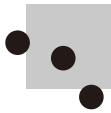


Title	3.レーザー誘起衝撃波圧縮による状態方程式計測 3.2 慣性核融合燃料ペレットに関する状態方程式計測実験
Author(s)	小野, 貴俊; 田中, 和夫; 尾崎, 典雅
Citation	Journal of Plasma and Fusion Research. 2004, 80(6), p. 442-446
Version Type	VoR
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/3107">https://hdl.handle.net/11094/3107</a>
rights	
Note	

*Osaka University Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University



## 小特集 レーザー誘起衝撃波圧縮を用いた状態方程式研究

# 3. レーザー誘起衝撃波圧縮による状態方程式計測

## 3.2 慣性核融合燃料ペレットに関する状態方程式計測実験

小野 貴俊<sup>1)2)</sup>, 田中和 夫<sup>1)2)</sup>, 尾崎 典雅<sup>3)</sup>

(<sup>1)</sup>大阪大学レーザーエネルギー学研究センター, <sup>2)</sup>大阪大学工学部,

<sup>3)</sup>エコールポリテクニク高強度レーザー応用研究所)

Equation-of-State Measurements by Laser-Induced Shock Compression  
Equation-of-State Measurements for Inertial-Fusion Pellet Materials

ONO Takatoshi<sup>1)2)</sup>, TANAKA Kazuo A.<sup>1)2)</sup> and OZAKI Norimasa<sup>3)</sup>

<sup>1)</sup>Institute of Laser Engineering, Osaka University, Suita 565-0871, Japan

<sup>2)</sup>Faculty of Engineering, Osaka University, Suita 565-0871, Japan

<sup>3)</sup>Laboratoire pour l'Utilisation de Lasers Intenses, Ecole Polytechnique, 91128 Palaiseau Cedex, France

(Received 24 April 2004)

Equation-of-State (EOS) experiments, based on an impedance matching scheme, were performed on plastic materials using laser-driven shock waves. The Hugoniot of polystyrene, polyimide, and deuterated-polyethylene, each of which are materials of interest in inertial fusion energy studies, were measured. The EOS points were determined with good accuracy in very wide pressure regime.

Keywords:

equation of state, shock wave, Hugoniot, laser, polystyrene, polyimide, deuterated polyethylene

### 3.2.1 はじめに

レーザー核融合では、外側から順に、低原子番号物質のアブレータ、固体の主燃料、気体燃料からなる3層構造の燃料球ターゲットに、高強度レーザー光を均一に照射する。ターゲット表面は瞬時にプラズマ化し、その膨張の反作用である内向きのアブレーション圧力によって、燃料球が中心方向に爆縮する。この爆縮によって、中心部に高温・高密度<sup>注1)</sup>のプラズマが形成される。レーザー核融合の直接照射型である自己点火方式では、この爆縮によって、高温で比較的低密度の点火(ホットスパーク)部を中心部に形成させ、そのまわりに低温で高密度の主燃料部を形成させることにより、核融合点火条件を達成させ、さらに核融合反応で発生するアルファ粒子による加熱によって燃焼に至らせる。米国のローレンス・リバモア国立研究所(Lawrence Livermore National Laboratory; LLNL)では総ビーム数192本、合計エネルギーが1.8 MJのNIF(National Ignition Facility)、仏国の原子力エネルギー研究所(Commissariat à l'Energie Atomique; CEA)では総ビーム数240本、合計エネルギーが同じく1.8 MJのLMJ(Laser Mégajoule)が建設中であり、数年後には核燃焼を伴う核融合プラズマの実験が開始される見通しである。

