



## 講座 レーザー生成プラズマの新しい温度、密度領域における物性とシミュレーション

# 2. レーザープラズマ相互作用における状態方程式

## 2. Equation of State for Laser-Matter Interaction

MORE Richard

Lawrence Berkeley National Laboratory

(原稿受付：2013年4月25日)

本章では、高強度レーザーで照射された固体媒質の爆発的な膨張過程を記述する、状態方程式 (Equation of State: EOS) について、その研究の歴史や現状、今後の課題について述べる。状態方程式は、物質がどのように加熱され、蒸発、電離するか、熱エネルギーがどのようにプラズマの膨張の運動エネルギーに変換されるかを、シミュレーションで予測するために欠かせない情報である。

### Keywords:

equation of state, dense plasma, laser plasma, ablation, evaporation

### 2.1 はじめに

この講座では、レーザープラズマ相互作用における状態方程式 (Equation of State: EOS) とは何か？何のために用いられるか？ここでいう状態方程式が、大学で学ぶ、以下の簡単な理想気体の状態方程式、

$$pV = Nk_B T, \quad (1a)$$

$$E = \frac{3}{2} Nk_B T, \quad (1b)$$

とどのように違うかや、理想気体の状態方程式(1)の起源、およびその限界について考える。ここで、 $p$  は気体の圧力、 $V$  は気体が入っている容器の体積、 $N$  は容器の中の気体分子の数、 $E$  は気体分子の運動エネルギー、 $k_B$  はボルツマン定数、 $T$  は温度である。

#### 2.1.1 高温の空気

1804年にナポレオン・ボナパルトは、パリの新しい科学技術の高等教育機関を軍の支配下に置き、その名称をエコール・ポリテクニークに変えた。ナポレオンがこの新しい学校の教授の幾人かに「熱気球でどれだけの重量のものを浮揚できるか？熱気球で大砲を運搬できるか？」と質問したとしても、自然なことだろう。

当時モンゴルフィエ兄弟によって新しく開発された熱気球は、人を乗せて浮揚し、戦場の偵察をするために使われていた。もし熱気球で大砲を浮揚させることができ、高速で移動できれば、フランス軍に対して、計りしれない利点があったと考えられる。ナポレオンが本当にそのような質問をしたかどうかは定かでないし、もししていたとしても内容は秘密 ("secret d'Etat") として扱われたかもしれない。しかし真実はどうであれ、エコール・ポリテクニークの教授や学生達の研究によって、高温の気体の科学は、フランスで急速に発展した。

熱力学は、あらゆる物質に対して当てはまる熱エネルギーの一般的な物理学である。式(1)に示す気体の法則、状態方程式は、空気の特性を記述する。ジョセフ・ゲイ・リュサックによりはじめて式(1)が発表され、ついでラザール・カルノーと、ニコラ・レオナル・サディ・カルノーの親子によって熱力学という学問が発展した。これら3人はエコール・ポリテクニークの教授や学生であった。

(1)式によれば、空気の密度は  $N/V = p/k_B T$  のように温度に反比例する。熱気球の中の空気は外界に対して開放されているから、内部の圧力は大気圧とほぼ等しい。しかし、内部の気体の温度が高ければその密度は小さくなり、周囲の気体より軽くなるので気球は浮揚することができる[1]。熱気球の大きさには限界があり、中の気体の温度にも実用的な限界がある。いずれにしても、ナポレオンの質問に答えるためには、高温の空気の状態方程式の情報が必要であった。

#### 2.1.2 高温の蒸気

蒸気タービンは大型の機械で、発電用に用いられている。蒸気タービンを設計する技術者は、式(1)のそれとは大きく異なっている、水と蒸気の状態方程式を知っている必要がある。冷媒蒸気表 (steam table) と呼ばれて出版されている表があり、その中には、液体から蒸気へ相転移する状況も含め、1600Kまでの温度範囲において、実測された水の状態方程式のデータが記載されている[2]。

大型の蒸気タービンでは、再生 (regenerative)、再熱 (reheating) と呼ばれる方式が用いられている。再生とは、タービンを駆動し、膨張、冷却された蒸気のエネルギーを、水の加熱、蒸発に使うエネルギーの一部として使う方式を指し、再熱とは蒸気を再加熱することで、タービン翼ができるだけ乾燥した状態を保ちながら、蒸気から効率的にエネルギーを取り出す方法を指す。その技術が重要な理由

Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley CA94720-8201, USA

は、水滴がタービン翼に付着すると損傷を引き起こすからである。発電のコストにおいては、1%の向上でも大きな経済的な効果があるから、これらの技術は検討するに値し、蒸気の状態方程式を知って活用することは重要である。

## 2.2 レーザーで加熱された物質に対する現代の状態方程式

現代の科学技術においても物質の状態方程式の情報は必要である。例えば、レーザーによる切断、穴あけ加工において、2つのレーザーパルスで短い時間間隔をおいて照射すると最もよい結果が得られることが知られている(図1)[3]。例えば加工する物質を、銅からタングステンへと変えたような場合に、最もよい結果を得るためには、レーザーのパルスエネルギーと時間間隔を変える必要があるだろう。切断、穴あけの品質と速度を向上させるために、実験的には、試行錯誤が行われるが、高温の金属および金属蒸気の状態方程式があれば、コンピュータシミュレーションによる最適化もできるようになる。試行錯誤的な実験を主とする研究開発でも、コンピュータシミュレーションは、実験結果の正しさを確認したり、どのようなレーザーを購入するかを決めるために役立てられている。

