

Title	高速点火レーザー核融合実験用トレーサー添加ター ゲット開発に関する研究					
Author(s)	岩佐,祐希					
Citation	大阪大学, 2018, 博士論文					
Version Type	VoR					
URL	https://doi.org/10.18910/69587					
rights						
Note						

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

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

The University of Osaka

博士学位論文

高速点火レーザー核融合実験用 トレーサー添加ターゲット開発に関する研究

岩佐 祐希

2018年 1月

大阪大学大学院工学研究科

内容梗概

本論文は筆者が 2012 年から 2018 年までの 6 年間、大阪大学工学研究科環境・エネルギ ー工学専攻在学中にレーザー科学研究所にて行ったレーザー核融合燃料ターゲット作製技 術に関する研究についてまとめたものである。

高速点火方式は燃料の圧縮と加熱を分離した方式のレーザー核融合である。この方式で はナノ秒のレーザーによって爆縮された燃料プラズマにピコ秒のレーザーを用いて高温点 火部を作製する。これにより中心点火方式で課題とされた流体不安定性の影響を小さくす ることができ、少ないレーザーエネルギーでの核融合点火の達成が期待できる。

高速点火方式の原理実証では、1)必要な半径密度積を持つ高密度コアの作製、2)加熱レー ザーから高速電子へのエネルギー変換、3)高速電子による高密度コアへのエネルギー付与、 などの素過程を明らかにすべく実験が行われている。これらの実験では、発生した X 線や 中性子を計測することで評価を行う。基礎物理の理解には、あらかじめ燃料にトレーサーと なる原子を含有させておき、発生した特性 X 線や核反応を計測することによって現象の理 解を進める手法が有用である。このため燃料へのトレーサー添加技術は非常に重要な技術 である。また、近年、様々な燃料デザインが実験に用いられるようになったことから、燃料 作製も幅広いアプローチの作製技術が求められるようになった。

本研究ではトレーサー添加燃料の作製技術として以下の3つの技術を研究した。

第一章では、本研究の背景として高速点火レーザー核融合の現状と問題点について述べ、 本研究での課題を明らかにした。

第二章では、燃料作製を均一かつ再現性良く行うためにマイクロ流体デバイスのエマル ション生成の操作性の検討を行った。従来、用いられてきた二重ノズルデバイスでは安定し たエマルション生成が可能であったものの、拡張性に欠けるという問題点があった。マイク ロ流体デバイスはキャピラリーの組み合わせによって簡易かつ安価に作製可能であり、拡 張性に優れている。このデバイスを用いた際の生成したエマルションの①サイズ均一性、② サイズ制御性について検討を行った。この結果、1%以下のばらつきで精度よくエマルショ ンを生成できることが分かった。また、流量をコントロールすることで、様々な実験用及び 発電用のレーザー核融合燃料容器の作製が可能であることが分かった。これらの結果より、 マイクロ流体デバイスは核融合燃料作製に有用であることを示した。

第三章では、銅トレーサーを含有した中実燃料の作製手法を開発について述べた。燃料プ ラズマ中で高速電子によって加熱された領域を測定することは加熱過程の解明において非 常に重要となる。この測定には原子比で1%程度銅を含有した燃料が必要である。従来法で は、鋳型となるカプセルに不純物として銅をドーピングしながら燃料層を形成する手法が 用いられてきたが、中実燃料にはこの手法が適応出来ない。そこで、銅を化学的に含んだオ レイン酸銅を燃料材料として用いることでエマルション法を用いた中実銅トレーサー含有 燃料の作製を行った。エマルション法を用いて直径 200 µm 級の中実球を作製した。この中 実燃料は原子比で 0.93%の銅を含み、燃料中で均一に分布していた。また、燃料形状は真球 度で 97%以上を示したが、表面には 1µm 程度の凹凸が見られた。流体シミュレーションを 用いることでこの擾乱は中実球爆縮に影響がないことを示した。以上の結果より、銅含有中 実球の作製手法を確立した。

第四章ではポリスチレンへのトリチウム添加技術の開発について述べた。高速点火方式 の実証には加熱によってイオン温度がどこまで上昇したのかを確認する必要がある。DD、 DT 核融合中性子の比からイオン温度を測定するために、重水素化ポリスチレン中の重水素 を 1%程度トリチウムに置き換えるためのトリチウム添加技術の開発が必要である。トリチ ウム雰囲気下でのトリチウムの添加を促進するため、①添加促進手法の検討、②トリチウム 添加量、③ポリスチレン中のトリチウムの空間分布の測定を行った。添加手法では紫外線お よびプラズマを用いることでトリチウムの添加を 10-100 倍促進できることが分かった。ま た、紫外線の照射量とトリチウム添加量の関係を明らかにした。ポリスチレン中のトリチウ ム分布は紫外線の吸収減衰分布に一致していることがわかり、表面からおよそ 4µm までの 領域にトリチウムが存在していることを明らかにした。これらの結果からトリチウム添加 技術の基礎的な特性を明らかにした。

第五章では、以上の3項目の研究をまとめ、本研究の核融合研究への寄与を記した。

F	汐	\langle

1.	序論	1
1	l .1. 杉	孫融合とエネルギー
1	l .2. 杉	融合点火
	1.2.1.	レーザー核融合3
	1.2.2.	高速点火4
1	1.3. 杉	孫融合の燃料
1	l .4. ⊦	・レーサーターゲット7
1	1.5. 本	、研究の目的
1	第1章の	9参考文献
2.	マイ	クロ流体デバイスによるエマルション作製手法の開発14
2	2.1. 杉	孫融合燃料の作製手法
	2.1.1.	レーザー核融合の燃料14
	2.1.2.	燃料容器の作製14
	2.1.3.	流体デバイスによるエマルション作製手法16
	2.1.4.	エマルション作製に必要な特性19
	2.1.5.	研究目的
2	2.2. マ	マイクロ流体デバイスの作製23
2	2.3. I	ニマルションの特性
	2.3.1.	サイズ分散性23
	2.3.2.	サイズ分散性25
	2.3.3.	サイズ制御性
	2.3.4.	エマルション作製可能領域
2	2.4. I	マルション作製の指針
2	2.5. ま	
1	第2章の)参考文献
3.	オレ	イン酸銅ターゲットの開発
3	3.1. ⊦	、レーサーターゲットによる高速電子の計測
3	3.2. 夕	マーゲット材料・作製方法の検討
	3.2.1.	トレーサーの選択
	3.2.2.	ターゲット材料の選定
3	3.3. オ	-レイン酸銅ターゲット作製40

3.3.1.	エマルションのサイズ	40
3.3.2.	エマルション作製	40
3.3.3.	エマルションの乾燥	41
3.4. オレ	/イン酸銅ターゲットの評価	42
3.4.1.	密度測定	42
3.4.2.	Cu 濃度の測定	43
3.4.3.	Cu 分布の測定	44
3.4.4.	形状測定	45
3.4.5.	シミュレーションを利用した評価	52
3.5. 表面	山山の考察	54
3.6. プラ	ラズマ実験における使用実績	56
3.7. まと	_ め	57
第3章の参	送考文献	58
	これに活動にある	(1
4. トソフ	ッム参加十次の開発	61
4.1. トリ	リチウムによるイオン温度計測	61
4.2. トリ	リチウム添加ターゲット	63
4.2.1.	Wilzbach 法によるトリチウム添加	63
4.2.2.	Wilzbach 法の促進	64
4.3. トリ	リチウム添加促進手法の検討	65
4.3.1.	照射方法の検討	65
4.3.2.	実験手法	65
4.3.3.	実験結果	69
4.4. 紫夕	▶線によるトリチウム添加量	72
4.4.1.	紫外線の照射量	72
4.4.2.	実験手法	72
4.4.3.	実験結果	72
4.5. 燃料	斗中のトリチウム空間分布の測定	74
4.5.1.	ポリスチレン中でのトリチウム分布	74
4.5.2.	実験手法	75
4.5.3.	実験結果	77
4.6. トリ	リチウム添加ターゲットの作製	80
4.7. まと	<u>ප</u> හ්	
第4章の参	◎考文献	82
₅ 灶≯		0.4
つ。 不可可用 …		84

謝辞	
業績目録	
Appendix I マイクロ流体デバイスの作製	
Appendix II Wilzbach 法におけろ充填容器形状の効果	96
Appendix III Fill-tube 付ターゲットの作制	100
Appendix.m Tim-tube [17 7 7 7 [10]]Fæ	100

1. 序論

1.1. 核融合とエネルギー

産業革命以降、人類がエネルギーの大量消費を始めて以来、エネルギーの供給は常に 重要な問題であった。エネルギーの消費が前提となり成り立っている今日の社会では、エ ネルギーの安定した供給と経済性が求められる。また、電力エネルギーに着目すると、1 日の中でも需要が変動し、これに従って供給を行う必要がある。これらを達成するために は、多様なエネルギー源を用意することが求められる[1]。

石油、石炭、LNG などの化石燃料は、経済性に優れ、発電方式がシンプルであることか ら、現在、我が国では幅広く用いられている。化石燃料は埋蔵されている場所は偏在して おり、我が国ではそのほとんどを海外からの輸入に頼っている。このため、資源原産国の 政治・経済の動向によって供給量や価格の変動は避けられない。また、エネルギーセキュ リティーという観点では不安を抱えている[2]。

再生可能エネルギーは発電に用いる資源を太陽光や風力といった自然環境から手に入れ る為、1次エネルギーの価格変動や運搬といった点で化石燃料に対し利点がある。また、 これらの発電は小規模での設置が可能であるため、一般家庭、地域単位での導入が可能 で、実際に運用が始まっている。しかしながら、これらの発電手法は発電量を環境に依存 するため、安定した発電量が期待できず、ベースロード電源としての活用には多くの課題 を抱えている。

これらに対し、ウラン等の核分裂のエネルギーを用いる原子力発電は安定した発電を供 給することができ、コストが安いことから、ベースロード電源としての役割を果たしてき た。初期燃料のウランは輸入に頼ることになるが、燃料サイクルを行うことで準国産エネ ルギーとしてみなすことができる。しかしながら、発電後に残される高レベル放射性廃棄 物は 10~100 万年単位での管理が必要とされる。さらに 2011 年 3 月に起きた福島第一原子 力発電所の事故に見られるように、事故を起こした際の周囲への被害の大きさは甚大であ り、常に安全性の問題が付きまとう。

核融合エネルギーを用いた発電方法は資源の安定供給と安全性を同時に達成しうると期 待されている。この方式では重水素とトリチウムが燃料に用いられる。重水素は海水中に 0.015%の割合で含まれ、その総量は膨大である。トリチウムは天然にはほとんど存在しな いため、リチウムに核融合反応から生じた中性子を照射して生成させることが検討されて いる。その原料となるリチウムは海水中に 0.17mg/L と比較的高濃度で含まれるため、回収 も経済的に可能であると考えられている[3]。また、核融合発電では燃料として用いられる トリチウム、核融合中性子によって放射化された構造物が放射性廃棄物として発生するこ とになるが、いずれも高レベル廃棄物と比較すると放射能の減衰は桁違いに早く、100 年 単位の管理で処分できる。また、原子力発電で用いられる核分裂の連鎖反応を用いるのに 対し、核融合反応の連鎖反応を用いないため事故や操作ミスによる暴走の危険性がない。 この発電方式では電気出力で数百 MW から数 GW の出力の発電プラントの設計が計画されており、現在の火力・原子力発電の代替となることが期待される[4]。

このように、核融合発電は現在の発電方式が抱える問題を解決できる「夢のエネルギー」と考えられている。次節では、核融合エネルギーの概要について述べる。

1.2. 核融合点火

原子核同士が分裂または融合などの核反応が起こる際、反応の前後の質量差 Δm は次の 式(1.1)に従ってエネルギーを放出する。

$$\mathbf{E} = \Delta \mathbf{m}c^2 \tag{1.1}$$

核分裂反応時に放出されるこのエネルギーを利用したものが原子力発電である。一方、原子 核同士が融合したときにでるエネルギーを利用するのが核融合発電である。

Fig. 1.1 に核融合反応の概念図を示す。核融合反応を起こすためには、原子核同士を近づ ける必要がある。原子核同士には反発するクーロン力が働くため、この反発力に打ち勝つエ ネルギーを原子核に与える必要がある。粒子にエネルギーを与え加速し標的核に衝突させ ることで核融合反応が生じるが、このようなビーム核融合反応では投入エネルギーを上回 るエネルギーを取り出すことは難しい。燃料を加熱すると、マクスウェル分布に従い速度分 布中の高エネルギー側にいる原子核による核融合反応が発生するため、燃料に与える平均 的なエネルギーが小さくても核融合利得を得ることが可能となる。このように燃料温度を 上昇させ反応を起こす方式は熱核融合と呼ばれる。核融合エネルギーを利用した発電には、 エネルギー効率から熱核融合が候補として挙げられる。