レーザー核融合に関する実験およびターゲットの設計や

authors' e-mail: katanaka@ile.osaka-u.ac.jp, norimasa.ozaki@polytechnique.fr

注1: 1億度および固体密度の約1,000倍

解析を行うにあたって、燃料やペレットシェル材料に関する高圧域の状態方程式(Equation of state; EOS)は必須の情報である。レーザー照射によって生成される衝撃波でターゲット内部に作り出される熱力学的状態は、個々の物質のEOSに従い、系の流体運動の表現に強く寄与する。現在のところ、広範な圧力・温度の領域をカバーし得る単一の状態方程式理論モデルがないため、爆縮過程を数値的に模擬するための流体シミュレーションコードには、実験データや経験則などと、例えばThomas-Fermi-Dirac EOSのような理論をスムーズに繋ぐように設計された数値テーブルが導入されている。液体重水素に関するDa Silvaらの実験データ[1]を支持する理論[2]と、Knudsonらのデータ[3]を支持する理論[4]では、同一の投入エネルギー下で得られる核融合出力が4倍以上も異なるという顕著な例[5]が示すように、多段の衝撃波によってターゲットが到達する最終的な状態は、使用されている状態方程式とその精度によって決定的に異なり、理論の検証と精度の高い実験データが必要とされる。

核融合ターゲットの燃料シェルとして考えられているプラスチックのような軽元素の物質については、従来法による高圧縮が難しいことから高圧域のEOSデータが極めて少なく、高強度レーザーは、マルチテラパスカルまでの広

範な圧力状態を実現している唯一のツールである。ここでは、大阪大学レーザー核融合研究センター（現・大阪大学レーザーエネルギー学研究所、Institute of Laser Engineering: ILE）における直接照射方式の実験によって得られた、ポリスチレン、ポリイミド、重水素化ポリエチレンといったプラスチック材料に関する状態方程式データについて報告する。

### 3.2.2 実験条件

一連の実験データは、主に大阪大学レーザー核融合研究センターにおける大型レーザー激光12号の、高強度照射システム HIPER (High Intensity Plasma Experimental Research) 装置を用いて得られたものである。HIPER レーザーは、 $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> を超える照射強度で、理想的な1次元圧縮を行うための実験装置であり、激光12号のレーザービームをすべてバンドルし、一方向から照射できるようになっている。本実験では、波長351 nmの9ビームを使用し、そのビーム本数をショットごとに変えることで物質内に発生する圧力域を制御している。レーザー照射スポットのサイズは直径600  $\mu$ m であり、パルス波形は半値幅2.5 nsの矩形波である。均一な照射強度分布を得るために、時空間カラーサイクル光 (Smoothing by Spectral Dispersion: SSD) を利用し、キノフォルム位相板 (Kinoform Phase Plate: KPP) も挿入されている。その結果、直径およそ230  $\mu$ mの平面衝撃波が、約2 nsにわたって定常に伝播していることが、実験によって確認されている[6]。

HIPER レーザーをインピーダンスマッチング型のダブルステップ構造のターゲットに照射し、衝撃波がターゲット裏面を抜ける瞬間の現象を、自発光計測、反射光計測、放射温度計測の3つの計測系によって同時に観察した。自発光計測は、衝撃波がターゲット内部を伝播しターゲット裏面に達した瞬間の、衝撃温度に対応する放射光を可視ストリークカメラによって計測するシステムである。この自発光を、色収差の少ないリレーレンズで捕集し、顕微鏡対物レンズを用いて拡大光学系を構成した。コリメートされて射出する光を、アクロマティックレンズによって集光し、ストリークカメラのスリット上へ結像している。

反射光計測は、ターゲット裏面にプローブレーザーを照射し、衝撃波がターゲット裏面に到達する際の、ターゲット物質の溶融・プラズマ化といった物質状態の変化や、単純な反射面の動的変形などに伴う反射光強度のプロファイルを、ストリークカメラで時間分解計測することによって、衝撃波面の裏面到達を特定することができるシステムである。反射光計測用のプローブレーザーは、インジェクションシーダ付きのQスイッチYAG (Yttrium Aluminum Garnet) レーザーで波長532 nm、時間特性は半値幅8 nsのガウス波形である。プローブ光は、オプティカルファイバによってチャンバ付近に導かれ、射出光をレンズによってコリメートし、集光レンズによってターゲット裏面に照射される。ターゲット表面でスペキュラ方向に反射された光を、自発光計測に利用している同じレンズで集め、可視ストリークカメラに結像する。自発光計測用の光路中