日本原子力研究開発機構では、主に銅を対象として、レーザー光の吸収、溶融、蒸発過程を考慮して、レーザー切断、溶接の数値モデリングを行っている。このようなシミュレーションの結果は、原子炉容器や冷却管などに用いられる材料の高温での熱物性値(状態方程式、熱伝導率、表面張力、溶融の潜熱)の値に依存する[4-7]。

また、次世代の半導体リソグラフィ技術の開発のために行われた、レーザー生成プラズマを用いた極端紫外(EUV)光源の研究開発[8]の中で、パンチアウトターゲットという、プリパルスレーザー照射に伴って発生する衝撃波でSnの薄膜を破碎して発生した蒸気、あるいは微粒子をメインパルスレーザーで加熱する方法が見出された(図2)[9]。Snの状態方程式は、蒸気の温度、密度をコンピュータシミュレーションで評価するためにも重要である。

2009年から2012年にかけて、米国ローレンスリバモア研究所で行われた、核融合点火実証キャンペーン(National

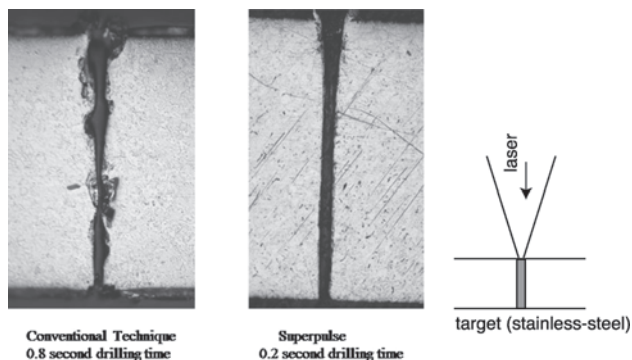


図1 レーザーによる穴あけ加工によるダブルパルス照射の利点。厚さが0.1 cmのステンレス鋼の板に、直径約40  $\mu\text{m}$ の穴あけを行なった例を示す。左図は、800個のナノ秒パルス照射による結果、右図は200個のダブルパルス照射による結果を示す。

Ignition Campaign) では、NIF レーザーを用いた慣性核融合の実験において、いまだに期待された点火が実現されていない。この原因はまだ明らかではないが、核融合ターゲット物質中の状態方程式の不確定性もその理由の一つではないかといわれている[10]。もし実験条件の設計において用いられた状態方程式が十分正確でなければ、レーザー爆縮されたプラズマが、DT 燃料の点火に必要な温度、密度に至らない可能性がある。

その他の状態方程式データが重要な役割を果たす応用分野として、実験室における衝撃波実験、燃焼実験、磁場閉じ込め核融合におけるペレット入射[11, 12]、X線レーザー等が挙げられる。図3は、核融合科学研究所の大型ヘリカル装置(LHD)の実験において撮影された、燃料ペレット入射の瞬間を捉えたスナップショットである。入射後時間が経過してプラズマが膨張する過程は、装置の中の磁場強度分布によって決まるが、初期のペレットのアブレーションの過程は、高密度の固体物質が蒸発する過程で

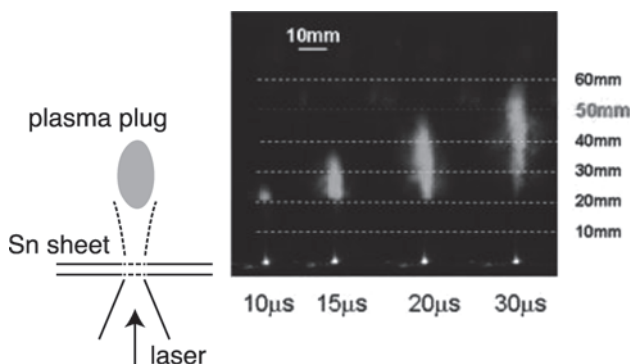


図2 レーザー光を照射し、Sn 薄膜をパンチアウトして生じたプラズマの雲の挙動。レーザー光は下から照射され、プラズマ雲が上向きに伝播する。第2パルスレーザーで加熱する際のプラズマを示す。プラズマのダイナミクス(速度、大きさ、密度)は、レーザーパルスの条件とSnの状態方程式から決まる。

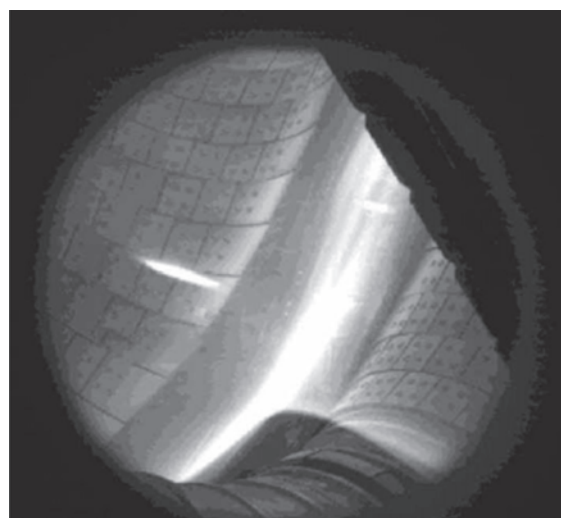


図3 核融合科学研究所の大型ヘリカル装置(LHD)に高速で入射されるペレットの様子。ペレットには燃料( $\text{H}_2$ )や、トレーザー用の不純物が含まれる。入射初期のペレットの挙動は、高温プラズマ環境における、ペレット物質の状態方程式に敏感である。背後の曲線状に発光している部分はLHDの内壁である。