Fig. 1.1 核融合反応

熱核融合による核融合エネルギーを実現するためには燃料を数千万度から数億度にまで 加熱する必要がある。この温度状態では燃料はプラズマ状態を取る。このような高温のプラ ズマ状態の燃料を閉じ込めるために大きく2種類の閉じ込め方式がある。

磁場核融合では強力な磁場を用いることで荷電粒子は磁力線にトラップし、プラズマを 閉じ込める。この方式では定常的なプラズマを用いて核融合反応を起こすため、密度が 10¹⁴ cm³の希薄な燃料ガスを用いる。特徴的な磁場配位としてはトカマク型、ステラレーター(へ リカル)型、逆磁場ピンチ型などが挙げられる。

一方、慣性核融合では定常的な閉じ込めを行わず、非定常なプラズマにより核融合反応を 起こす。エネルギー利用には繰り返しパルスによる運用が行われる。磁場核融合と反対に、 燃料は固体密度の1000倍程度の高密度プラズマを用いて核融合反応を起こす。実験室レベ ルの反応では、レーザーやイオンビームを用いてプラズマを形成する。本論文では主にレー ザーを用いた慣性核融合について述べる。

1.2.1. レーザー核融合

レーザー核融合では高密度に圧縮された燃料を初期に核融合反応で発生した a 粒子のエ ネルギーによって加熱し、核融合反応を起こす、というのがシナリオである。最初に核融合 反応を起こす領域はホットスポットと呼ばれる。

核融合反応を用いたエネルギー利用を考えるとき、当然ながら、反応を生じるために投入 されたエネルギーを核融合反応から出力されたエネルギーが上回らなければならない。こ のためには、核融合反応で生じたエネルギーによって更なる核融合反応を引き起こすこと が必要となる。DT 核融合反応で生じるエネルギーは次の式のように書ける。

$D + T = \alpha + n + 17.6 \text{ MeV}$ (1.2)

このエネルギーは質量比に応じて a 粒子、中性子にそれぞれ 1:4 で分配される。この内、中 性子は燃料プラズマとはほとんど反応せずに放出され、核融合炉ではこのエネルギーが電 カへと変換される。一方、a 粒子は電荷をもつためエネルギーを燃料プラズマに与える。燃 料プラズマでは a 粒子によるプラズマへのエネルギー付与(自己加熱)の他に、輻射によるエ ネルギー損失が生じる。a 粒子による加熱寄与を有意にするためには自己加熱の効果が損失 を上回らなければならない。これらの効果を考慮すると、点火には 5-10 keV の温度が必要 である。

最も一般的なレーザー核融合の方式としては中心点火方式が挙げられる。この方式では 燃料となる固体水素が球殻状に作製され、その中心の空間には飽和蒸気量の気体状の燃料 が充填されている。この燃料に四方八方からレーザーを照射することで中心に向かって加 速する。燃料に与えられた運動エネルギーは熱エネルギーへと変換されることによって中 心部にホットスポットが形成され、その周囲には低温の主燃料層が形成される。この過程を 爆縮と呼ぶ。爆縮の過程は準静的に行われることが望ましいが、実際には、流体不安定性に よりアブレーター/主燃料部、または主燃料部/ホットスポットが混ざり合う Mixing と呼ば れる現象が生じる[5]。このため、ふく射などのエネルギー損失が生じ、当初見積もられてい た数 10 kJ[6]に比べ大きなレーザーエネルギーが必要となっているのが現状である。米国 Lawrence Livermore National Laboratory (LLNL)ではメガジュール(MJ)クラスのレーザー、 National Ignition Facility (NIF)を用いて実験を行っている。この実験では a 加熱によって燃料 に与えたエネルギーに対し同程度かそれ以上の核融合出力を得ることに成功しているが [7][8]、レーザーエネルギーと同量の核融合出力を得る「点火」は未だ達成できずにいるの が現状である。中心点火方式では流体不安定性を低減させるため、燃料ターゲットのサポー トや燃料充填用の Fill tube の最適化など徹底的に初期の非対称性を取り除くことに努力が 注がれている[9]。

1.2.2. 高速点火

1985年にチャープパルス増幅による超短パルスのペタワット(PW)オーダーのピークパ ワーを持つレーザーが可能となり、燃料をレーザーによって直接加熱するという方式が提 唱された[10][11]。この方式では高密度コアが外部から急速に加熱するため、高速点火方式 と呼ばれる。この方式では中心点火方式で同時に行われていた高温部の形成と高密度部の 形成を分離した方式となる。ここでは、燃料を圧縮し高密度コアを形成するナノ秒のレー ザーを圧縮レーザー、短パルスで燃料コアにエネルギーを投入するレーザーを加熱レーザ ーと呼ぶ。この方式ではホットスポットとその周囲の主燃料という2層構造をとらなくて もよいため、主燃料のみの小規模な燃料プラズマのみを形成すればよい[12]。また、爆縮に よる高温部生成の必要がないため爆縮速度への制限がなく、自由な圧縮レーザーのパルス 波形が可能となる。これらの状況より、レーザー核融合の潜在的な懸念事項であった流体 不安定性の制限から解放された点火方式といえる。

高速点火方式では加熱レーザーのエネルギーを高速電子、陽子またはイオンなどに変換 することで燃料へのエネルギー付与を行う。加熱レーザーは燃料が圧縮される途中又は最 大圧縮のタイミングで照射されるため、燃料には加熱レーザーの侵入経路がアブレーショ ンプラズマで妨げられないようにガイドコーンが取り付けられる。Fig. 1.2 に典型的な高 速点火用の燃料ターゲットを示す。



Fig. 1.2 典型的な高速点火用ガイドコーン付燃料ターゲット

大阪大学レーザー科学研究所をはじめとして各国で、本方式による核融合点火の実証を 目指して研究が行われてきた。Kodama 等は本ターゲットを用い、圧縮した重水素化プラス チックターゲットのコアを PW レーザーによって発生した高速電子で加熱することにより、 1000 倍の中性子発生の増加を確認した[13][14]。また、ロチェスター大学の Laboratory for Laser Energetics (LLE)でも同様の実験が進められ、2016 年には Jarrott 等が 7 %の効率でレー ザーエネルギーを燃料に付与したことを報告している[15][16]。

一方で、高強度レーザーを用いた加熱過程には課題が残されている。

2010年代に入り、大阪大学ではkJクラスの加熱レーザーを用いた加熱実験が行われたが、 有意な加熱の信号をとらえることができなかった。基礎実験による加熱効率の見積もりで は当初の予測に比べ非常に小さく0.3%であった[17]。Fujioka等は、これらは①球殻(シェル) 燃料の圧縮が不十分であること、②加熱レーザーによって生成される電子ビームのエネル ギー分布が高すぎること、③電子ビームの発散角が大きく、燃料部に到達する電子が少ない こと、が原因であると報告している[18]。

上記の問題点を克服するために、高速点火方式のシナリオの修正が行われた。

限られたレーザービーム数とエネルギーでシェルを高密度に圧縮することは流体不安定 性の影響により難しく、X線バックライトを用いた計測でもプラズマを確認することがで きなかった。一方、中実のポリスチレン製ビーズを用いることで、球心衝撃波によって固体 密度の数十倍に圧縮されたプラズマが観測された[19]。この最大密度はシェルを用いた際の 理論的な値に比べると10倍程度低いものの、流体不安定性の影響が小さく、レーザーパル ス波形を制御することで数百倍まで圧縮が可能との予測もある[18]。ホットスポットを形成 する必要がある中心点火方式とは異なり、高速点火方式では高密度燃料さえ形成できれば よいため、中実球燃料による点火デザインの構築が進められている。

ガイドコーンに加熱用の短パルスレーザーが照射された際、相対論的な高速電子ビーム (Relativistic Electron Beam: REB)が発生する。高速点火方式ではこれらの高速電子が高密度 燃料にエネルギーを付与することにより加熱を行うが、燃料へのエネルギー付与効率は高 速電子のエネルギーに反比例するため、1 MeV 程度のスロープ温度を持つ REB が加熱に対 して最適とされる。しかしながら、実験で観測された電子温度のスペクトルは 15 MeV 成分 が大半を占めており、効率的な加熱には不適であった[17]。REB がこのような電子スペクト ルを持つ原因は、加熱レーザーのプレパルス(ペデスタル成分)によりメインパルスが照射さ れる際に、コーン内面に形成されたプレフォームドプラズマとメインパルスが相互作用す るためとされた[20]。加熱レーザーのメインパルスのコントラスト改善することによって電 子温度の温度を制御することが確認された[21]。

レーザーが照射された金属コーンから発生する高速電子はコーンティップ裏面から発散 しながら放出される。一方、燃料プラズマは、通常、コーンティップ径よりも小さく圧縮さ れるため、燃料プラズマに作用する電子は生成された高速電子のうちの4割程度に限られ ていることが問題であった。Fujioka 等は電子ビームを収束させ衝突確率を増大させるため、 レーザー誘起の超強力磁場を用いて電子ビームをガイディングするアイデアを提案してい る[18][22]。

また、加熱の効果を測定するうえで非常に重要な中性子計測も深刻な問題に直面してい た。基礎実験では、重水素化ポリスチレンターゲットから発生する中性子の発生数およびエ ネルギースペクトルなどの計測を行っていた。しかし、高強度の加熱レーザーを照射すると、 発生した高速電子の制動放射による高輝度の硬 X 線が発生し、ターゲットチャンバーをは じめとした金属製の構造体と光核反応を起こすことで中性子が発生する。中性子計測にお いてはこれらの光核反応による中性子の信号に核融合中性子の信号が埋もれてしまい、子 計測ができないことが問題となっていた[23][24]。

以上のように、高速点火核融合の基礎研究においては、その実験デザインや測定環境が当 初の認識から大きく変化しており、新しい実験デザイン・実験手法が求められるようになっ た。

1.3. 核融合の燃料

核融合発電の燃料は最も反応の起こしやすい重水素と三重水素が用いられる。レーザー 核融合では、レーザーを用いて高密度・高温のプラズマを形成するが、これには燃料の空 間的な分布が大きく影響する。このため、燃料には高精度な製造技術が求められる。

Fig. 1.3 にレーザー核融合の典型的な燃料を示す。レーザー核融合燃料は主燃料である 重水素・三重水素(DT)の固体層を持つ球殻(シェル)構造の燃料が用いられる。このシェル の内部は DT ice の飽和蒸気で満たされており、ホットスポットを形成する。これらの主燃 料の周囲にはアブレーターと呼ばれる固体層が設けられている。この層は燃料の支持、蒸 発防止を担うとともに、レーザーによる照射を受け外側に向かい噴出(アブレーション) し、燃料に中心向きの加速度を与える「ロケット燃料」のような役割をする。実際には固 体燃料層は DT の三重点温度である 18 K 付近まで冷却された環境で作製される。このた め、実際には最初に高精度なアブレータカプセルが作製され、カプセル内に燃料水素を充 填しながら固化を行うというのが一般的である。

燃料サイズは使用するレーザー装置のエネルギーに大きく依存するが直径 0.5-3 mm 程 度である。カプセルの外径、内径などはレーザーのパルス波形とともに爆縮の特性を決め る大きなパラメータとなるため、実験によって様々なデザインが考えられる。レーザー光 を直接アブレーターに照射する直接照射型では流体力学的効率(吸収エネルギーに対する運 動エネルギーの割合)が比較的高い効率で得られるため、燃料直径に対しアブレータカプセ ルの膜厚は薄くなる。一方、NIF で行われるようなレーザー光を一度 X 線に変換してから 燃料に照射する間接照射型では、プラズマの温度が比較的低いため、厚いアブレーターカ プセルが用いられる。 アブレーターカプセルには構成元素に対しても制限がある。爆縮途中での燃料の先行加熱(プリヒート)を抑えるため、アブレーター層は低原子番号の原子で構成されていることが望ましい。化学的な安定性や作製手法の多様性から高分子製のカプセルが多く用いられる。また、ふく射が CH より少ない Be カプセルや初期の固体密度が高くアブレーター層を薄くできる多結晶ダイアモンドで構成されたアブレーターも用いられることがある。



Fig. 1.3 レーザー核融合燃料の模式図

基礎実験用の燃料ターゲットでは、実験環境・目的によって形状や構成元素などの選択 肢が考えられる。また、近年ではプラズマ実験のために半球状のシェルや、中実球ターゲ ットなどそのサイズ、形状は様々なバリエーションの要求が増加しており、実験の数だけ ターゲットの種類がある、と言っても過言ではない。これに対応して、燃料作製技術もこ れらの要求に対応していくことが求められるようになった。