にダイクロックミラーを挿入して、プローブ光を取り出し、狭帯域のバンドパスフィルタによって532 nmの光のみをカメラに入射させている[6]。

温度計測系は、時間分解型の2波長色温度計で、2つの波長域 (チャンネル) における放射光量を測定し、その比を算出することによって黒体輻射の曲線を特定し、放射温度を決定した[7]。ターゲット裏面からの放射は、シュワルトシルト型顕微鏡を用いて像転送し、顕微鏡射出後の光路にパイプリズムを挿入して、空間情報を持たせたまま光束を2分割する。スペクトル域の異なる2つの色フィルタ (バンドパスフィルタ) に2光束をそれぞれ通した後、同一の可視ストリークカメラに結像させた。2チャンネルの波長域は、観測の対象となる温度が数 eV ~ 20 eV 程度までになるので、計測の精度と感度を上げるために、紫外域 (284 ~ 327 nm) および可視域 (青) (385 ~ 469 nm) を採用した。この方法によるポリスチレンの衝撃温度計測に関しては、小野らの研究論文として掲載されている[8]

### 3.2.3 実験結果

被測定物質がポリスチレンの場合の、ターゲット構造および典型的な自発光計測データを Fig. 1 に示す。用いられた標準物質はアルミである。ターゲット各層の厚みは、一次元流体力学コード[9]を用いたシミュレーションによって最適化された。アルミ箔同士の接着は単分子膜接着[10]によって行われ、ポリスチレンは熱融着で接着されている。また、自由表面への衝撃波到達時刻を正確に感知するため、ポリスチレン表面には1,000 のアルミコーティングを施した。各ステップの高さは、共焦点型レーザー変位計を用いて精度良くキャラクタライズされている。Fig. 1 の実験データでは、まずアルミ基盤裏面における衝撃波到達を示す自発光が観測され、そして  $\Delta t_{(PS)}$  と  $\Delta t_{(Al)}$  の時間間隔後にそれぞれポリスチレン、アルミステップ表面での発

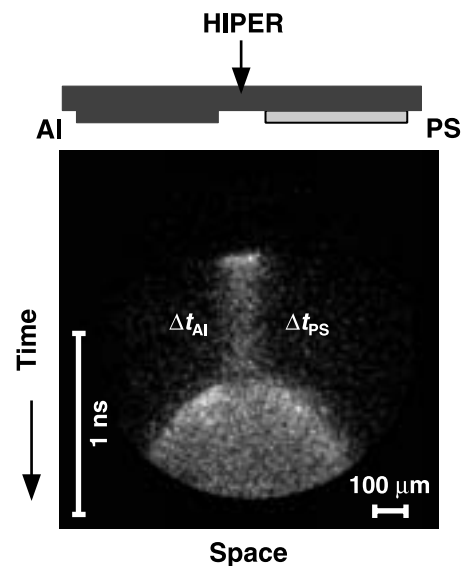


Fig. 1 A typical streak image with double step target in our experiment. The time interval  $\Delta t$  corresponds to the traveling time of the shock through each step.

光が続いていることがわかる。 $\Delta t_{(PS)}$  は、ポリスチレンステップの距離を衝撃波が伝搬するのに要した時間であるから、その衝撃波速度  $U_{s(PS)}$  は  $32.66 \pm 0.645$  km/s と求められた。同様に  $U_{s(Al)}$  も計算すると  $26.23 \pm 0.514$  km/s であった。インピーダンスマッチング法を用いてポリスチレンのユゴニオを算出すると粒子速度  $u_{p(PS)} = 20.15 \pm 0.617$  km/s, 圧力  $P_{(PS)} = 685.8 \pm 25.8$  GPa, 密度  $\rho_{(PS)} = 2.718 \pm 0.123$  g/cm<sup>3</sup> であった。同様に、ポリスチレンに加え、ポリイミド、重水素化ポリエチレン等のプラスチック材料に対して、テラパスカル域までのまとまったユゴニオデータを得ることに成功した。