あり、明らかに状態方程式に敏感である。すでに、アブレションの過程の詳細な計測が行われている。

これとは別に、パルスパワー放電を用いて、キャピラリーや水中に閉じ込められた高温、高密度プラズマを生成する実験が行われている。これらの実験のモデリングは、状態方程式と放電媒質の電気伝導度のモデルとを組み合わせで行われている[13, 14]。現在実験の解析は、既存の状態方程式データを用いて行われているが、実験の結果はデータの精度、信頼性の向上に役立つとも考えられる。

恒星や惑星の内部構造を理解するために、これらの星の内部に存在する物質、H, H<sup>-</sup>, He の混合物や, Fe, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> などの状態方程式が必要である。このため、レーザープラズマを使った状態方程式の実験は、Takabe らが実験室天文学と呼ぶ新しい研究分野の基本的な部分になっている[15]。

## 2.3 レーザープラズマ相互作用実験における状態方程式の役割

### 2.3.1 物質がどれだけ高温になるかを知る

典型的なレーザープラズマ相互作用実験で、初期にレーザーのエネルギーはターゲット表面の表皮厚さ ( $10^{-6}$  cm) 程度の領域に吸収される。このエネルギー、すなわち、 $E_{\text{dep}} = \text{レーザーのエネルギー} / \text{加熱される物質の質量}$ 、によってターゲットの温度が上昇する。その大きさは比熱により、

$$kT \sim E_{\text{dep}} / C_v, \quad (2)$$

と表される。定積比熱  $C_v$  は、状態方程式の重要な要素であるが、与えられたレーザーエネルギーで到達しうる最高の温度を決定する。高温プラズマは、温度に応じて光、紫外線、時にはX線さえも放射して、自身で膨張、冷却する。これらのことから、比熱の値は、短パルスレーザー励起によるX線源やEUV光源などの応用のために重要である。

### 2.3.2 物質がどれだけ高速で運動するかを知る

レーザーで加熱された媒質は高い圧力を発生するので、すみやかに膨張する。プラズマの膨張速度は、媒質の種類で決まる音速の数倍程度である。音速は、物質の状態方程式より、

$$C_s^2 = (dp/d\rho)_s, \quad (3)$$

と表される。この式で、音速は、その二乗が、エントロピー  $S$  を一定とした場合の圧力の密度に対する微分で表されている。

### 2.3.3 物質がどれだけ温度、密度状態になりうるかを知る

現在のレーザープラズマ相互作用実験では、様々な照射配置を用いることで予め設定した流体運動を実現できるようになっている。慣性核融合を実現する目的では、水素燃料を高密度に爆縮する実験が行われている。衝撃波実験では、衝撃波の速度を測定することによって、比較的容易に物性の詳細な情報が得られる。他のガスパフやプラズマブルームにおいて、密度が既知のプラズマを作る実験が行われている。これらのプラズマは光源としても用いられる。

ガスパフから生成するプラズマの密度、温度は照射レーザーのエネルギーやパルス幅によって決まるが、詳細な条件は高温物質の状態方程式に強く依存する。

## 2.4 高温物質の状態方程式

化学燃焼の火炎の温度は最高で 2000–3000 K であるのに対して、レーザー照射プラズマはより高い温度に加熱され得る。このような高い温度を測る時は、電子ボルト (1 eV = 11605 K) の単位を用いるのが便利である。

1 eV 以上の温度では、いかなる物質も溶融するため、物質の強度や結晶構造は意味をもたないし、ほぼすべての物質は蒸発するので、表面張力も働かないと考えられる。ほとんどの分子は解離する。

もっとも重要な効果は電離であり、自由電子と正電荷からなる高密度プラズマが生成する。プラズマが加熱されると電子温度が上がるが、電離度も高くなる。ある電子温度  $k_B T$  において、プラズマの電離を一歩進めるためには、通常  $k_B T$  よりも十分大きいエネルギーが必要であり、電離状態は自ずと決まる値となる。

一般に、電子温度が  $5Z^2$  eV 以上になるとプラズマは完全電離状態 ( $Z^* = Z$ ) になる。

### 電離状態の評価のための近似式

温度  $T$  では、原子は、軌道電子が次々とはぎ取られて、価数  $Z^*$  のイオンのイオン化ポテンシャル  $I(Z, Z^*)$  が  $k_B T$  の数倍であるような状態まで電離する。

$$I(Z, Z^*) \cong 13.6 Z^{*2} / n^2 \text{ eV}, \quad (4)$$

$$p \cong (Z^* + 1) kT / V_a,$$

$$E_{\text{atom}} \cong 1.5 (Z^* + 1) kT + E_i(Z^*). \quad (5)$$

式中で、 $Z^*$  は原子 1 個あたりの自由電子の数、あるいは電離度を、 $Z$  は原子番号、 $n$  は最外殻電子の主量子数を示す。圧力、エネルギーの式中で、 $Z^*$  に比例する項は自由電子の運動の寄与を、 $+1$  の項はイオンの運動の寄与を示す。 $E_i(Z^*)$  は、原子を  $Z^*$  価まで電離するために必要なエネルギーであり、エネルギーの中で最も大きく寄与する。イオン化ポテンシャルは、

$$I(Z, Z^*) = \Delta E_i / \Delta Z^*$$

のように表され、(4)式は近似式である。

### 2.4.1 より正確な電離状態の評価

QMD (Quantum Molecular Dynamics: 量子分子動力学法) は、高密度プラズマ中での原子構造と状態方程式を計算するために非常に役立つ現代的な手法である[16]。QMD は粒子シミュレーションのひとつで、シミュレーションボックスの中に多数の原子を有し、原子に対して現実的な境界条件で計算を行うが、非常に長い計算時間を必要とする。高速の計算機を持つ専門の研究者が使用すると、固体物理および衝撃波の実験データにより検証されているように、高温プラズマの状態方程式その他の特性を高