1.4. トレーサーターゲット

高速点火核融合実験の場合、実験で計測対象となる燃料の加熱は数10 µm 程度、1 ns 以 内で終了してしまう現象である。このため、計測には高度な技術が求められるとともに、 測定対象に合わせて適切に実験条件をデザインする必要がある。大型レーザーのレーザー 条件を変更することは困難であるため、燃料ターゲットを工夫することによって実験デザ インのバリエーションが生み出される。

実験デザインの工夫として、特定のプラズマ現象を計測するために燃料にトレーサーを 添加する手法が用いられる。この手法では、燃料に添加したトレーサー原子から発生する X線や、トレーサー原子の起こす核反応などを計測することにより特定の現象を測定する ことができる。

X線分光用のトレーサーを用いることで、爆縮中にトレーサーから放出された特性X線 を分光し結像することで画像として計測する単色イメージャーによる計測[25][15]や、X線 のシフトによる電子温度[26][27][28][29]の測定などが行われてきた。トレーサー原子としては Cu、Ti など燃料プラズマに対し透過率の高い特性 X 線を放出する金属原子や Cl や Br、I など化学的に添加しやすいハロゲン原子、ガスとして燃料内部に充填され用いられる Ar、Kr[30][29]などの希ガス原子などが挙げられる。

一方、核反応を利用した計測としては、核融合燃料である D や T を添加し、核融合反応 を利用したものがある。爆縮過程中のホットスポットと燃料の混合の様子を、重水素化プ ラスチックで作製したカプセルにトリチウムガスを充填し、発生した DT 中性子によって 計測した研究が報告されている[31]。また、プラスチックカプセル中に Si 原子を添加して おき、DT 中性子によって ²⁸Si(n,p)²⁸Al の核反応で生じた ²⁸Al の放射能を測定する技術があ る[32][33]。

トレーサー添加ターゲットを用いた測定を行う際には、初期燃料に含有しているトレー サーの濃度、分布が既知である必要がある。トレーサー原子は上記のように原子番号や核 特性によって選択されるが、燃料作製においては物理特性や化学特性も含めて考慮する必 要がある。実際に燃料として準備する際には計測目的や作製手法による条件や制限を十分 に考慮する必要がある。

1.5. 本研究の目的

以上のように高速点火方式の実験デザインは数年で大きく変化してきた。

流体不安定性の影響を低減させ、高密度コアを安定して作製するために、従来用いられ てきたシェルターゲットから中実球ターゲットへの変更が行われた。また、加熱レーザー によって生成された高速電子の発散角が加熱効率に大きな影響を与えていることが明らか となり、発散角の制御およびその効果の正確な測定技術が求められるようになった。ま た、加熱効果を直接観測するための中性子計測環境は、硬X線やそれに伴い発生する光核 中性子によって従来の手法では満足な計測が行えない状況にあった。

本研究では、上記問題点を解決するために、高速点火核融合実験のためのトレーサー添加ターゲットの作製技術の開発を行う。

8

第1章の参考文献

- [1] 小西 哲之, エネルギー問題の誤解 いまそれをとく: エネルギーリテラシーを高め るために, 化学同人, 2013.
- [2] エネルギー白書, (n.d.).
- [3] 吉塚和治、, 近藤正聡, 海水からのリチウム回収, J. Plasma Fusion Res. 87 (2011) 795-800.
- [4] テキスト 核融合炉, J. Plasma Fusion Res. 87 (n.d.).
- J. Lindl, O. Landen, J. Edwards, E. Moses, Review of the national ignition campaign 2009-2012, Phys. Plasmas. 21 (2014). doi:10.1063/1.4865400.
- [6] J. NUCKOLLS, L. WOOD, A. THIESSEN, G. ZIMMERMAN, Laser Compression of Matter to Super-High Densities: Thermonuclear (CTR) Applications, Nature. 239 (1972) 139–142. doi:10.1038/239139a0.
- [7] O.A. Hurricane, D.A. Callahan, D.T. Casey, P.M. Celliers, C. Cerjan, E.L. Dewald, T.R. Dittrich, T. Döppner, D.E. Hinkel, L.F.B. Hopkins, J.L. Kline, S. Le Pape, T. Ma, A.G. MacPhee, J.L. Milovich, A. Pak, H.-S. Park, P.K. Patel, B.A. Remington, J.D. Salmonson, P.T. Springer, R. Tommasini, Fuel gain exceeding unity in an inertially confined fusion implosion, Nature. 506 (2014) 343–348. doi:10.1038/nature13008.
- [8] O.A. Hurricane, D.A. Callahan, D.T. Casey, E.L. Dewald, T.R. Dittrich, T. Döppner, S. Haan, D.E. Hinkel, L.F. Berzak Hopkins, O. Jones, A.L. Kritcher, S. Le Pape, T. Ma, A.G. MacPhee, J.L. Milovich, J. Moody, A. Pak, H.-S. Park, P.K. Patel, J.E. Ralph, H.F. Robey, J.S. Ross, J.D. Salmonson, B.K. Spears, P.T. Springer, R. Tommasini, F. Albert, L.R. Benedetti, R. Bionta, E. Bond, D.K. Bradley, J. Caggiano, P.M. Celliers, C. Cerjan, J.A. Church, R. Dylla-Spears, D. Edgell, M.J. Edwards, D. Fittinghoff, M.A. Barrios Garcia, A. Hamza, R. Hatarik, H. Herrmann, M. Hohenberger, D. Hoover, J.L. Kline, G. Kyrala, B. Kozioziemski, G. Grim, J.E. Field, J. Frenje, N. Izumi, M. Gatu Johnson, S.F. Khan, J. Knauer, T. Kohut, O. Landen, F. Merrill, P. Michel, A. Moore, S.R. Nagel, A. Nikroo, T. Parham, R.R. Rygg, D. Sayre, M. Schneider, D. Shaughnessy, D. Strozzi, R.P.J. Town, D. Turnbull, P. Volegov, A. Wan, K. Widmann, C. Wilde, C. Yeamans, Inertially confined fusion plasmas dominated by alpha-particle self-heating, Nat. Phys. 12 (2016) 1–8. doi:10.1038/nphys3720.
- C.R. Weber, D.T. Casey, D.S. Clark, B.A. Hammel, A. MacPhee, J. Milovich, D. Martinez, H.F. Robey, V.A. Smalyuk, M. Stadermann, P. Amendt, S. Bhandarkar, B. Chang, C. Choate, J. Crippen, S.J. Felker, J.E. Field, S.W. Haan, S. Johnson, J.J. Kroll, O.L. Landen, M. Marinak, M. Mcinnis, A. Nikroo, N. Rice, S.M. Sepke, Improving ICF implosion performance with alternative capsule supports, Phys. Plasmas. 24 (2017). doi:10.1063/1.4977536.

- [10] N.G. Basov, S.Y. Gus'kov, L.P. Feokistov, Thermonuclear gain of ICF targets with direct heating of ignitor, J. Sov. Laser Res. 13 (1992) 396–399. doi:10.1007/BF01124892.
- M. Tabak, J. Hammer, M.E. Glinsky, W.L. Kruer, S.C. Wilks, J. Woodworth, E.M.
 Campbell, M.D. Perry, R.J. Mason, Ignition and high gain with ultrapowerful lasers*, Phys.
 Plasmas. 1 (1994) 1626–1634. doi:10.1063/1.870664.
- [12] 白神宏之, 爆縮研究の進展, J. Plasma Fusion Res. 81 (2005) 19-28.
- [13] R. Kodama, P. a Norreys, K. Mima, a E. Dangor, R.G. Evans, H. Fujita, Y. Kitagawa, K. Krushelnick, T. Miyakoshi, N. Miyanaga, T. Norimatsu, S.J. Rose, T. Shozaki, K. Shigemori, a Sunahara, M. Tampo, K. a Tanaka, Y. Toyama, T. Yamanaka, M. Zepf, Fast heating of ultrahigh-density plasma as a step towards laser fusion ignition., Nature. 412 (2001) 798–802. doi:10.1038/35090525.
- R. Kodama, H. Shiraga, K. Shigemori, Y. Toyama, S. Fujioka, H. Azechi, H. Fujita, H.
 Habara, T. Hall, Y. Izawa, T. Jitsuno, Y. Kitagawa, K.M. Krushelnick, K.L. Lancaster, K.
 Mima, K. Nagai, M. Nakai, H. Nishimura, T. Norimatsu, P.A. Norreys, S. Sakabe, K.A.
 Tanaka, A. Youssef, M. Zepf, T. Yamanaka, Fast heating scalable to laser fusion ignition., Nature. 418 (2002) 933–934. doi:10.1038/418933a.
- [15] L.C. Jarrott, M.S. Wei, C. McGuffey, A.A. Solodov, W. Theobald, B. Qiao, C. Stoeckl, R. Betti, H. Chen, J. Delettrez, T. Döppner, E.M. Giraldez, V.Y. Glebov, H. Habara, T. Iwawaki, M.H. Key, R.W. Luo, F.J. Marshall, H.S. McLean, C. Mileham, P.K. Patel, J.J. Santos, H. Sawada, R.B. Stephens, T. Yabuuchi, F.N. Beg, Visualizing fast electron energy transport into laser-compressed high-density fast-ignition targets, Nat. Phys. advance on (2016) 1–7. doi:10.1038/nphys3614.
- [16] L.C. Jarrott, C. McGuffey, F.N. Beg, A.A. Solodov, W. Theobald, B. Qiao, C. Stoeckl, R. Betti, H. Chen, J. Delettrez, T. Döppner, E.M. Giraldez, V.Y. Glebov, H. Habara, T. Iwawaki, M.H. Key, R.W. Luo, F.J. Marshall, H.S. McLean, C. Mileham, P.K. Patel, J.J. Santos, H. Sawada, R.B. Stephens, T. Yabuuchi, M.S. Wei, Transport and spatial energy deposition of relativistic electrons in copper-doped fast ignition plasmas, Phys. Plasmas. 24 (2017). doi:10.1063/1.4999108.
- [17] S. Fujioka, T. Johzaki, Y. Arikawa, Z. Zhang, A. Morace, T. Ikenouchi, T. Ozaki, T. Nagai, Y. Abe, S. Kojima, S. Sakata, H. Inoue, M. Utsugi, S. Hattori, T. Hosoda, S.H. Lee, K. Shigemori, Y. Hironaka, A. Sunahara, H. Sakagami, K. Mima, Y. Fujimoto, K. Yamanoi, T. Norimatsu, S. Tokita, Y. Nakata, J. Kawanaka, T. Jitsuno, N. Miyanaga, M. Nakai, H. Nishimura, H. Shiraga, H. Nagatomo, H. Azechi, Heating efficiency evaluation with mimicking plasma conditions of integrated fast-ignition experiment, Phys. Rev. E Stat. Nonlinear, Soft Matter Phys. 91 (2015) 1–8. doi:10.1103/PhysRevE.91.063102.
- [18] S. Fujioka, Y. Arikawa, S. Kojima, T. Johzaki, H. Nagatomo, H. Sawada, S.H. Lee, T.

Shiroto, N. Ohnishi, A. Morace, X. Vaisseau, S. Sakata, Y. Abe, K. Matsuo, K.F. Farley
Law, S. Tosaki, A. Yogo, K. Shigemori, Y. Hironaka, Z. Zhang, A. Sunahara, T. Ozaki, H.
Sakagami, K. Mima, Y. Fujimoto, K. Yamanoi, T. Norimatsu, S. Tokita, Y. Nakata, J.
Kawanaka, T. Jitsuno, N. Miyanaga, M. Nakai, H. Nishimura, H. Shiraga, K. Kondo, M.
Bailly-Grandvaux, C. Bellei, J.J. Santos, H. Azechi, Fast ignition realization experiment with
high-contrast kilo-joule peta-watt LFEX laser and strong external magnetic field, Phys.
Plasmas. 23 (2016). doi:10.1063/1.4948278.