### (1) ポリスチレン

水素と炭素からなる5大汎用樹脂の1つであるポリスチレンは、透明度・剛性が高く、成型加工性とコストパフォーマンスに優れているなどの利点から、レーザー核融合に関連する基礎実験用のターゲットを始めとして頻繁に使用されており、そのEOSは科学的にも工学的にも興味が大い。

実験によって得られた一連のユゴニオデータを Fig. 2 に示す。ここでは、総じて  $\pm 5\%$  前後の精度で衝撃波速度を決定することができ、また最も精度の高いものは  $\pm 2\%$  であった。図中の  $\square$  で示した、インピーダンスマッチング実験による 2.7 TPa までの我々のデータと、 $\bullet$  で示した(異なる実験手法による) LLNL での 4 TPa までのデータ [11] とは、 $P-u_p$ ,  $U_s-u_p$  の両平面において良い一致を示している。これらのデータからは、 $U_s$  と  $u_p$  の間に相関が認められ、重み付きの最小二乗法によって、 $U_{s(PS)} = 7.404 + 1.259 \cdot u_{p(PS)}$  の関係式が求められた<sup>注2)</sup>。

得られた実験データから、衝撃超高压下の炭化水素材料が、分子性流体相の水素と、高压ダイヤモンド相の炭素との混合流体であると仮定した Ree の理論モデル [12] (一点鎖線) に比べて、ポリスチレンの圧縮率  $U_s/(U_s - u_p)$  は低く見積もられ、QEOS [13] (点線) もしくは SESAME [4] (実線) モデルの方が、比較的一致していることがわかる。圧縮率を減少させる要因として、先行過熱の影響を挙げることができるが、それによる温度上昇は、実際の衝撃温度の 0.05% (約 0.05 eV) 程でしかないと評価されている [11]。例えば、テラパスカル域のデータ点と QEOS 間には、温度にしておよそ 0.5 eV の差異があり、先行加熱による圧縮率減少と考えるには 1 桁の開きがあるため、あまり現実的ではない。SESAME や QEOS が予測するよりもポリスチレンがさらに硬い可能性が示唆されており、色温度計測によるポリスチレンの衝撃温度データ [8] から判断しても、この予測は妥当のようである。このことは、爆縮によって加速するシェル中の密度や速度、また流体力学不安定の成長率などに具体的な影響を及ぼし得る。

### (2) ポリイミド

ポリイミド (PI) は、ポリスチレンのような一般的なプラ

注2: 高压域において物質の相状態が一定の場合、ユゴニオの衝撃波速度と粒子速度データの間に綺麗な直線関係が得られることが多い。このような関係式が実験的に判明している場合、衝撃波速度の情報のみから他のユゴニオ変数を決定することができる。