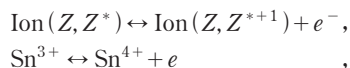


精度で求めることができる。

1949年に、Feynman, Metropolis, Teller[17]らは、次のようにトーマスフェルミ電子ガス理論を、高温プラズマ中の原子の電離の記述に適用する方法を考案した。原子は密度で決まる半径の球状のセルに閉じ込められているとし、静電エネルギーは自己無撞着場の方法で決まるとした。この方法は単純だが、より正確な方法で求めた値と誤差が10–15%以下で一致するため、現在も有用と考えられている。しかし、現在の研究者はより正確な方法について検討している。

さらに新しい量子セル法では、球状セルに入っている一つの原子を考える (Liberman[18,19], Faussurier および Blancard[20,21], Blenski[22]らを参照)。セルの大きさは、この方法でも原子の密度から決定される。電子状態は自己無撞着ポテンシャル下での、シュレディンガー方程式またはディラック方程式を解いて求める。ポテンシャルは、有限温度フェルミ統計を使って求めた電子状態への分布より、電子の電荷密度を求めて計算する。この理論の原子に関する部分は相対論的量子力学を用いているが、球状セルの境界条件の決め方に不確定性があるため現在も研究が続けられており、その問題点がChihara[23,24], More[25], Blenski[22]らによって議論されている。このセルモデルは、基本的に1電子の量子力学であるため、エネルギー準位の微細構造は考慮されない。

これらとは別の方法に、もともと宇宙物理で用いられたサハ方程式を用いる方法がある。この方程式では、実測された原子の各電離状態 (例えば  $\text{Sn}^0$ ,  $\text{Sn}^{1+}$ ,  $\text{Sn}^{2+}$  など) の原子データに基づき、例えば、



のように、電離過程を化学反応のように考える。サハ方程式を用いると、原理的には、正確な原子データによって電離度が正確に評価できると考えられるが、励起状態については十分な情報が得られないのが普通であり、特に複雑な多電子原子についてはその傾向が強い。また、近傍に存在する原子との相互作用は、密度効果と呼ばれるが、一般に近似的に取り扱われる。

#### 2.4.2 密度効果 (強結合、フェルミ・ディラック統計、圧力電離)

プラズマ中の局所的なイオンの配置を考えた密度効果についての研究は、Brush-Sahlin-Tellerによって始められ、Hansen[26], Dewitt, Ichimaru[27,28]らによって1成分プラズマ (OCP) の理論にまとめられている。この理論は、上述の球状セルモデルが正当であることを示すとともに、モデルをより現実的なものとするための試みに対して重要な役割を果たしている。

自由電子のフェルミ統計は、固体物理ではよく知られている[29]。フェルミ統計は、通常の固体密度では、温度が10 eV 程度のフェルミエネルギーまでの状態方程式等の金属の物性に、大きな影響を与える。

圧力電離は、固体においてよく知られている現象である

[29,30]。孤立原子は、低密度、低温では、通常中性であるが、固体中では、外殻電子を伝導帯に放出し、正イオンになり得る。共通の伝導帯へ励起される電子は、通常フェルミ統計に従う。通常の固体密度よりもずっと密度が高くなると、より多くの電子が伝導帯に励起されて、実効的なイオンの価数も大きくなる。

#### 2.5 固体の温度 1 eV への加熱

温度が1000 Kまでの固体の熱的な特性は、前世紀の初頭に既に調べられており、興味ある5つの近似的な法則が求められていた。

その第1は、融点が音速の二乗に比例する法則、

$$T_m \sim AM_p C_s^2, \quad (6)$$

である。ここで  $AM_p$  は原子量、 $C_s$  は音速である。このような関係が生じる理由は、分子の化学結合が強く、物質が硬ければ、そのような固体中では音速が速く、同時に溶融も起こりにくいことにある。(図4a)に示す、いろいろな物質における音速と融点の関係からわかるように、式(6)は近似的な関係である。図では、融点の温度は、原子一個あたりの erg ( $=10^{-7}$  J) で表したエネルギーを、gram で表した原子質量で割ったものになっている。音速は縦波と横波で異なり、また結晶の方向によっても異なるので、式(6)は非常に正確ではないが、それでもなお凝縮系における機械的特性と熱的特性の一般的な関係を記述している。

第2の法則は沸点の温度は融点の温度の通常1.7倍ということである。この関係の精度の限界も(図4b)に示されている。

第3の法則は、溶融における一原子あたり eV で表した潜熱は、eV で表した融点の温度に等しく、沸騰の潜熱は沸点の温度の10倍ということである。この比率はすべての物質でほぼ同じである。その理由は、溶融や沸騰の際のエントロピーの変化は、固相あるいは液相における典型的な原子の配置の変化によっているからである。この点では、固体の結晶構造の違いや、液体の構造の違いはあまり大きな違いを生じない。