- [19] H. Sawada, S. Lee, T. Shiroto, H. Nagatomo, Y. Arikawa, H. Nishimura, T. Ueda, K. Shigemori, A. Sunahara, N. Ohnishi, F.N. Beg, W. Theobald, F. Pérez, P.K. Patel, S. Fujioka, Flash Kα radiography of laser-driven solid sphere compression for fast ignition, Appl. Phys. Lett. 108 (2016) 254101. doi:10.1063/1.4954383.
- [20] S. Kojima, Y. Arikawa, A. Morace, M. Hata, H. Nagatomo, T. Ozaki, S. Sakata, S.H. Lee, K. Matsuo, K.F.F. Law, S. Tosaki, A. Yogo, T. Johzaki, A. Sunahara, H. Sakagami, M. Nakai, H. Nishimura, H. Shiraga, S. Fujioka, H. Azechi, Energy distribution of fast electrons accelerated by high intensity laser pulse depending on laser pulse duration, J. Phys. Conf. Ser. 717 (2016). doi:10.1088/1742-6596/717/1/012102.
- Y. Arikawa, S. Kojima, A. Morace, M. Hata, S. Sakata, S. Fujioka, T. Kawashima, Y. Hironaka, K. Shigemori, Y. Abe, Z. Zhang, X. Vaisseau, S. Lee, T. Gawa, K. Matsuo, K.F.F. Law, Y. Kato, S. Matsubara, S. Tosaki, A. Yogo, H. Nagatomo, S. Tokita, Y. Nakata, T. Jitsuno, N. Miyanaga, J. Kawanaka, Y. Fujimoto, K. Yamanoi, T. Norimatsu, M. Nakai, H. Nishimura, H. Shiraga, H. Azechi, A. Sunahara, T. Johzaki, T. Ozaki, H. Sakagami, Improvement in the heating efficiency of fast ignition inertial confinement fusion through suppression of the preformed plasma, Nucl. Fusion. 57 (2017) 66022. doi:10.1088/1741-4326/aa6781.
- [22] S. Fujioka, Z. Zhang, K. Ishihara, K. Shigemori, Y. Hironaka, T. Johzaki, A. Sunahara, N. Yamamoto, H. Nakashima, T. Watanabe, H. Shiraga, H. Nishimura, H. Azechi, Kilotesla magnetic field due to a capacitor-coil target driven by high power laser., Sci. Rep. 3 (2013) 1170. doi:10.1038/srep01170.
- [23] Y. Arikawa, T. Nagai, H. Hosoda, Y. Abe, S. Kojima, S. Fujioka, N. Sarukura, M. Nakai, H. Shiraga, T. Ozaki, H. Azechi, The photonuclear neutron and gamma-ray backgrounds in the fast ignition experiment, Rev. Sci. Instrum. 83 (2012) 10–13. doi:10.1063/1.4732180.
- [24] Y. Abe, H. Hosoda, Y. Arikawa, T. Nagai, S. Kojima, S. Sakata, H. Inoue, Y. Iwasa, K. Iwano, S. Fujioka, H. Shiraga, M. Nakai, T. Norimatsu, H. Azechi, Development of multichannel time-of-flight neutron spectrometer for the fast ignition experiment, Plasma Fusion Res. 9 (2014) 5–7. doi:10.1585/pfr.9.4404110.
- [25] C. Stoeckl, G. Fiksel, D. Guy, C. Mileham, P.M. Nilson, T.C. Sangster, M.J. Shoup, W.

Theobald, A spherical crystal imager for OMEGA EP, Rev. Sci. Instrum. 83 (2012) 33107. doi:10.1063/1.3693348.

- [26] H. Nishimura, Z. Zhang, T. Namimoto, S. Fujioka, M. Koga, H. Shiraga, T. Ozaki, T. Iwawaki, T. Morioka, K. Morita, H. Habara, K.A. Tanaka, M. Nishikino, T. Kawachi, A. Sagisaka, S. Orimo, A.S. Pirozhkov, K. Ogura, A. Yogo, H. Kiriyama, K. Kondo, T. Shimomura, S. Kanazawa, Y. Okano, H. Azechi, Absolute Kα line spectroscopy for coneguided fast-ignition targets, EPJ Web Conf. 59 (2013) 13008. doi:10.1051/epjconf/20135913008.
- [27] M.A. Barrios, D.A. Liedahl, M.B. Schneider, O. Jones, G. V. Brown, S.P. Regan, K.B. Fournier, A.S. Moore, J.S. Ross, O. Landen, R.L. Kauffman, A. Nikroo, J. Kroll, J. Jaquez, H. Huang, S.B. Hansen, D.A. Callahan, D.E. Hinkel, D. Bradley, J.D. Moody, Electron temperature measurements inside the ablating plasma of gas-filled hohlraums at the National Ignition Facility, Phys. Plasmas. 23 (2016). doi:10.1063/1.4948276.
- [28] H.M. Johns, R.C. Mancini, P. Hakel, T. Nagayama, V.A. Smalyuk, S.P. Regan, J. Delettrez, Compressed shell conditions extracted from spectroscopic analysis of Ti K-shell absorption spectra with evaluation of line self-emission, Phys. Plasmas. 21 (2014). doi:10.1063/1.4892554.
- [29] H. Chen, T. Ma, R. Nora, M.A. Barrios, H.A. Scott, M.B. Schneider, L. Berzak Hopkins, D.T. Casey, B.A. Hammel, L.C. Jarrott, O.L. Landen, P.K. Patel, M.J. Rosenberg, B.K. Spears, On krypton-doped capsule implosion experiments at the National Ignition Facility, Phys. Plasmas. 24 (2017). doi:10.1063/1.4993049.
- [30] H. Azechi, H. Shiraga, N. Miyanaga, H. Nishimura, Review of ICF plasma diagnostics, Fusion Eng. Des. 34–35 (1997) 37–44.
- [31] V.A. Smalyuk, R.E. Tipton, J.E. Pino, D.T. Casey, G.P. Grim, B.A. Remington, D.P. Rowley, S. V. Weber, M. Barrios, L.R. Benedetti, D.L. Bleuel, D.K. Bradley, J.A. Caggiano, D.A. Callahan, C.J. Cerjan, D.S. Clark, D.H. Edgell, M.J. Edwards, J.A. Frenje, M. Gatu-Johnson, V.Y. Glebov, S. Glenn, S.W. Haan, A. Hamza, R. Hatarik, W.W. Hsing, N. Izumi, S. Khan, J.D. Kilkenny, J. Kline, J. Knauer, O.L. Landen, T. Ma, J.M. McNaney, M. Mintz, A. Moore, A. Nikroo, A. Pak, T. Parham, R. Petrasso, D.B. Sayre, M.B. Schneider, R. Tommasini, R.P. Town, K. Widmann, D.C. Wilson, C.B. Yeamans, Measurements of an Ablator-Gas Atomic Mix in Indirectly Driven Implosions at the National Ignition Facility, Phys. Rev. Lett. 112 (2014) 25002. doi:10.1103/PhysRevLett.112.025002.
- [32] H. Azechi, T. Jitsuno, T. Kanabe, M. Katayama, K. Mima, N. Miyanaga, M. Nakai, S. Nakai,
 H. Nakaishi, M. Nakatsuka, A. Nishiguchi, P.A. Norrays, Y. Setsuhara, M. Takagi, M.
 Yamanaka, C. Yamanaka, High-density compression experiments at ILE, Osaka, Laser Part.
 Beams. 9 (1991) 193. doi:10.1017/S0263034600003281.

[33] M. Takagi, T. Norimatsu, T. Yamanaka, S. Nakai, Fabrication of deuterated-tritiated polystyrene shells for laser fusion experiments by means of an isotope exchange reaction, J. Vac. Sci. Technol. A Vacuum, Surfaces, Film. 10 (1992) 239–242. doi:10.1116/1.578142.

2. マイクロ流体デバイスによるエマルション作製手

法の開発

本章ではレーザー核融合の典型的な形状である球殻又は中実球燃料/燃料容器の作製方 法について述べる。

2.1. 核融合燃料の作製手法

2.1.1. レーザー核融合の燃料

レーザー核融合において、燃料の圧縮、加熱を行う際の流体不安定性は最大の課題である。 これら流体不安定性を抑えるために、燃料形状は高精度な条件が求められる。また、発電炉 では 4-10Hz のショット分の燃料を供給する必要があるため、大量生産技術の開発も課題と なる。

カプセル型の燃料容器作製工程について述べる。典型的な球殻型燃料ターゲットは核融 合燃料である固体 DT とその燃料の外側にある燃料容器から構成される。燃料容器は DT ガ スを充填した際の蒸発防止容器としての役割の他、X 線やレーザーが照射されるアブレー ターとしてのはたらきを持つ。レーザーが照射されたアブレーターは急速にプラズマ化し て外側に向かって噴出(アブレーション)し、この反作用によって核融合燃料は中心に向かっ て加速していく。すなわち、アブレーターはレーザーのエネルギーを核融合燃料の運動量に 変換する役割を担っており、その構成元素や形状などは爆縮の重要なパラメーターとなっ ている。高 Z 元素を含有したアブレーターを用いると、高 Z 元素から放射される X 線によ って燃料が爆縮途中に先行加熱してしまうプリヒートと呼ばれる問題があるため、炭素以 下の低 Z の元素で構成された有機物やダイアモンド、Be などのアブレーターが用いられる [1]。中でも取り扱いや成形が比較的容易なことから、高分子材料を用いたカプセルが燃料 容器として長らく用いられている。

2.1.2. 燃料容器の作製

高分子製のカプセルの作製は、溶媒に溶かした高分子を界面張力によって球形に成形し 溶媒を除去して作成するエマルション法と、鋳型にコーティングを行い、最後に鋳型を取り 除いて作成する気相重合(CVD)法の2つに分けられる。Fig. 2.4 に2つの手法の概念図を示 す。

(a) Emulsion method



Fig. 2.4 シェルターゲットの作製手法(a)エマルション法と(b)気相重合法

エマルション法では、まず水相が分散している油相をさらに水相に分散させることで二 重のエマルション(Water-in-Oil-in-Water(W/O/W)エマルション)を作製する。カプセルを構 成するポリマーにはポリスチレンなどの非晶質性のポリマーが用いられる。膜の均一性や 真球性を向上させるために、撹拌しながら溶媒を除去する技術[2][3][4][5]や外側の水相の界 面張力を制御する技術[6]などが開発されてきた。この手法では界面張力によって成形され るため、表面状態が平滑に仕上がる。また、エマルションの作製を流体コントロールしなが ら行うことで大量生産が可能となる。しかしながら、溶媒を除去した後のポリマー中に微小 な気泡が見られることなどが問題として挙げられる。

気相重合法では、エマルション法で作製した熱分解性のポリマーカプセルを鋳型にし、2 重結合をもつ有機ガスを鋳型表面で気相重合させる。熱分解性のポリマーにはポリ α メチ ルスチレン(Poly-α-methyl styrene: PAMS)がよく用いられる。重合させるためにチャンバー内 にプラズマを放電させ、ラジカル化した有機ガスが基盤である鋳型カプセル表面に積層す る[7]。チャンバー内に可動式のパンを導入することで鋳型カプセルを動かし、表面に均一 にコーティングを施す技術が開発されている[8]。コーティング終了後、300℃ほどの熱で内 部の熱分解性高分子を気体に分解し、拡散によって取り除く。この手法では、エマルション 法に見られたような高分子内の気泡無く作成できる。また、コーティング途中で導入ガス分 圧を制御することで層内のドーパントの密度勾配を作ることができる。この手法では、コー ティングによって重合されたポリマーの特性(分子構造、組成等)がコーティング、又は、保 管条件によって変化してしまう点[9][10][11][12]や、コーティング時に表面にドーム状の構造が成長してしまう点[8][7]などが課題として挙げられる。

阪大レーザー研ではエマルション法によるカプセル作製が行われてきた。米国をはじめ、 フランス、中国などのチームは CVD 法を用いたカプセル作製が開発されてきた。

本研究ではエマルション法において最初の過程に当たるW/O/Wエマルション作製法についての開発を行った。

2.1.3. 流体デバイスによるエマルション作製手法

エマルション法によって作製された燃料容器が導入された当初、W/O エマルション (W/O)/W エマルションは水相、油相の溶液をスクリュー瓶にいれ、ハンドシェイクによっ てエマルションを作製していた。この手法では、作製されたエマルションの粒径が大きな分 散を持つ。大きな分散を持ったエマルションは溶媒を除去する際の条件の再現性や、必要な ターゲットの選別に多大な労力がかかることなどを加味すると好ましくない。

均一サイズのエマルションを作製するための方法に µm から mm サイズの流路を用いた ドロプレットジェネレーターが挙げられる。ドロプレットジェネレーターはドロプレット になる分散相(Dispersed Phase)とその周りを囲む連続相(Continuous Phase)を狭い流路中に流 し込み、流体のせん断応力や界面張力によってドロプレットを生成する。このとき流体が層 流であれば安定してドロプレットが生成でき、流量比を調整することでドロプレットのサ イズも制御可能である。これらのデバイスは化学をはじめ、ドラッグデリバリー、ライフサ イエンス、流体工学、工業分野にて利用が広がってきている[13]。このような流路を用いた デバイスをマイクロ流体デバイスと呼ぶ。