注3: 主燃料層に固体の重水素を用いるため、ターゲット系を固化温度の極低温に保つ必要がある。

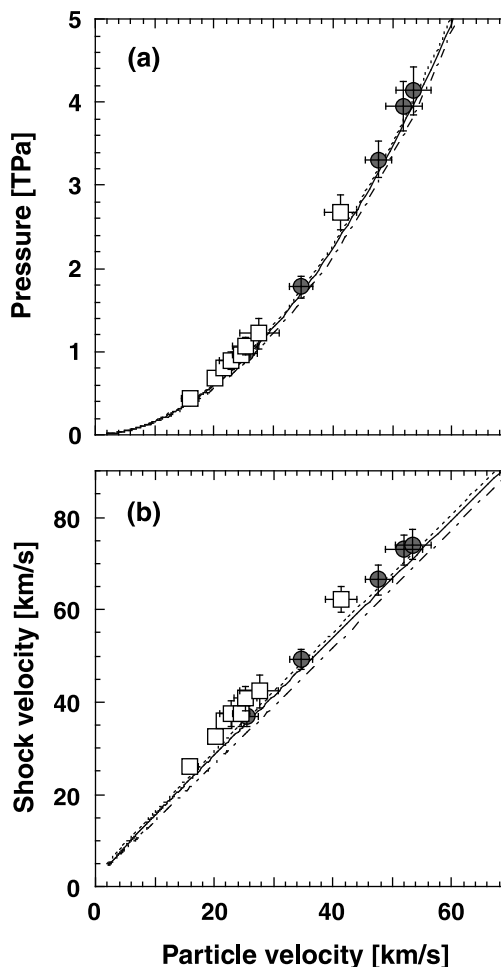


Fig. 2 Polystyrene Hugoniot data presented as (a) pressure vs. particle velocity and (b) shock velocity vs. particle velocity. The present data obtained at the ILE (open squares) and past data at the LLNL [11] (grey solid circles) are compared to the SESAME tabular EOS [4] (solid curve), QEOS [13] (dashed), and Ree's model [12] (dot-dashed).

プラスチックの持つ特性に加え、将来の極低温ペレットターゲット<sup>注3)</sup>に要求される特性、すなわち、高い引張り強度、弾性定数、透過率、輻射抵抗率、熱伝導度、電気抵抗率、オパシティ(青色光、例えばガラスレーザーの3倍高調波に対する)などを持ち合わせているので、NIF ターゲットのシェル候補として検討されている [14]。また最近では、ターゲット製作技術の発展により、種々の優れたポリイミドの利用が可能となっており、田中らによる多層膜レーザーファイヤの中間層であるフッ素化ポリイミドもそのひとつである [15, 16]。ポリイミドプラスチックのEOSは、実験データベースや SESAME テーブルにも含まれておらず、シミュレーションコード内にそのEOSモデルを組み込む上で、実験による基本ユゴニオの検証が不可欠である。

得られた実験データを Fig. 3 に示す。おおよびは、HIPER とは異なるドライバを用いて得られた 100 GPa 以下

のデータで [17], は HIPER レーザーを用いて得られた超高压データである [18]. 実線は, SESAME データベースで参照可能なプラスチックを混合することによって, 初期密度をポリイミド ( $\rho_{0(\text{PI})} = 1.50 \text{ g/cc}$ ) と一致させた, 擬似的なポリイミドのユゴニオ曲線であり, ターゲットデザインを行うための数値計算にはこの EOS を用いた. また, 点線は QEOS モデルを基に計算されたユゴニオ曲線である. サブテラパスカルの圧力域で得られた高压データは, 粒子速度で 2% 程度, 圧力にして 3 ~ 4% 程度の精度で決定することができた.

HIIPER 装置の標準的なレーザー照射条件<sup>注4)</sup>では, 衝撃インピーダンスの低いポリイミドのような低原子番号の物質において, 数テラパスカルの圧力がおおよその到達限界であった. Fig. 3 中に示された, 5.8 TPa という非金属物質における最高圧力データは, アルミとポリイミドからなるダブルステップターゲットに, 密度 100 mg/cc のプラスチックフォームをアブレータとして配することによって実