第4の法則は、温度を eV で表し、一原子あたり (eV/atom) の単位で表した時の、固体の定積比熱は、ほとんどの物質でおよそ3ということである(図4d)。この法則は、デュロン・プティの法則として知られ、3という値は、固体を構成する原子が平衡位置からずれて小さく振動した時の、運動エネルギーとポテンシャルエネルギーの寄与がほぼ等しいことによる。この法則は温度が室温程度 (0.025 eV) において成り立つ。より低温では、Einstein と Debye によって最初に示されたように、量子効果によって比熱は減少する。原子番号の小さい物質では、室温でも量子効果が現れる(図4d)。このことは、原子一個あたりの比熱が、

$$\delta E_{\text{thermal}} \sim 3k_B T/\text{atom}, \quad (7)$$

であることを意味する。この値は式(1b)に表した理想気体における値の2倍であり、その違いは液体や固体中の原

子は、振動に伴うポテンシャルエネルギーと運動エネルギーの両方をもつことによる。

最後の第5の法則は、高温の固体の圧力に対するもの、

$$p(\rho, T) = p_0(\rho) + \gamma \rho \delta E_{\text{thermal}}, \quad (8)$$

でグリュナイゼンの法則と呼ばれる。 $\gamma$ はグリュナイゼン定数と呼ばれ（図4e）を参照，その値は1～3である。式（8）において，第1項， $p_0(\rho)$ は冷たい圧縮圧力で，固体の中の原子の間に働く反発力に起因し，固体の圧縮率から決まる。第2項は高温固体に起こる追加の圧力で，高温の物質中の音波に伴う気体の圧力と考えることができる。

これらの法則が成り立つことは，およそ1000 Kまでの温度の領域では，実験によって確認されている[29, 30]。これ以上の圧力では，実験データは完全とはいえず，更なる研究が必要である。そして，実際に応用に用いる状態方程式データは，これらの知られている法則と整合性をもつことが必要である。

現代の実験的な研究は，2つの方向で行われている。その一つはダイヤモンドアンビルセルでの圧縮とレーザーでの加熱を組み合わせた，固体-固体相転移の研究であり，もう一つは衝撃波実験で，圧縮・加熱された媒質中の，衝撃

波の伝播速度や物質のエネルギー密度を測定する研究である[31]。ただし，この短い講座の中ではこれらの広い実験研究を紹介することはできない。

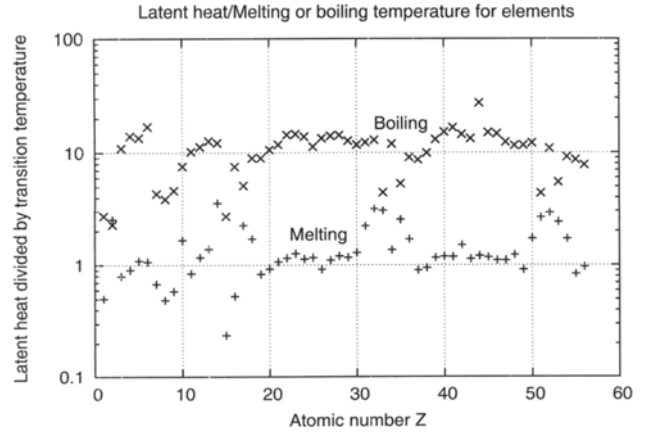


図4c 潜熱と転移温度の関係の原子番号に対する依存性。一原子あたりの溶融の潜熱は，融点の温度とほぼ等しく，蒸発の潜熱は沸点の温度のおよそ10倍であることを示す。

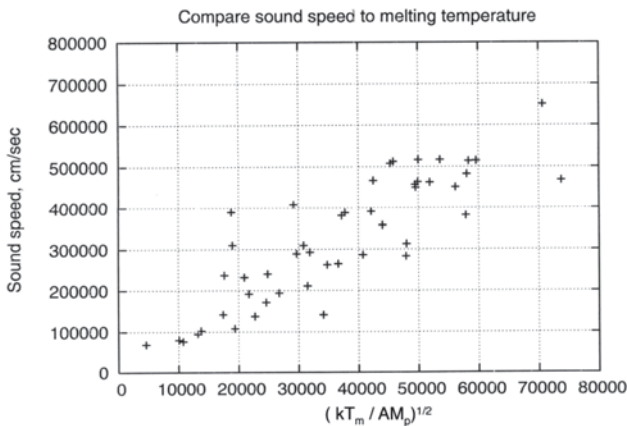


図4a 固体の音速  $c_s$  [cm/s]と融点の関係。図横軸で融点を  $(kT_m/AM_p)^{1/2}$  の形で示す。ただし  $T_m$  は融点， $AM_p$  は原子量である。図は，力学的な量である音速  $c_s$  と熱的な特性の関係を示す。多くの場合，音速は結晶構造に依存し，伝播方向によって異なるので，関係は近似的なものである。