マイクロ流体デバイスは独立に流れる分散流と連続流を、ノズルなどを用いて交差させ、 界面を作製する。界面は時間とともに自然と変形していき、界面の不安定性が成長する。不 安定性が十分成長した段階で、分散流の一部が界面張力と連続流によるせん断によって切 り離されドロプレットが生成する。このように流体にかかる圧力以外、局所的に外力をかけ ることがなく受動的にドロプレットを生成するため、均一なドロプレットの生成が可能と なる。

マイクロ流体デバイスは、流体の流れ方やドロプレット生成メカニズムによって Co-flow、 Flow-focus、T-junction の大きく3つの種類に分類される。Fig. 2.5 に3つのマイクロ流体デ バイスを示す[14]。

16



Fig. 2.5 マイクロ流体デバイスの種類 [14]

Co-flow タイプは最も初期から知られているマイクロ流体デバイスである。この方式では 入れ子にしたキャピラリーを通して分散流と連続流が平行に流れる。ノズルから流れ込ん だ分散流は界面張力と連続流のせん断によってドロプレットを生成する。Flow-focus タイプ では対向して流れ込む連続流によって分散流がピンチされる。この方式では分散流が流れ 込む流路径、分散流の先端とオリフィスの距離、オリフィス径などの形状的なパラメーター が重要となる。Fig. 2.5 のような平面状を流路を設けた Lab-on-chip と呼ばれる形状のデバ イスが最も一般的である。T-junction タイプのデバイスは連続流の流れの向きに対し、分散 流が垂直方向から交わる。このデバイスも平面状に流路を設けたり、T 字配管を利用したデ バイスなどが知られる[15][16]。

これまで、レーザー核融合研究には、三重オリフィス(Triple-orifice)型流体デバイスによる エマルション作製行われてきた。Fig. 2.6 に Tiriple-orifice 型流体デバイスの概要を示す。こ のデバイスは co-flow タイプと Flow-focus タイプをハイブリッドしたデバイスである。W1 相を放出する 1st ノズル、O 相を放出する 2nd ノズルによる W/O エマルションの生成部は co-flow モード、生成した W/O エマルションが 3rd オリフィスにおいて W2 相にピンチされ る箇所は Flow-focus タイプとなっている。作製されたエマルションの粒径の分散はハンド シェイクを用いたときに比べ格段に向上し、安定したターゲット供給ができるようになっ ただけでなく、乾燥時の oil 相の濃度変化や真球性向上のための開発など、再現性を必要と する研究が可能となった。



Fig. 2.6 Tiriple-orifice 法の概略図[17]

Tiriple-orifice 法は上述のようにレーザー核融合分野において広く用いられているもの の、3つのノズルを含め部品が多く、エマルション作製の重要なパラメーターとなるノズル の位置関係の調整に熟練が必要とされていた。また、デバイスを構成する部品は大部分が特 注によるもので、基本的には一組のデバイスを繰り返し使用することが基本であった。これ らの部品は特注品のため単価が高く交換や変更は頻繁にはできないため、新物質を使用し たエマルションや、これまでとは異なったサイズ領域のエマルションの開発を行う上で大 きな障壁となっていた。

また、このデバイスによる W/O/W エマルションの作製は W1 相を放出する 1st ノズル、 O 相を放出する 2nd ノズルによる W/O エマルションの生成部、生成した W/O エマルション が 3rd オリフィスにおいて W2 相にピンチされる W/O/W エマルション生成部、の 2 段階(2 step)に分かれていることが分かる。通常 2-step でエマルションを作製すると、それぞれの過 程におけるサイズのばらつきが多分散を引き起こす。これによって外径および内径を同時 に制御することが難しいという問題点があった。

レーザー核融合分野においては、Triple-orifice 法が広く用いられているが、近年、マイク ロ流体デバイスの導入例が見られる。Triple-orifice 法よりも制御性、柔軟性を持ったデバイ スとして T-junction 型[16] [18]や Lab-on-chip 型[15]のデバイスが導入されている。しかしな がら、T-junction 型や Lab-on-chip 型では、連続相および分散相がデバイスの壁面に接しな がら流れるため、デバイス壁面の一か所に注目すると異なる相(水相と油相)が交互に壁面に 接する。これは壁面のぬれ性(wettability)を変化させる原因となり、流体の流れが崩れエマル ションの制御ができなくなることが懸念される。

Utada 等はガラスキャピラリーを組み合わせた、新しい形のマイクロ流体デバイスを開発した[19]。Fig. 2.7 エラー! 参照元が見つかりません。にガラスキャピラリーマイクロ流体デバイスの概要を示す。このデバイスは Triple-orifice 法と同様に Co-flow と Flow-focus を用いたデバイスでエマルションを作製する。従来の Triple-orifice 法との違いは、①O 相とW2 相の間に 2nd ノズルに沿うとうする部分が無く、界面のみで流体が接している点、②W1 相が直接オリフィスに流れ込むことで One-step でのエマルション作製が可能である点が挙 げられる。また、Oil 相と Water 相が接する壁面の箇所が異なるため、wettability への耐性も期待できる。



Fig. 2.7 ガラスキャピラリー型マイクロ流体デバイス[19]

ガラスキャピラリー型のマイクロ流体デバイスは、その特性などが従来の triple-orifice 法 に類似しており、エマルション作製に関しては上記のように利点を有している。また、この デバイスは安価な市販品のキャピラリーや接着材などを用いた簡単な工作で作製可能であ り、用途に合わせたデバイスを使用することができる。このような利点からガラスキャピラ リー型マイクロ流体デバイスのレーザー核融合研究への適応性を調べた。

2.1.4. エマルション作製に必要な特性

本節では、ターゲット作製に導入するためのエマルション作製条件を述べる。 (i)単分散性

前述のように、乾燥過程の再現性や選別を考慮すると均一なサイズのエマルションを作 製することが重要である。また、将来の発電炉への燃料供給を考えると、燃料容器作製サイ ズの分散は燃料作製の誤差以下が求められる。発電炉での燃料のばらつき誤差は±1%程度 とされているが[20]、固体 DT 層の充填、固化精度を考慮すると燃料容器の作製精度はより 高い精度が求められる。実験炉用の直径 2.34 mm、膜厚 27 µm サイズの球殻(シェル)ターゲ ットをエマルション法で作製することを考える。エマルション法でシェルを作製する場合、 作製するドロプレットの直径は溶媒除去による縮小分を考慮する必要がある。実験用シェ ルターゲットの公差ごとの 10 wt%のポリスチレン溶液を用いて作製したエマルションの外 径、標準偏差、変動係数(CV: coefficient of variation)を Table 2.1 に示す。

T-1	Diameter of	Deviation of	CU	
Tolerance	droplet [µm]	droplet [µm]	CV	
1 %	2742	24.0	0.88 %	
0.7 %	2742	16.8	0.61 %	
0.5 %	2742	12.0	0.44 %	
0.3 %	2742	7.2	0.26 %	
0.1 %	2742	2.4	0.09 %	

Table 2.1 エマルション生成に求められる条件

この表から最終的な出来上がりを 1%以下にするためにはドロプレットのサイズは 0.9%以下の精度で作製しなければならないことが分かる。

(ii)ドロプレットのサイズ領域

次に作製するドロップレットのサイズについて考える。

アブレーターの直径、膜厚はエネルギードライバーのエネルギー、ジオメトリー、波長などの特性によって決定づけられる。また、基礎実験では様々なサイズ、膜厚のターゲットが用いられる。エマルション作製はこれらの様々なターゲットに柔軟に対応できる必要がある。 進行中又は計画中のレーザー核融合プロジェクトの典型的なターゲットとそれらをエマル ション法で作製したときのエマルションの外径、内径および次式で定義される半径と膜厚 の比であるアスペクト比(Aspect ratio)を Table 2.2 に示す。

aspect ratio =
$$\frac{R_{outer}}{thickness} = \frac{D_{outer}}{D_{outer} - D_{inner}}$$
 (2.1)

ここでDouter、Dinnerはそれぞれ外径、内径を示す。

	Shell target properties			Emulsion properties				
Target	D _{outer}	D _{inner}	Thickness	Aspect ratio	D _{outer}	D _{inner}	Thickness	Aspect ratio
	[µm]	[µm]	[µm]		[µm]	[µm]	[µm]	
LIFT[20]	2340	2286	27	43.3	2742	2286	228	6.0
NIF[1]	2260	1870	195	5.8	3839	1870	985	1.9
OMEGA[21]	860	844	8	53.8	983	844	69	7.1
FIREX shell target[22]	500	486	7	35.7	601	486	57	5.2
FIREX solid sphere [22]	200	0	100	1.0	431	0	215	1.0
FIREX "filled" solid sphere	200	170	15	6.7	330	170	80	2.1

Table 2.2 10 wt%のポリスチレン溶液を使用したときのエマルションサイズ

LIFT:高速点火レーザー核融合実験炉、NIF:米国国立点火施設、OMEGA:米国ロチェスター大学 Laboratory for Laser Energetics、FIREX:高速点火実証実験

燃料容器の特徴として、間接照射方式のターゲットはアスペクト比が小さい(半径に対し て膜厚が厚い)。これに対し、直接照射によるシェルターゲットの爆縮には高アスペクトの 燃料容器が用いられる。これはアブレーションするプラズマ温度が X 線照射によるものと レーザーを照射する場合で異なるためである[23]。FIREX 実験では直径 500µm、膜厚 7µm の シェルターゲットが用いられてきたが、近年、少ないレーザービーム数で最大限の圧縮を行 うため中実球の導入が行われている[22]。これによって従来とは異なったアイデアの実験用 /点火用ターゲットも考案されている。直径 200µm のカプセルに D₂O や DTO などの水の同 位体を充填して核融合燃料とする案や、プラズマ計測のためにイオンを溶解した水溶液を トレーサーとするなどのアイデアが考案されている。

上記のように、作製するエマルションは外径で 300-4000 µm にかけて、アスペクト比で 2-8 程度の範囲で作製する必要があることが分かる。Fig. 2.8 にエマルションの作製領域を示 す。横軸はエマルションの外径、縦軸は内径を示す。直線は各アスペクト比を表す。ここに Table 2.2 のエマルションの作製条件をプロットすると、灰色で示した領域がターゲット作 製で求められる領域であることが分かる。



Fig. 2.8 各プロジェクト用のターゲットの内径・外径分布

2.1.5. 研究目的

本章では、マイクロ流体デバイスをレーザー核融合燃料の作製に導入するために、エマル ション作製の性能を検証した。マイクロ流体デバイスがレーザー核融合のターゲット作製 に関して上記の分散性、サイズ領域の条件を満たしているかを評価した。

2.2. マイクロ流体デバイスの作製

四角キャピラリー中に先端を加工した丸形キャピラリを向かい合わせに挿入し、エポ キシ樹脂を用いて固めた。ガラスキャピラリ流体デバイスの詳細な組み立て方は Appendix に記した。本実験で使用したデバイスの形状の特性は次の Table 2.3 の通りである。

Device No.	Size	D _{Orifice} D _{injection}		Distance
	mm	[µm]	[µm]	[µm]
170330-1	3	1514	256	316
YT373-1	1	404	50	0
171007-1	3	1456	150	70

Table 2.3 マイクロ流体デバイスの特性

各溶液はガラスシリンジに 20-50 cc とり、シリンジポンプ(Harvard, Pump 11 elite)を用いて 流量を調整しながらデバイスに送り込んだ。シリンジとデバイス間はポリエチレンチュー ブ(Becton Dickinson, 0.86-mm inner diameter)を用いて接続した。

エマルションの生成部を顕微鏡レンズが取り付けられた CMOS センサ(DFK-22AUC03)で 観察した。また、生成されたエマルション系は、デバイスから流れていく過程を CMOS セ ンサ(DFK-22AUC03)で、捕集されたエマルションは CCD カメラ(Wraycam, NF1000)で測定 した。

W/O/W エマルションを作製するために使用した溶液は次の通りである。W2 相にはポリ ビニルアルコール(Polyvinyl Alcohol/PVA: Sigma-Aldrich, n = 500)を純水に 5wt%で溶解したも のに浸透圧を調整するために 1g/L の NaCl を加えたものを用いた。O 相にはポリスチレン (Polystyrene: Nacalai Tesque, n = 1000 – 1400)を 5wt%の濃度でフルオロベンゼン(Tokyo Chemical Industry)に溶解したものを用いた。をそれぞれ用いた。W1 相には純水を用いた。

