- 18) K. Kondo, A. Sawaoka and T. J. Ahrens, *J. Appl. Phys.* **52**, 5084 (1981).
- 19) S. B. Komer, M. V. Sinitsyn, G. A. Kirillov and L. T. Popova, *Soviet Phys. JETP* **22**, 97 (1966).
- 20) D. E. Grady, *J. Geophys. Res.* **85**, 913 (1980).
- 21) W. P. Brooks, *J. Appl. Phys.* **36**, 2788 (1965).
- 22) E. S. Gaffney and T. J. Ahrens, *J. Geophys. Res.* **78**, 5942 (1973).
- 23) H. Sugiura, T. Mashimo, K. Kondo and A. Sawaoka, *Report Res. Lab. Engineering Materials No. 6*, 93 (1981).

- 24) 真下 茂, 澤岡 昭, 圧力技術, **18**, 232(1980).
 25) T. Mashimo and A. Sawaoka, *Jpn. J. Appl. Phys.* **20**, 963 (1981).
 26) H. Sugiura, K. Kondo and A. Sawaoka, *J. Appl. Phys.* **52**, 3375 (1981).
 27) K. Kondo, S. Iio and A. Sawaoka, *J. Appl. Phys.* **52**, 2826 (1981).
 28) L. M. Barker and R. E. Hollenbach, *J. Appl. Phys.* **41**, 4208 (1970).
 29) J. Wackerle, *J. Appl. Phys.* **33**, 922 (1962).
 30) J. D. Mackenzie, *J. Am. Ceram. Soc.* **46**, 461 (1963).
 31) J. Arndt and D. Stoffler, *Phys. Chem. Glasses* **10**, 117 (1969).
 32) R. V. Gibbons and T. J. Ahrens, *J. Geophys. Res.* **76**, 5489 (1971).
 33) J. D. Kleeman and T. J. Ahrens, *J. Geophys. Res.* **78**, 5954 (1973).
 34) R. G. McQueen, J. N. Fritz and J. W. Hopson (unpublished).
 35) M. Hasegawa, K. Kondo and A. Sawaoka, *Jpn. J. Appl. Phys.* **23**, 20 (1984).
 36) K. Kondo and T. J. Ahrens, *Phys. Chem. Minerals* **9**, 173 (1983).
 37) K. Kondo, T. J. Ahrens and A. Sawaoka, *J. Appl. Phys.* **54**, 4382 (1983).
 38) J. R. Asay, G. R. Fowles and Y. Gupta, *J. Appl. Phys.* **43**, 744 (1972).

〈書評〉

「生化熱力学の基礎—平衡状態での解析」

J. T. エドサル・H. グットフロイント著,
高橋克忠・深田はるみ訳, ワイリー・ジャパン社,
1984, 本文 270 ページ, 3,600 円

本書の原著「Biothermodynamics/The study of biochemical processes at equilibrium J. T. Edsall & H. Guttfreund, John Wiley & Sons, 1983」は, 1983年4月に出版されたが, その夏に原著とめぐりあった訳者によって, 一年後には日本語版となった。訳者の集中的な努力に敬意を表するとともに, “もっとも適切な立場にある人によって書かれたもの”(訳者序文)が, もっとも適切な人たちによって翻訳されたことを祝福したい。

本書は全6章と付録・文献・索引から構成され, 各章と付録のテーマは次のようにになっている。

1. 生化熱力学の歴史的あゆみ
2. 基本的概念: 現象論
3. 基本的概念: 数学的解析
4. 化学反応における化学平衡と Gibbs エネルギー変化
5. リガンド結合平衡
6. カロリメトリー, 熱容量と相転移

付録: データ処理の手引

このように, これまでの生物物理化学の多くの解説書

とは異なり, カロリメトリーの章(23ページ)が設けられ, 豊富な事例が手ぎわよくとりあげられている。ここに, 生化学系を対象とした熱測定研究の重要性に対する認識が, 今後ますます深められるであろうという原著者の立場が反映されている。また, 第1章は, 非生体系を研究対象とする人たちにも, 热力学と生物科学の歴史的なかかわりあいの深さを示す読物としても興味深いのではなかろうか。さらに, 各章でも1970年以降の新しいデータが数多くとりあげられており, 専門研究者の情報源としても有用である。

原著はとても読みやすい英文で書かれているが, 本書も, 外国語→日本語への変換につきまとう訳文特有の生硬さがほとんど気にならず(専門用語以外の訳語にいさか不適当と思われるものも散見するが), 出色の訳本である。

原著を出版直後に入手して, その斬新な構成・内容に魅了されていた評者は, 若い人たちの輪講のテキストとして最適と考えているが, この本ができるだけ多くの人たちに読まれ, 着実な基礎と実際的センスのバランスのとれた学問のすすめ方を読みとてほしいと願うものである。また, 原著にもぜひ一度目を通して, 日本語版と比較されれば, 英語で論文を書くときにしばしば必要となる物理化学的表現を学ぶ上にもきわめて有益であると思う。

(岡山大・歯 児玉孝雄)