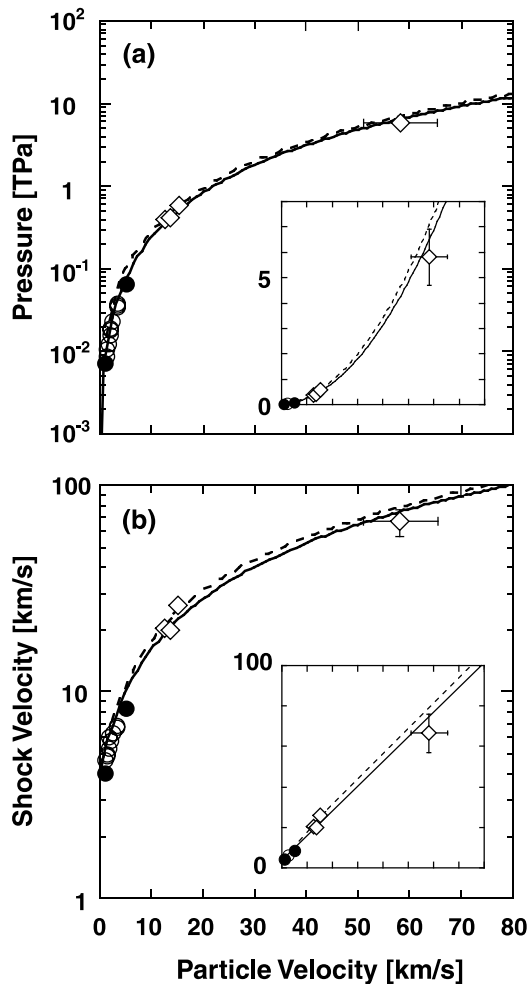


Fig. 3 Polyimide Hugoniot data presented as (a) pressure vs. particle velocity and (b) shock velocity vs. particle velocity. These are single logarithmic plots for showing data's difference (insets are linear representations). Our present (open diamonds) and past data [17] (solid and open circles) are compared to the Hugoniot predicted from the SESAME tabular EOS (solid curve) and from the QEOS (dashed).

現されている (Fig. 4). 一般にアブレーション圧力は, レーザーの集光強度や波長に比べ, 物質に対して強く依存しないので, レーザー照射条件が等しい場合, 選択したアブレータ材によらず同程度の圧力が生成すると考えられる. したがって, 標準試料内部に伝搬する衝撃波圧力は, アブレータとの衝撃インピーダンスのミスマッチ分に相応する圧力の増幅が起こる [19]. ここでの実験条件の場合, アルミに直接レーザーを照射して生じるアブレーション圧力と比べると, およそ 2.8 倍の増幅率であった. フォームを利用した際特有の問題; 衝撃波の持続時間が非常に短くなること, 衝撃波面の空間形状がフォームの品質に左右されやすいこと, などによって現状で誤差は大きい, この方法を組み合わせることで, 低原子番号物質においても核実験をも上回る圧力データが取得できる可能性が示された.

### (3) 重水素化ポリエチレン

衝撃波圧縮によって, 炭化水素系有機化合物が数十 GPa のユゴニオ圧力に達すると, そのときの衝撃温度はおおよそ数千ケルビンとなる. このとき, 化合物中の各種共有結合 (例えば炭素-水素, 炭素-炭素など) は, 生じた熱によって切断され, また, 化学的に活性な原子・分子は, 任意の熱力学的平衡状態において安定な化学種へと再結合する. Block らの実験 [20] によると, ベンゼンやナフタレンのような化合物に, 900 度で 4 GPa の静水圧力をかけたのち, 回収した試料の 99% 以上はアモルファス状の炭素であり, 水素原子は, 気体となって試料から脱け出したと考えられている. このことは, はるかに高温・高压となる衝撃圧縮下で, 炭化水素化合物中の炭素-水素共有結合が切断されること, と同時に, 炭素または水素系の構成要素が互いに不活性であることを示唆している. したがって, この仮定の下で, 衝撃高压力における炭化水素化合物は, 高压相の炭素と水素の混合流体として扱うことができる. 実際, 衝撃圧縮下の炭素は, 数 GP 程度から高压のダイヤモンド相にあることがわかっているので, 水素を分子状水素の相であると仮定して, それぞれの状態量を化合物中の質量比にあわせて混合して求めたユゴニオ曲線は, 炭素-水素からなる多くの化合物について, 実験データと極めてよく一致して