2.3. エマルションの特性

2.3.1. サイズ分散性

Utada 等によるとエマルション生成には 2 つのモードが存在する[19]。1 つ目はノズル付 近でドロップレットが生成する dripping モード、2 つ目はエマルションがノズルよりも下流 で生成する Jetting モードである。



Fig. 2.9 Dripping モード(A)と Jetting モード (B)でのエマルション生成 [19]

Dripping モードではオリフィスに近いところで outer 流のせんだん力および界面張力によっ てドロプレットが生成する。一方 Jetting モードでは outer 流と middle 流の摩擦が大きくな り、界面がオリフィスから離れた位置まで成長してしまう。このモードでも界面先端部にお いて、界面張力によってある程度均一なドロプレットが生成するが、ドロプレットサイズは 界面張力が支配的になり、各相の流量では制御することが難しいため、燃料製造には不向き であると考えられる。

本研究で作製した流体デバイス 170330-1 を利用し W1、O、W2 の流量をそれぞれ 13、19 および 100 mL/hr で流し、エマルションを作製した際のエマルション生成過程を Fig. 2.10 に示す。



Fig. 2.10 マイクロ流体デバイス 170330-1 を利用したエマルション生成。 W1:13 mL/hr、O:19 mL/hr、W2:100 mL/hr

このようにノズル付近でエマルションを生成する dripping モードでの生成ができている ことが分かる。本研究では、dripping モードでのエマルション生成を行った。

2.3.2. サイズ分散性

デバイス 170330-1 を用いて作製した W/O/W エマルションのサイズ分散性を評価した。 W1、O、W2の流量はそれぞれ 13、19 および 100 mL/hr で流し、エマルションを作製した。 生成したエマルションはデバイスの下流に取り付けられた 2 mm 角の四角キャピラリー内 を流れ、その様子を CMOS センサ(ImagingSource: DFK-22AUC03)を用いて 1 秒ごとに 140 枚撮影した。総流量は 132 mL/hr であるので 2 mm 角の四角キャピラリー内でのエマルショ ンの流速は 0.9 cm/s である。測定視野は 3 mm 程度であったので、撮影された写真中に同一 のエマルションは含まれていない。

撮影された写真を Image J の Analyze Particle を用いて測定した。作製したエマルションは 1400-1480 μm にかけて分布していた。ヒストグラム間隔 h は次の式に従い決定した。

$$h = \frac{max - min}{\sqrt{k}} \tag{2.2}$$

ここで max、min はそれぞれデータの最大値、最小値、k は統計数を表す。 エマルションのヒストグラムを Fig. 2.11 に示す。



Fig. 2.11 マイクロ流体デバイスによって生成されたエマルションの外径分布。実線は Gaussian fitting の結果を表す。

この図からわかるように、生成したエマルションの外径は単一分布をもち、ほとんどのエ マルションが 1400-1440 µm 中に収まっていることが分かる。このヒストグラムの結果をガ ウス分布でフィッティングした関数を図中実線で示す。エマルションの外径の平均値 D は 1416.5 µm で、標準偏差 σ は 12.7 µm であった。この分布の CV は 0.9%であった。この値は 最終的なカプセルを公差 1%で作製できる条件を満たしており、本手法がカプセルの大量生 産にも適応可能であることを示している。

2.3.3. サイズ制御性

次に、各相の流速を変化させたときにエマルションの外径がどのように変化するかを 測定した。

(i)外径の制御

様々な流速でエマルションを生成したときの外径の変化をプロットした図を Fig. 2.12 に 示す。縦軸はエマルションの外径をオリフィス径で規格化したもの、横軸はエマルションを 構成する middle 流と inner 流の合計に対する outer 流の比を表す。3 mm キャピラリーを用 いた 170330-1 の結果を黒の四角で示した。



Fig. 2.12 流量比を変化させた際のエマルションの外径の変化。破線は理論式による fitting 結果を示す。

この図より、Q_o/(Q_m+Q_i)の比が増大するにつれエマルションの外径が減少していることが 分かる。また、外径の変化量は Q_o/(Q_m+Q_i)が増大するにつれ減少していく。

Utada 等は dripping モードの際にはオリフィス部分を通過する流体の断面積と流速の関係 はオリフィス通過時の middle+inner 流の半径 R_{jet}を用いて次式のようになると報告してい る。

$$\frac{Q_m + Q_i}{Q_o} = \frac{\pi R_{jet}^2}{\pi R_{orifice}^2 - \pi R_{jet}^2}$$
(2.3)

ドロプレットの半径 R_{drop} は R_{jet} に比例する。この比例定数を a とすると、 $R_{drop}=aR_{jet}$ となる。 これを式(2.1)に代入して変形すると、

$$\frac{R_{drop}}{R_{orifice}} = \frac{a}{\sqrt{\frac{Q_o}{Q_m + Q_i} + 1}}$$
(2.4)

となる。

式(2.4)を用いて Fig. 2.12 のプロットをフィッティングした曲線を Fig. 2.12 中の破線で 示す。この時、a=1.5 であった。 $Q_o/(Q_m+Q_i)$ が 4.5 以下のときよい一致が見られた。しかし、 $Q_o/(Q_m+Q_i)$ が 4.5 以上の場合には式(2.4)よりも減少の傾きが小さかった。これは inner 流で ある H₂O を放出する injection tube が有限のサイズを持つため、middle 流中でドロプレット
となるサイズの最小が限られていることが原因であると考えられる。

次に、middle 流と inner 流の比と生成したドロプレットのアスペクト比の関係を Fig. 2.13 に示す。



Fig. 2.13 流量比を変化させたときのエマルションのアスペクト比の変化。破線は理論式 による fitting を示す。

図が示すように、エマルションのアスペクト比は middle 流と inner 流の比に対して双極的 に変化していることが分かる。流量比を 0.7 から 1.6 まで変化させたとき、アスペクト比が 8 から 4 まで変化している。

ドロプレット中の体積比が middle 流と inner 流の流量比に比例すると次式の通りである。

$$\frac{Q_m}{Q_i} \propto \frac{\frac{4}{3}\pi R_{out}^3 - \frac{4}{3}\pi R_{in}^3}{\frac{4}{3}\pi R_{in}^3}$$
(2.5)

この式をアスペクト比の定義式(2.1)に代入して整理すると

aspec ratio =
$$\frac{1}{1 - \frac{R_{in}}{R_{out}}} = \frac{1}{1 - k\left(\frac{Q_m}{Q_i} + 1\right)^{-\frac{1}{3}}}$$
 (2.6)

と表せる。但しここで k は比例係数を表す。

式(2.6)を用いて実験結果をフィティングした結果を Fig. 2.13 中の点線で示す。このとき、k=1.05 であった。これらの結果から、エマルションのアスペクト比は流量比によって

制御することができることが分かる。

以上の結果から、マイクロ流体デバイスを用いてエマルション生成を行う場合、流量比を コントロールすることでエマルションの外径サイズおよびエマルションのアスペクト比を 制御することが可能であることが分かった。また、これらの変化は簡単な仮定を用いた式で 説明することができ、目標エマルションの生成の指針とすることができる。

2.3.4. エマルション作製可能領域

2.3.2 の指針をもとに様々なサイズのエマルションの作製を試行し、マイクロ流体デバイスで作製可能な範囲を示す。

エマルションの作製には Table 2.2 に記した流体デバイスを用いた。様々な流量比でのエ マルション作製を行い、作製が確認できた領域を Fig. 2.14 にプロットした。



Fig. 2.14 マイクロ流体デバイスで作製したエマルションの外径・内径分布。各点はそれぞれ 170330-1(黒)、YT373-1(赤)、171007-1(青)で作製したエマルションのサイズを示す。

図中、YT373-1 で作製したポイントを赤で、170325-1 で作製したポイントを黒で、171007-1 で作製したポイントを青で、マイクロ流体デバイスで作製可能となった領域を黄色で示し た。赤および黒はそれぞれ FIREX "filled"中実球、OMEGA サイズのカプセル作製を行った シリーズの結果である。青で示したシリーズは 1 つのデバイスでできるだけ幅広い作製領 域を目指したものである。これらの結果から、外径 300-2300 µm の範囲でアスペクト比 1.5-8.0 のエマルションが作製可能であることを示している。

作製範囲の上限は使用したデバイスを構成しているコレクションノズルの内径によるものである。今回使用した流体デバイスのコレクションチューブの内径は最大で φ 2.4 mm であった。作製可能範囲を拡大するために使用するキャピラリーの径を増大する際、各相の流体が層流としてふるまうことが求められる。流体のレイノルズ数は次のように表せる。

$$Re = \frac{\rho v D}{\mu} \tag{2.7}$$

ここでρは流体の密度[kg/m³]、vは流速[m/s]、Dはオリフィス径[m]、μは流体の粘性係数[Pa*s]を表す。内径 5 mm のキャピラリーに純水を 9×10⁻³ m/s で流した場合 *Re*=45<<2100 となり層流としてふるまう[24]。これよりキャピラリーのサイズを増大することで、本研究 で求められた作製範囲を外挿することが可能である。

2.4. エマルション作製の指針

本節ではターゲット作製のための設計指針について述べる。前述のようにマイクロ流体 デバイスはサイズやターゲット材に合わせてデバイスを準備することができる。デバイス のノズル径は必要なエマルションサイズによって決定される。

作製したいターゲットの外径を r_{o} 、内径を r_{i} とする。このターゲットをフルオロベンゼン にx wt.%の濃度で溶解したポリスチレンを用いて作製することを考える。

フルオロベンゼンとポリスチレンの密度は同程度であるため、ポリスチレンの質量比が体 積比に一致するとして計算した。

完成後のシェルターゲット中のポリマーの体積 Vpolymer は次のように表せる。

$$V_{polymer} = \frac{4}{3}\pi (r_o{}^3 - r_i{}^3)$$
(2.8)

エマルションの際のポリマー溶液の体積 Vpol.sol.は

$$V_{pol.sol.} = \frac{V_{polymer}}{x/100} = \frac{400}{3x} \pi (r_0^3 - r_i^3)$$
(2.9)

となる。

W/O/W エマルションを作製し、O 相中の溶媒を乾燥させる場合、溶媒の減少分に応じて エマルションの外径は減少するが、純水層では体積変化がないと仮定すると R_i=r_i なので、 エマルションの外径 r_oは次のように表せる。

$$\frac{4\pi}{3}R_o^3 = \frac{4\pi}{3}r_i^3 + V_{pol.sol.}$$
(2.10)

$$R_o = \left\{ r_i^3 + \frac{3}{4\pi} V_{pol.sol.} \right\}^{\frac{1}{3}}$$
(2.11)

これより作製すべきエマルションは外径 R_o 、内径 $R_i=r_i$ となる。

このサイズのエマルションを、流体デバイスを用いて作製する際の流体デバイスの特性 を考える。2.4節の結果から流体デバイスではコレクターノズルのオリフィス径の0.6-0.8 倍 程度の領域が制御に適していることが分かる。これより流体デバイスのコレクターノズル のオリフィス径は1.25R。< Rorifice < 1.67R。のサイズで設定すればよい。

次にインジェクションノズルの条件について述べる。インジェクションノズルのオリフィス径よりも小さな液滴を作製することはできないため、インジェクションノズルのオリフィス径が R_iよりも小さい必要がある。また、インジェクションノズルから放出される純水はオリフィスに到達するまでに成長を続ける。インジェクションノズルの先端がオリフィスと離れている場合、R_iの最小値はオリフィスとの距離 d と同程度となることが予想される。これより、インジェクションノズルの位置としてはオリフィスから Ri>d となるように設定する必要がある。

このようにして作製した流体デバイスを用いてサイズをコントロールすることを考える。 ここでは直径がエマルション外径の 1.5 倍のオリフィス径を持つ流体デバイスを作製する ことを考える。インジェクションノズルのオリフィスは Ri より十分小さいとし、コレクタ ーノズルのオリフィス径からの距離 d~0<Ri 程度を仮定する。

式 2.3 において、定数 a = 1.5 を仮定すると、

$$\frac{R_o}{R_{orifice}} = \frac{1.5}{\sqrt{\frac{Q_o}{Q_m + Q_i} + 1}}$$
(2.12)

今、目標の Ro=1/1.5 を達成するためには Qo/(Qm+Qi)=4.06 となる。

また、アスペクト比を調整するため、Qm と Qi の比は定数 k=1.05 を用いることで次のように決定される。

$$\frac{Q_m}{Q_i} = 1.05 \left\{ \left(\frac{R_{out}}{R_{in}}\right)^3 - 1 \right\}$$
(2.13)