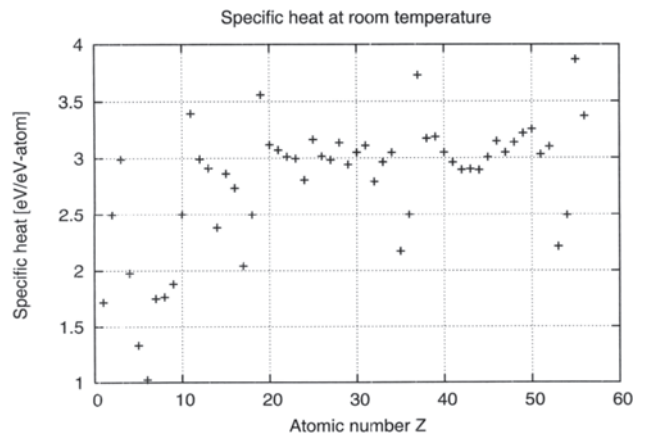


図4d 原子の比熱が一原子あたりおよそ3 eVとするデュロン・プティの法則に従うことを示す結果。この傾向は，Debye温度以上，室温程度では多くの物質に当てはまる。高温では，イオン化が起こると比熱は顕著に大きくなる一方，完全電離した低原子番号原子では小さくなる傾向を示す。

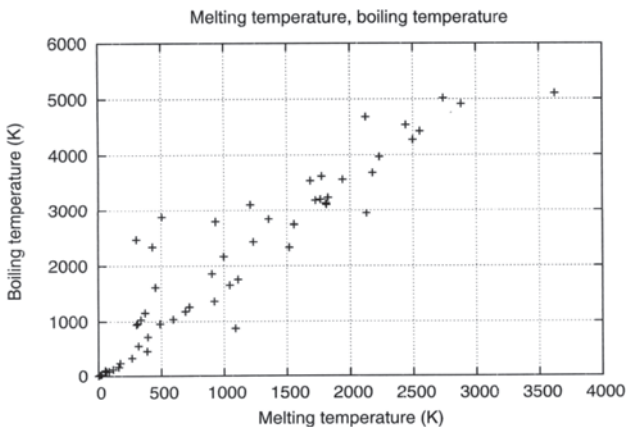


図4b 融点と沸点の比例関係。

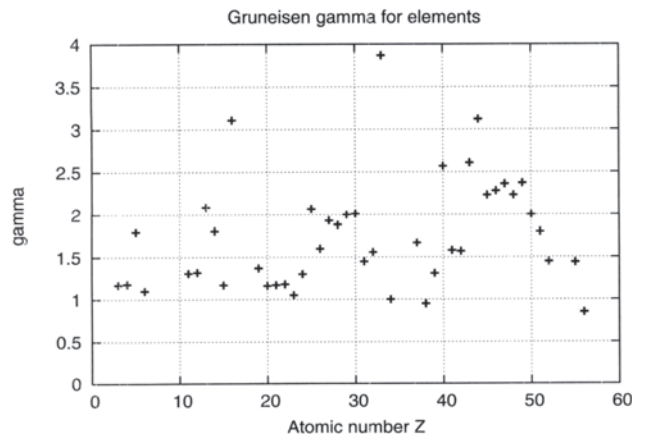


図4e 高温固体のグリュナイゼン  $\gamma$  定数（式8）。

## 2.6 溶融、蒸発および臨界点

状態方程式は1000 Kから10 eV, すなわち100,000 Kまでの温度範囲で用いられるので, 溶融や液体-気体相転移を取り入れることは重要である。もしこの温度領域での物性定数が正確に知られていない場合は, 状態方程式は理論的に求めるか, よりよく理解されていると考えられている物質のデータからのスケールリングで求めなければならない。

これらの領域では, いかなる方法を用いて状態方程式を求めたとしても, 気相と液相が同時に共存するような, 二相状態が存在することを考慮しなければならない。内部エネルギー  $E$ , エントロピー  $S$  に対して, ヘルムホルツの自由エネルギー  $F = E - TS$  を基にする現代の状態方程式では, 二相領域の境界は, マクスウェルの規則に従い, 液相と気相の密度から計算することができる。液相の密度  $\rho_L$  と気相の密度  $\rho_V$  は, 次の連立方程式を満たす。

$$p(\rho_L, T) = p(\rho_V, T) \text{ かつ } g(\rho_L, T) = g(\rho_V, T),$$

ここで,  $g = F + p/\rho$  はギブスの自由エネルギーである。この非線形連立方程式は特別な方法によって解かれる。実際には, 二相領域において物質は例えば気体と小さな液滴からなり, 物質の特性は低密度の境界における気体の密度  $\rho_V$  と, 高密度の境界における液体の密度  $\rho_L$  における値の線形結合で表される。この時表面張力は, 液体を球形の液滴の形を保つように働き, それゆえ液相部分の圧力は気相領域の圧力よりも高く, 密度も  $\rho_V < \rho < \rho_L$  となる。

流体力学においては, 物質は局所熱平衡であることを仮定し, 密度と圧力は各場所で決まった値をもつと考える。高密度, 高温の媒質は, 通常流体の応答時間よりも早く熱平衡状態になるので, この仮定は多くの場合適当である。しかしながら, 蒸発や凝縮の速度は遅く, 蒸発の平衡状態を仮定することは正しくない可能性がある。したがって将来の流体シミュレーションでは, 非平衡の蒸発の動力学と流体力学を組み合わせることが課題になると考えられる。また, 参考文献[4-7]の中の議論にあるように, 流体運動に対する表面張力の効果も重要である。これらの特性は室温程度の温度領域で液体になる物質ではよく理解されているが, 1000 K 以上の高温における, Sn, Al, Au などの金属の分子, 負イオンなどの特別な状態の生成を伴う液体-気体相転移は, 興味のある研究課題である。