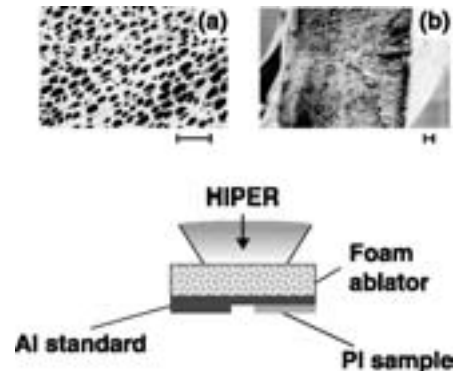


Fig. 4 Target with foam ablator. (a) SEM image of the plastic foam surface and (b) cross section. Scales denote 10  $\mu\text{m}$ . The density is 0.1  $\text{g/cm}^3$ , and the cell size is approximately 3  $\mu\text{m}$ .

注 4: スポット径 600  $\mu\text{m}$ , パルス幅 2.5 ns

いる[21].

重水素は、言うまでもなく核融合燃料として考えられている重要な物質であり、また、木星系惑星内部の相状態などに関連して、惑星・宇宙物理分野においてもその状態方程式は興味の対象となる。重水素置換ポリエチレン（重水素化ポリエチレン：CD<sub>2</sub>）中の重水素が占める割合は、単位体積あたりのCD<sub>2</sub>でおよそ0.28 gであり、極低温状態の液体または固体重水素<sup>注5</sup>よりも高い初期密度が、常温・常圧下で得られる。単一の衝撃波による重水素単体の圧縮では、温度の上昇が起こりやすいため、高圧縮が困難であるが、このプラスチックを用いれば、比熱の高い炭素との混合流体となるために、温度の上昇が単体の場合に比べて1/3程度で、且つ高い圧力に達するので、単体では実現されにくい状態方程式曲面上の点を探索することが可能となる。

実験データをFig. 5に示す。実線はSESAMEモデルから求めたユゴニオであり、実験結果と非常によく一致していることがわかる。図中の破線は、前述したように、CD<sub>2</sub>中の重水素が圧縮性分子流体相と仮定した場合で、高压ダイヤモンド相の炭素と混合させて求めたユゴニオ曲線である[21]。重水素単体のユゴニオ上では、いくつかのモデルが、およそ0.3~数eVまでの温度域で極端な圧縮率の上昇（SESAMEに比べて）を示しているが[2, 22-24]、CD<sub>2</sub>中の対応する温度域では、今のところそのような現象を窺うことはできない。目安として、SESAMEで求めたユゴニオ曲

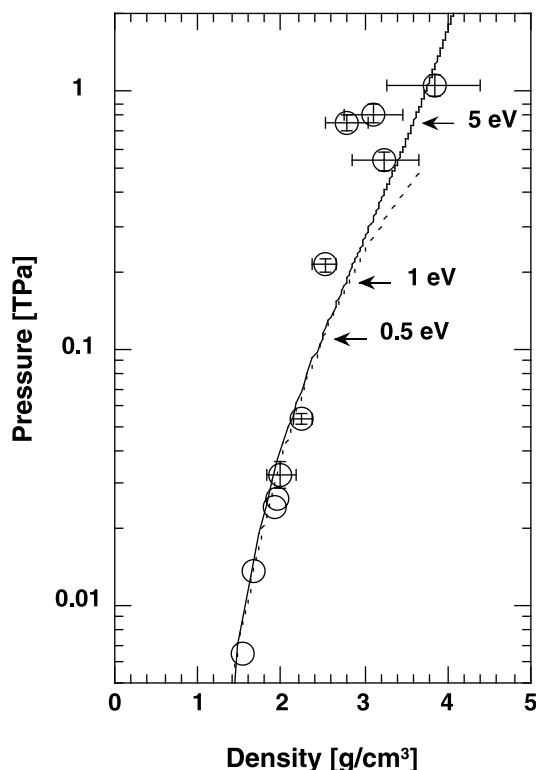


Fig. 5 Deuterated polyethylene Hugoniot data presented as pressure vs. density. Present data (open circles) are compared to the Hugoniot predicted from the SESAME tabular EOS (solid curve) and from the mixing model (dotted).