以上より、必要な流量はQioを決定することにより次のように表せる。

$$\begin{cases}
Q_{i} = Q_{i0} \\
Q_{m} = 1.05 \left\{ \left(\frac{R_{out}}{R_{in}} \right)^{3} - 1 \right\} Q_{i0} \\
Q_{o} = \left\{ 4.27 \left(\frac{R_{out}}{R_{in}} \right)^{3} - 0.2 \right\} Q_{i0}
\end{cases}$$
(2. 14)

上記のように、必要なエマルションサイズ、流体デバイス、流量比を設定することで目標の ターゲットが作製できる。

これらの指針をもとに作製したカプセルの一例を示す。

Fig. 2.15 にマイクロ流体デバイスを用いて作製したカプセルの一例を示す。



Fig. 2.15 マイクロ流体デバイスを利用したターゲット作製例。 (a)直径 200 μm、(b)直径 830 μm のポリスチレンカプセル。

外径 300 μm、内径 200 μm を下回るようなエマルションを作製が可能となった。これら のエマルションを乾燥させることで Fig. 2.15(a)のような直径 200 μm 以下のカプセルを作 製した。このようなサイズのカプセルは内部に液体や固体の燃料又はトレーサーを充填す ることで多様な材料で構成された中実燃料を準備することが可能となる。

また、LLE で用いられる φ 800 µm を超えるサイズのカプセルを Fig. 2.15(b)に示す。米 国では主に気相重合法を用いたカプセルが用いられてきた。しかし、気相重合による過程 の中で表面精度の悪化が問題となっている。これに対し、エマルション法で作製したカプ セルは非常に良い表面精度を示すため、近年、米国での実験用にエマルション法によって 作製されたカプセルの導入が求められている。Fig. 2.14 からわかるようにマイクロ流体デ バイスはこれらのターゲット作製にも非常に有用である。

このほか二重ノズル法ではコンタミネーションの関係で試作がためらわれていたポリス チレン以外の材料でもターゲット作製が可能である。紫外線による重合開始剤を含んだモ ノマーを用い、エマルション作製直後に紫外線照射を行うことによってその場でカプセル を作製することに成功した。この技術を用いることで、真球から外れたラグビーボール型 など、多彩な形状のターゲットを再現良く作製することが可能である。また、トレーサー として金属原子を含有した有機物(第3章参照)などのターゲット材料に対応することがで き、多様なターゲットデザインを実現することが可能となった。

本研究で用いた W/O/W 型のデバイスの他に、インジェクションノズルを用いないこと で中実のエマルションが作製できる。また、コレクションノズルの下流に再びコレクショ ンノズルを設けることで多層構造を持つエマルションが作製できる。この技術をも陥るこ とで NIF で採用されているような Si や Ge を中間に含んだ多層ターゲットをエマルション 法によって作製することが期待される。 上記のように、マイクロ流体デバイスを導入することで多様なターゲットデザインが可 能となり、様々な応用が考えられる。

2.5. まとめ

燃料作製を均一かつ再現性良く行うためにマイクロ流体デバイスのエマルション生成 の操作性の検討を行った。従来、用いられてきた二重ノズルデバイスでは安定したエマル ション生成が可能であったものの、拡張性に欠けるという問題点があった。マイクロ流体 デバイスはキャピラリーの組み合わせによって簡易かつ安価に作製可能であり、拡張性に 優れている。このデバイスを用いた際の生成したエマルションの①サイズ均一性、②サイ ズ制御性について検討を行った。この結果、1%以下のばらつきで精度よくエマルションを 生成できることが分かった。また、流量をコントロールすることで、様々な実験用及び発 電用のレーザー核融合燃料容器の作製が可能であることが分かった。作製特性の結果か ら、ターゲットをエマルション法によって作製する際の指針を示した。ターゲットに合わ せたデバイスを用意することで幅広い作製が可能であることが分かった。これらの結果よ り、マイクロ流体デバイスは核融合燃料作製に有用であると示した。

第2章の参考文献

- S.W. Haan, D.S. Clark, S.H. Baxamusa, J. Biener, L.B. Hopkins, T. Bunn, D.A. Callahan, L. Carlson, T.R. Dittrich, M.J. Edwards, B.A. Hammel, A. Hamza, D.E. Hinkel, D.D. Ho, D. Hoover, W. Hsing, H. Huang, O.A. Hurricane, M.A. Johnson, O.S. Jones, A.L. Kritcher, O.L. Landen, J.D. Lindl, M.M. Marinak, A.J. MacKinnon, N.B. Meezan, J. Milovich, A. Nikroo, J.L. Peterson, P. Patel, H.F. Robey, J.D. Salmonson, V.A. Smalyuk, B.K. Spears, M. Stadermann, S. V. Weber, J.L. Kline, D.C. Wilson, A.N. Simakov, A. Yi, Update 2015 on target fabrication requirements for NIF layered implosions, with emphasis on capsule support and oxygen modulations in GDP, Fusion Sci. Technol. 70 (2016) 121–126. doi:10.13182/FST15-244.
- M. Takagi, T. Norimatsu, T. Yamanaka, S. Nakai, Development of deuterated polystyrene shells for laser fusion by means of a density-matched emulsion method, J. Vac. Sci. Technol. A Vacuum, Surfaces, Film. 9 (1991) 2145–2148. doi:10.1116/1.577241.
- [3] M. Takagi, R. Cook, R. Stephens, J. Gibson, S. Paguio, Stiffening of PαMS Mandrels During Curing, Fusion Technol. 38 (2000) 50–53. doi:10.13182/FST00-A36115.
- [4] K. Nagai, M. Nakajima, T. Norimatsu, Y. Izawa, T. Yamanaka, Solvent removal during curing process of highly spheric and monodispersed-sized polystyrene capsules from densitymatched emulsions composed of water and benzene/1,2-dichloroethane, J. Polym. Sci. Part A Polym. Chem. 38 (2000) 3412–3418. doi:10.1002/1099-0518(20000915)38:18<3412::AID-POLA210>3.0.CO;2-9.
- [5] M. Takagi, R. Cook, R. Stephens, J. Gibson, S. Paguio, Decreasing Out-of-Round in Poly(α-Methylstyrene) Mandrels by Increasing Interfacial Tension, Fusion Technol. 38 (2000) 46– 49. doi:10.13182/FST00-A36114.
- [6] M. Takagi, R. Cook, B. McQuillan, F. Elsner, R. Stephens, A. Nikroo, J. Gibson, S. Paguio, Development of High Quality Poly(α-Methylstyrene) Mandrels for NIF, Fusion Sci. Technol. 41 (2002) 278–285. doi:10.13182/FST41-278.
- S.A. Letts, D.W. Myers, L.A. Witt, Ultrasmooth plasma polymerized coatings for laser fusion targets, J. Vac. Sci. Technol. 19 (1981) 739–742. doi:10.1116/1.571142.
- [8] A. Nikroo, D. Woodhouse, Bounce coating induced domes on glow discharge polymer coated shells, Fusion Technol. 35 (1998) 202–205.
- [9] R.C. Cook, M. Anthamatten, S.A. Letts, A. Nikroo, D.G. Czechowicz, IR absorptive properties of plastic materials used in ICF capsules, Fusion Sci. Technol. 45 (2004) 148–156.
- [10] L. Zhang, X. He, G. Chen, T. Wang, Y. Tang, Z. He, Effects of rf power on chemical composition and surface roughness of glow discharge polymer films, Appl. Surf. Sci. 366 (2016) 499–505. doi:10.1016/j.apsusc.2016.01.100.
- [11] S.W. Haan, H. Huang, M.A. Johnson, M. Stadermann, S. Baxamusa, S. Bhandarkar, D.S.

Clark, V. Smalyuk, H.F. Robey, Instability growth seeded by oxygen in CH shells on the National Ignition Facility, Phys. Plasmas. 22 (2015). doi:10.1063/1.4916300.

- H.G. Reynolds, M.E. Schoff, M.P. Farrell, M.G. Johnson, R.M. Bionta, J.A. Frenje, Improvements in Fabrication of Elastic Scattering Foils Used to Measure Neutron Yield by the Magnetic Recoil Spectrometer, Fusion Sci. Technol. 70 (2016) 365–371. doi:10.13182/FST15-235.
- J.-T. Wang, J. Wang, J. Han, Fabrication of Advanced Particles and Particle-Based Materials Assisted by Droplet-Based Microfluidics, Small. 7 (2011) 1728–1754. doi:10.1002/smll.201001913.
- [14] C.N. Baroud, F. Gallaire, R. Dangla, Dynamics of microfluidic droplets, Lab Chip. 10 (2010) 2032. doi:10.1039/c001191f.
- [15] N.T. Inoue, A novel microfluidic system for the mass production of Inertial Fusion Energy shells, J. Phys. Conf. Ser. 713 (2016) 12011. doi:10.1088/1742-6596/713/1/012011.
- [16] N.D. Viza, M.H. Romanofsky, M.J. Moynihan, D.R. Harding, The Effects of a Surfactant on the Operation of T-Junctions for Mass-Producing Foam Targets, Fusion Sci. Technol. 70 (2016) 219–225. doi:10.13182/FST15-216.
- [17] K. Nagai, M. Nakajima, T. Norimatsu, Y. Izawa, T. Yamanaka, Solvent removal during curing process of highly spheric and monodispersed-sized polystyrene capsules from densitymatched emulsions composed of water and benzene/1,2-dichloroethane, J. Polym. Sci. Part A Polym. Chem. 38 (2000) 3412–3418. doi:10.1002/1099-0518(20000915)38:18<3412::AID-POLA210>3.3.CO;2-0.
- [18] J. Gao, L. Ge, B. Li, Z. Shi, S. Chen, X. Zhao, Z. Gu, Fabrication of Polyacrylonitrile Microcapsules for ICF Targets, Fusion Sci. Technol. 61 (2012) 275–281. doi:10.13182/FST12-A13580.
- [19] A.S. Utada, E. Lorenceau, D.R. Link, P.D. Kaplan, H.A. Stone, D.A. Weitz, Monodisperse Double Emulsions Generated from a Microcapillary Device, Science (80-.). 308 (2005) 537–541. doi:10.1126/science.1109164.
- [20] 高速点火レーザー核融合実験炉概念設計委員会,高速点火レーザー核融合実験炉概 念設計委員会報告,2015.
- [21] S.P. Regan, V.N. Goncharov, I. V. Igumenshchev, T.C. Sangster, R. Betti, A. Bose, T.R. Boehly, M.J. Bonino, E.M. Campbell, D. Cao, T.J.B. Collins, R.S. Craxton, A.K. Davis, J.A. Delettrez, D.H. Edgell, R. Epstein, C.J. Forrest, J.A. Frenje, D.H. Froula, M. Gatu Johnson, V.Y. Glebov, D.R. Harding, M. Hohenberger, S.X. Hu, D. Jacobs-Perkins, R. Janezic, M. Karasik, R.L. Keck, J.H. Kelly, T.J. Kessler, J.P. Knauer, T.Z. Kosc, S.J. Loucks, J.A. Marozas, F.J. Marshall, R.L. McCrory, P.W. McKenty, D.D. Meyerhofer, D.T. Michel, J.F. Myatt, S.P. Obenschain, R.D. Petrasso, P.B. Radha, B. Rice, M.J. Rosenberg, A.J. Schmitt,

M.J. Schmitt, W. Seka, W.T. Shmayda, M.J. Shoup, A. Shvydky, S. Skupsky, A.A. Solodov, C. Stoeckl, W. Theobald, J. Ulreich, M.D. Wittman, K.M. Woo, B. Yaakobi, J.D. Zuegel, Demonstration of Fuel Hot-Spot Pressure in Excess of 50 Gbar for Direct-Drive, Layered Deuterium-Tritium Implosions on OMEGA, Phys. Rev. Lett. 117 (2016) 25001. doi:10.1103/PhysRevLett.117.025001.

- [22] S. Fujioka, Y. Arikawa, S. Kojima, T. Johzaki, H. Nagatomo, H. Sawada, S.H. Lee, T. Shiroto, N. Ohnishi, A. Morace, X. Vaisseau, S. Sakata, Y. Abe, K. Matsuo, K.F. Farley Law, S. Tosaki, A. Yogo, K. Shigemori, Y. Hironaka, Z. Zhang, A. Sunahara, T. Ozaki, H. Sakagami, K. Mima, Y. Fujimoto, K. Yamanoi, T. Norimatsu, S. Tokita, Y. Nakata, J. Kawanaka, T. Jitsuno, N. Miyanaga, M. Nakai, H. Nishimura, H. Shiraga, K. Kondo, M. Bailly-Grandvaux, C. Bellei, J.J. Santos, H. Azechi, Fast ignition realization experiment with high-contrast kilo-joule peta-watt LFEX laser and strong external magnetic field, Phys. Plasmas. 23 (2016). doi:10.1063/1.4948278.
- [23] 疇地宏, レーザー核融合の概念, J. Plasma Fusion Res. 81 (2005) 2-10.
- [24] R.B. Bird, W.E. Stewart, E.N. Lightfoot, Transport phenomena, 2nd ed., Wiley, 2006.