## 2.7 液体-液体相転移

高圧のリンにおいて実験的に観測されている顕著な液体-液体相転移は, 局所的な原子の秩序の急激な変化によって起こるとされ, 今後の研究の可能性について示唆を与える重要な例である[32, 33]。X線回折測定によれば, 液体中の近傍分子の配置の急激な変化が観測され, 二つの区別される液相の間の転移が存在することはほぼ間違いないとされている。いくつかの分子媒質において, 同様の液体-液体相転移がはっきりと存在する。最近の文献ではセリウム[34]やシリコン[35]等で, 液体-液体相転移の存在が捉えられている。レーザープラズマの立場では, より高温の金属中で類似の転移が存在するかが問題と考えられる。

## 2.8 状態方程式データの取り扱い方法

状態方程式データの数表は, たくさんの数値が並んだテーブルである。典型的なテーブルは密度について60-100点, 温度について50点程度のデータをもっているが, 計算機の進歩により, 特に二相領域付近での分解能を高めた, より大規模なテーブルが作られるようになっている。

状態方程式データの表を作成する際には, 異なる温度, 密度領域での複数の種類のデータ, 高温での電離と, 低温での固体における諸関係を整合性を持って繋ぎ合わせるものが実際上の課題になっている。少なくとも, 圧力とエネルギーの2変数は, 温度, 密度平面内における, 固体-液体の溶融の境界に対応する曲線上で連続である必要がある。熱力学的な整合性は直ちに検証することができる。文献[36]に示すように, QEOS (Quotidian Equation of State: 常用状態方程式) では, 異なるモデルの間の接続のために, 融点  $T_M(\rho)$  のような与えられた境界において, 値が正確に一致するような関数形を用いるようにしている。すなわち QEOS では, 高温固体の5つの法則と, イオン化について Thomas-Fermi 理論を用い, 固体, 液体, 気体からプラズマにつじつまの合う記述を用い, 相境界で諸量が自動的に一致するようにしている。最近の QEOS の応用では, より多くのパラメータの調整によって, 実験との一致が改善している。

また, 状態方程式を実際にプラズマ流体シミュレーションで用いる場合には, テーブルのデータを内挿で求める場合の誤差もしばしば問題になる。

## 2.9 例

この章の結論として, 図5に, Al の状態方程式を示す。図では gram で表した単位質量あたりの内部エネルギー  $E(\rho, T)$  を, 固体密度付近で, 温度, 密度の関数として示す。液相, 気相の二相領域は, 相境界をマクスウェルの規則に従って求めることによって, はっきりと示されている。結果を詳しく調べると, 驚くべきことに, このような単純な金属においても, 液体-液体相転移が存在することがわかる。

この液体-液体相転移は,  $Al_2$  分子の圧力による解離に起因する。分子とその解離は, 従来の Al の状態方程式のモデルには含まれていない。図5に示した状態方程式は拡張した QEOS [36]によって求められたものであるが, 本手法のもつ柔軟性によって, DesjarlaisらによるQMD計算[16]の結果に可能な限り近い結果を得ることができている。

図5の状態方程式は, 温度0.6 eVにおいて臨界点を持つ。この値は元の QEOS モデルによる値, 1.2 eV[36]よりもかなり低い。QMD 計算の結果は, 低い方の値を示すが, 実験的に検証することが必要である。このことは, 温度0.5~5 eV の Warm Dense Matter 領域では, 基本的な熱物性値もまだ完全も確立されていないといわざるを得ないことを示している。

## 2.10 将来の状態方程式の研究

最後に, 将来の状態方程式の研究, その計算のためのモ



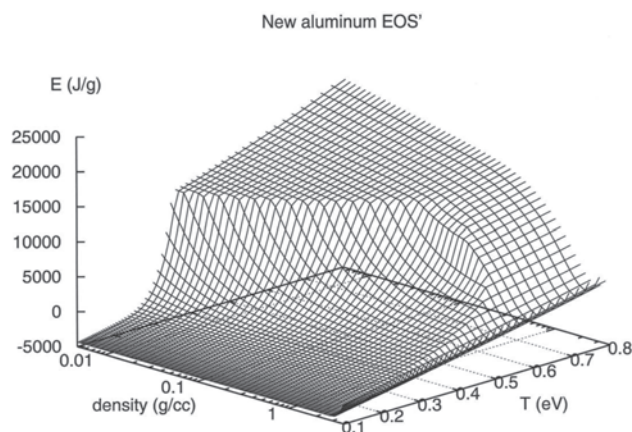


図5 新たに計算されたアルミニウムのEOSにおける内部エネルギー  $E(\rho, T)$ 。液体-気体の二相状態に注目して示す。相境界には、分子の解離に起因する、小さな構造が見られる。これは理論的に予測されているが、実験的には確認されていない、液体-液体相転移に対応する。

デルや手法について述べておきたい。最も重要な課題は、非平衡の効果を状態方程式に取り入れることであろう。高温では、輻射との結合により、電子状態、電離状態は非平衡になると考えられる。また低温 ( $< 10$  eV) でも、液体-気体相転移の時間は、流体運動の時間スケールよりも長く、非平衡状態になると考えられる。これらの効果を研究するためには、原子の衝突輻射モデルや分子動力学シミュレーションが用いられる。

実験研究でも、短パルスレーザーを用いたポンププローブ実験で、短パルスレーザーで加熱されたターゲットの流体運動の初期過程を観測するなどの新しい手法が試みられている。Yonedaらによって、表面で反射されたプローブ光の偏光は、わずかな表面の動きにも敏感なことが確かめられ、既知のレーザーの吸収エネルギーに対するプラズマの膨張速度に関する情報が得られている[37]。このように、実験研究に対しては、いつでも、従来の実験技術で得られる範囲外の条件における物性値を収集し、評価することが求められている。