線上の温度を数点示した。

### 3.2.4 おわりに

レーザー核融合における燃料ターゲットの圧縮過程を予測するためには、燃料となる重水素等の水素同位体やその燃料シェルのEOSを知ることが必須の要項である。ここでは、ターゲットシェル材料を中心として、ポリスチレン、ポリイミド、重水素化ポリエチレンのEOS計測を、高強度レーザー装置を用いて行った。その結果、今までほとんど皆無だった高压域のユゴニオデータを、それぞれ2.7, 5.8, 1.1 TPaの圧力まで、良い精度で取得することができた。いくつかのEOS理論モデルと比較して、マルチTPaの圧力域における妥当性を検証した。今後は、進行中の温度、衝撃波面反射率の計測を通じて、圧力-密度-温度面の完全なデータセットや、化合物内部の構成要素の存在形態を示唆するようなデータ（分子解離、電離度など）取得へ展開していく。極限環境における軽原子番号物質の、EOSを含む種々の物性を知ることによって、レーザー核融合研究はもとより、さらに多くの科学分野に貢献することができる。

### 参考文献

- [ 1 ] L.B. Da Silva *et al.*, Phys. Rev. Lett. 78, 483 (1997).
- [ 2 ] M. Ross, Phys. Rev. B 58, 669 (1998).
- [ 3 ] M. D. Knudson *et al.*, Phys. Rev. Lett. 87, 225501 (2001).
- [ 4 ] SESAME, the LANL equation of state database, Los Alamos National Laboratory, LA-UR-92-3407 (1992).
- [ 5 ] T.R. Dittrich *et al.*, Phys. Plasmas, 6, 2164 (1999).
- [ 6 ] N. Ozaki *et al.*, Phys. Plasmas, 11, 1600 (2004).
- [ 7 ] T.A. Hall *et al.*, Phys. Rev. E 55, R6356 (1997).
- [ 8 ] T. One *et al.*, J. Plasma Fusion Res. 80, 476 (2004).
- [ 9 ] M. Yoshida, CETR Report C-06-86, Center for Explosives Technology Research (1986).
- [ 10 ] K. Nagai *et al.*, Jpn J. Appl. Phys. 41, L1184 (2002).
- [ 11 ] R. Cauble *et al.*, Phys. Rev. Lett. 80, 1248 (1998).
- [ 12 ] F.H. Ree, Lawrence Livermore National Laboratory Report Uo. UCRL-51885, 1975.
- [ 13 ] R.M. More *et al.*, Phys. Fluids 31, 3059 (1988).
- [ 14 ] Dittrich *et al.*, Phys. Plasmas 6, 2164 (1999).
- [ 15 ] K. A. Tanaka *et al.*, Phys. Plasmas 7, 676 (2000).
- [ 16 ] N. Ozaki *et al.*, J. Appl. Phys. 89, 2571 (2001).
- [ 17 ] N. Ozaki *et al.*, Phys. Plasmas 10, 2475 (2003).
- [ 18 ] K. Takamatsu *et al.*, Phys. Rev. E 67, 056406 (2003).
- [ 19 ] D. Batani *et al.*, Phys. Rev. E 63, 046410 (2001).
- [ 20 ] S. Block, C.E. Weir and G.J. Piermarini, Science 169, 587 (1970).
- [ 21 ] F.H. Ree, J. Chem. Phys. 70, 974 (1979).
- [ 22 ] D. Saumon and G. Chabrier, Phys. Rev. A 44, 5122 (1991).
- [ 23 ] F.J. Rogers, Astro. Phys. J. 310, 723 (1986).
- [ 24 ] B. Militzer, W.R. Magro and D.M. Ceperley, in *Strongly Coupled Coulomb Systems*, edited by G.J. Kalman, K.B. Blagoev and J.M. Rommel (Plenum Press, New York, 1998).

注5：約20 Kで0.17 g/cc, 10 Kで0.19~0.2 g/cc程度である。