## 謝 辞

本章を執筆するにあたり、G. Faussurier, S. Libby, M. Desjarlais, H. Kitamura 他多くの研究者からの示唆に感謝する。日本語への翻訳は主に A. Sasaki によって行われた。

[翻訳: 佐々木 明]

## 参考文献

- [1] 竹内 淳: 高校数学でわかるボルツマンの原理 (講談社, 2008)。
- [2] J. Keenan *et al.*, *Steam Tables* (John Wiley & Sons, New York, 1969). (冷媒蒸気表は、Handbook of Chemistry & Physics m にも記述されているが、単位は BTU (British Thermal Units) で、温度を華氏、圧力を 1 平方インチ当たりポンドで表している)。

- [3] A. Forsman *et al.*, J. Appl. Phys. **98**, 033302 (2005).
- [4] T. Yamada *et al.*, *Proc. 19th International Conference on Nuclear Engineering, ICONE-19-44128* (2011).
- [5] S. Yamashita *et al.*, *Proc. 19th International Conference on Nuclear Engineering, ICONE-19-43939* (2011).
- [6] K. Sugihara *et al.*, *Proc. 20th International Conference on Nuclear Engineering, ICONE-20-54185* (2012).
- [7] T. Yamada *et al.*, J. Laser Micro/Nanoengineering **7**, 244 (2012).
- [8] K. Nishihara *et al.*, Phys. Plasmas **15**, 056708 (2008).
- [9] T. Ando *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **47**, 293 (2008).
- [10] "Science of Fusion Ignition on NIF", DOE report LLNL-TR-570412, May 22, 2012.
- [11] R. Sakamoto *et al.*, Nucl. Fusion **44**, 624 (2004).
- [12] M. Goto *et al.*, Plasma Phys. Control. Fusion **49**, 1163 (2007).
- [13] T. Sasaki *et al.*, J. Phys. Conference Series **112**, 042026 (2008).
- [14] T. Sasaki *et al.*, Laser Part. Beams **24**, 371 (2006).
- [15] H. Takabe, Progr. Theor. Phys. Supplement **143**, 202 (2001).
- [16] A. Mattson *et al.*, Modeling Simul. Mater. Sci. Eng. **13**, R 1 (2005).
- [17] R. Feynman *et al.*, Phys. Rev. **75**, 1561 (1949).
- [18] D. Liberman, Phys. Rev. **B20**, 4981 (1979).
- [19] D. Liberman, JQSRT **27**, 335 (1982).
- [20] C. Blancard and G. Faussurier, Phys. Rev. E **69**, 016409 (2004).
- [21] S. Kiyokawa, J. Phys. Soc. Japan **24**, 4708 (1995).
- [22] J.-C. Pain *et al.*, "Equation of State of Dense Plasma Mixtures", to be published.
- [23] J. Chihara, J. Phys. Condensed Matter **12**, 231 (2000).
- [24] J. Chihara, Prog. Theoret. Phys. **111**, 339 (2004).
- [25] R. More, Advances in Atomic and Molecular Physics **21**, 305 (1985).
- [26] J.-P. Hansen and I. McDonald, *Theory of Simple Liquids* (Academic Press, London, 1976).
- [27] H. Kitamura and S. Ichimaru, J. Phys. Soc. Japan **67**, 950 (1998).
- [28] S. Ichimaru and S. Ogata, *Elementary Processes in Dense Plasmas*, (Addison-Wesley, Reading Mass., 1995).
- [29] N. Mott and W. Jones, *Theory of the Properties of Metals and Alloys* (Dover Publications, New York (1958).
- [30] N. Ashcroft and N. Mermin, *Solid State Physics* (Holt, Rinehart and Wilson, New York, 1976).
- [31] V. Fortov, "Extreme States of Matter", Springer-Verlag, Berlin (2011) 加えて Mozhnie udarnie volni i eksperimental'nie sosshoyaniya beshchestba, Nauchnaya lektsiya pri vruchenii, bol'shoi mezdunarodnoi zolotoi medali im. A. Einsteina po fizike, Izdatel'stvo "Bukos", Moskva, Kosmodamianskaya nab. も参照。
- [32] Y. Katayama *et al.*, Nature **403**, 170 (2000).
- [33] H. Tanaka, Phys. Rev. E **62**, 6968 (2000).
- [34] A. Cadien *et al.*, Phys. Rev. Lett. **110**, 125503 (2013).
- [35] M. Beye *et al.*, Proc. National Academy of Sciences **107**, 16772 (2010).
- [36] R. More *et al.*, Phys. Fluids **31**, 3059 (1988).
- [37] H. Morikami *et al.*, Phys. Rev. E **70**, 035401 (2004).



MORE Richard

米国ウィスコンシン州生まれ。経歴：1968年，Ph.D カリフォルニア大学ラ・ホヤ校，1968-76年ピッツバーグ大学助教授，准教授，1977-99年 米国国立リバモア研究所（サイエンティスト，グループ長，ディビジョン長），1999-2005年総合研究大学院大学・核融合科学研究所教授，それ以降，米国国立ローレンス・バークレイ研究所，リバモア研究所，サンディア研究所コンサルタント。専門分野：レーザープラズマ，原子物理，核融合。趣味：コンピュータと，中国の算盤や，日本の亀嵩算盤を使った，数論。