3. オレイン酸銅ターゲットの開発

3.1. トレーサーターゲットによる高速電子の計測

高速点火方式の実証には加熱機構の解明が必要である。第1章で述べた通り、高速電子 ビームの挙動を理解することが重要である。高速電子の発散角や燃料エネルギー付与率、 およびその領域などは加熱効率に大きな影響を及ぼす。

また、高速電子の発散角を制御し、加熱効率を改善するために kT 級の高強度の外部磁 場を印加するターゲットデザインが提案されている。この方式では燃料及び金コーン付近 に設置されたワンターンコイルに接地しているキャパシターディスクの片面にレーザー を照射することで、コイルに瞬間的に大電流が流れ、高強度の磁場が発生するというもの である[1][2]。発生した磁場を用いることで高速電子ビームをガイドできることが基礎実験 で実証されている[3]。この技術は統合実験を利用した統合実験に導入が検討され、電子ビ ームをガイドすることによるエネルギー付与率の向上を実証する実験が計画された。

この実験ではトレーサー原子を添加した燃料を用いることで高速電子の挙動を観測す ることが可能となる。磁場による電子ビーム収束効果を観測するためには燃料プラズマ中 で電子ビームの飛跡を測定する。この測定には蛍光 X 線の分光イメージが有効である。燃 料中のトレーサーから発生する特性 X 線を湾曲結晶などによる分光イメージングを行う ことで燃料中の発光分布を得ることが可能となる。また、高温の燃料中ではトレーサーの 電離が進み多価イオンとして存在する。この多価イオンから放出される特性 X 線は価数に 応じたエネルギーシフトを示す。この特性 X 線のシフトを観測することでプラズマの電子 温度を推定することができる。

蛍光 X 線の画像計測のためのトレーサーとしては分光イメージングに用いる湾曲結晶 との組み合わせから Cu や Ti が用いられる[4][5][6]。これらは対象のプラズマの温度や密 度によって元素選択が行われる。また、燃料中ではこれらのトレーサーの含有量及び空間 分布が既知であることが求められる。

また、前述のように、核融合燃料は中実球が求められる。これまでに用いられてきた典型 的な直径 500 µm、シェル厚 7 µm のポリスチレンシェルターゲットと燃料質量を同等にする ため、中実球の直径は約 200 µm 程度とした。圧縮用レーザーによる相互作用によって引き 起こされるビーム核融合やトレーサーの発光を避けるために、燃料球は 10-20 µm のポリマ ーコーティングが施される。燃料中実球は X 線計測のためのトレーサー元素を 1 at%程度燃 料中に均一に分布した状態で含有することが求められる。燃料全体の密度は一般的な高分 子と同程度の 1-1.5 g/cm³ が求められる。中実球燃料を使用することにより燃料形状によっ て引き起こされるレイリーテーラー不安定性の影響は比較的少ないと考えられるが、球心 衝撃波の到達時刻にズレが生じない程度には均一な形状が求められる。

上記の条件を満たすトレーサー含有ターゲットの作製手法を確立し、高速点火実験に供 給することを目的とする。 3.2. ターゲット材料・作製方法の検討

3.2.1. トレーサーの選択

Cu や Ti といった金属元素はプラスチックターゲットの主成分である有機化合物とは基本的には結合しにくいため、含有させるためには、①Cu、Ti を含有する材料をターゲット材料に混入を行う②Cu、Ti を含有した有機化合物をターゲット材料とする、という方針が考えられる。

Nikroo 等は、CVD コーティングによってプラスチックシェルを作製する手法を改良して、 材料ガスに Cu を含有した銅アセチルアセトネートをドーピングすることで Cu を含有した シェルターゲットの作製手法を開発した[7]。Jarott 等は Cu を原子数量比で1 at.%含有した ターゲットを用いて高速電子による燃料の加熱分布を測定することに成功した[8]。コーテ ィング法による Cu 含有ターゲットの作製は、混入する Cu 含有物の濃度を変化させること で層中の Cu 密度を変化させることができるなどの利点を有するが、混入させる Cu 含有物 の流量のコントロールが難しく、層中で結晶化してしまうなどの問題を抱えている。また、 この手法はポリマー製のカプセルにコーティングによって作製するため、中実球には適応 することができない。

有機物の中実球作製方法として、溶媒に溶かしたターゲット材を用いてエマルションを 作製し、溶媒を除去することで真球性の良い中実球を得る手法が知られている。ポリスチレ ンなどのポリマーに Cu 含有有機物を混合し、エマルションを作製すると溶媒の乾燥段階に 相分離が生じ、均一な Cu 分布は期待できない。そこで、Cu を含有した化合物単体をターゲ ット材料とすることで均一な Cu 分布をもつ Cu 含有中実球ターゲットが作製できると考え た。

3.2.2. ターゲット材料の選定

ターゲット材料として使用する Cu 含有化合物には次のような条件が考えられる。

Cu 以外の構成元素はレーザーによる燃料圧縮及びプラズマ計測への影響を少なくするため低 Z 番号の原子で構成されることが求められる。X 線画像計測に必要な Cu の適当な含有量としては、原子数量比で 1%程度含んでいることが必要である。また、エマルション法を用いる際には、oil 相または water 相のいずれかに溶解させ、かつ、その相が十分な界面張力を保っており、エマルションを形成できることが必要となる。

Cu 原子は基本的に有機化合物とは結合を作らないが、分子中にカルボニル基(-COOH)を もつカルボン酸は金属イオンとイオン結合をつくることが知られている。ターゲット材の 候補となるカルボン酸及びアセトネートの銅塩を Table 4 に示す。

Motoriol	Chemical		Elen	nents	Cu 1	Cu ratio	
Material	formula	Н	С	0	Cu	atomic	weight
Cu(II)-oleate (オレイン酸銅)	$(C_{18}H_{33}O_2)_2Cu$	66	36	4	1	0.0093	0.1014
Cu(II)-stearate (ステアリン酸銅)	$(C_{18}H_{35}O_2)_2Cu$	70	36	4	1	0.0090	0.1008
Cu(II)-margarate (マルガリン酸銅)	$(C_{17}H_{33}O_2)_2Cu$	66	34	4	1	0.0095	0.1055
Cu(II)-palmitate (パルミチン酸銅)	$(C_{16}H_{31}O_2)_2Cu$	62	32	4	1	0.0101	0.1106
Cu(II)-2-ethylhexanoate (2-エチルヘキサトネート銅)	$(C_8H_{15}O_2)_2Cu$	30	16	4	1	0.0196	0.1816
Cu(II)-acethylacetonate (アセチルアセトネート銅)	$(C_5H_7O_2)_2Cu$	14	10	4	1	0.0345	0.2428

Table 4 Cu ratio of the candidate materials for Cu containing targets

*Atomic weight of H(1.00784), C(12.0096), O(15.99903) and Cu

(63.546)[http://www.chemistry.or.jp/activity/doc/atomictable2015.pdf] were used.

有機溶媒への溶解性、Cuの濃度に加え、試薬として市販されており入手が容易であることからオレイン酸銅について条件を満たすかの試験を行った。Fig.3.1 にオレイン酸銅の化学 式、固体状および有機溶媒に溶解した溶液状のオレイン酸銅を示す。この溶液と5wt%ポリ ビニルアルコール(Polyvinyl alcohol: PVA)水溶液をスクリュー瓶にとり軽く撹拌すると、Oilin-Water エマルションが形成された。これらの特性からオレイン酸銅をターゲット材料とし て選択した。



Fig.3.1 オレイン酸銅(固体)と有機溶媒に溶解したオレイン酸銅

3.3. オレイン酸銅ターゲット作製

3.3.1. エマルションのサイズ

有機溶媒は 1,2-ジクロロエタンとベンゼンの混合溶媒またはフルオロベンゼンを用いた。 重量比でオレイン酸銅が 7wt%になるように有機溶媒に溶解した。これらの水和物は有機溶 媒には不溶のため、白色の沈殿物を作る。これらの水和物を取り除くため溶液を静置して上 澄み液を疎水性のフィルター(Advantec, DISMIC 25HP PTFE, 0.45-µm ポアサイズ)でろ過し た。ろ過後の溶液をシャーレに少量とり質量を測定したのち、溶媒を完全に蒸発させた際の 質量を測定した結果、水和物を取り除いたのちのオレイン酸銅の濃度は 6.3wt%であった。 この結果から購入したオレイン酸銅は約 10 %程度の水和物を含有していることが分かった。

直径 200 μm の中実球を作製するために必要なオレイン酸銅ドロプレットのサイズを次の ように見積もった。オレイン酸銅と有機溶媒の比重はほとんど同じであるため、オレイン酸 銅溶液の密度はすべての時刻で一定であると仮定すると、次の式の関係が成り立つ。

$$\frac{4\pi}{3} \left(\frac{D_{sphere}}{2}\right)^3 = \frac{4\pi c}{3} \left(\frac{D_{droplet}}{2}\right)^3 \tag{3.1}$$

ここで、D_{sphere}、D_{droplet}はそれぞれ中実球、ドロプレットの直径、c はオレイン酸銅溶液の 重量分率濃度である。この式を D_{droplet} について解くと次式のようになる。

$$D_{droplet} = \frac{1}{\sqrt[3]{c}} \cdot D_{sphere}$$
(3.2)

式(3.2)より直径約 500 µm のドロプレットを作製すればよいことが分かった。

3.3.2. エマルション作製

O/W エマルションはガラスキャピラリー型流体デバイスを用いて作製した。O/W エマルションを作製するため、インジェクションノズルは使用しなかった。コレクターノズルの外径は 490 µm に設定した。コレクターノズルの上流側の流路の内面はドデシルトリクロロシランを塗布し親油処理を行った。また、オレイン酸銅溶液が一度コレクターノズルに付着するとコレクターノズルのぬれ性が変化し、正常なドロプレット生成ができなくなった。このため、一度ぬれ性が変化してしまったデバイスは使用を停止し、新規のデバイスを用いてドロプレット生成を行った。これはオレイン酸銅が金属石鹸として用いられるなど界面活性の大きい物質であることが原因であると考えられる。

ドロプレット生成について述べる。Water 相には PVA(Sigma-Aldrich, n=500)の 5 wt.%水溶 液を用いた。Fig.3.2 にマイクロ流体デバイスを用いたオレイン酸銅溶液のドロプレット生 成プロセスを示す。画像左側から流れてきたオレイン酸銅溶液は、反対方向からコレクター ノズルと四角管の隙間を流れてきた PVA 水溶液のせん断力によってオリフィス部分でドロ プレットを生成し、コレクターノズル内部に流れ込む。PVA 水溶液の流量は 20.0 mL/h で固 定し、オレイン酸銅溶液の流量を変化させ、ドロプレットの直径を調整した。生成したドロ プレットはシャーレに採集され、光学顕微鏡で直径を測定した。



Fig.3.2 マイクロ流体デバイスを利用したオレイン酸銅エマルション作製の様子。

Fig.3.3 に、PVA 水溶液の流量:Q_{water}とオレイン酸銅溶液の流量:Q_{oil}の比を変化させた ときのドロプレットのサイズを示す。グラフ中の左の軸はコレクターノズルのオリフィス 直径で規格化したドロプレットの直径、右の軸はドロプレットの直径を表す。Q_{wate}/Q_{oil}を増 加させる、即ち、オレイン酸銅溶液の流量を減少させるにつれ、D_{droplet} は反比例して減少し ている。これらの結果から流量比を調整することで 400 µm から 550 µm まで変化させるこ とができた。また、同じデバイスを用いて異なるバッチに対し同様の操作を行っても傾向は 変わらず、再現性があることが分かった。



Fig.3.3 流量のコントロールによるオレイン酸銅エマルションのサイズ変化。

上記の結果より、直径 490 μm のオリフィス径を持つ流体デバイスを用いて直径 500 μm のドロプレットを作製するためには Qwate/Qoil=2.35 に設定すればよいことが分かった。

3.3.3. エマルションの乾燥

生成されたドロプレットは PVA 水溶液の入ったスクリュー瓶に捕集した。このスクリュ

ー瓶をかくはん機に設置し、140 rpm で 2-3 日間、撹拌を行った。ある程度乾燥が進んだ時 点でピペットを用いて少量をシャーレに取り出し、ピンセットなどでドロプレットを挟み 溶媒が完全に揮発して形が変わらないことを確認した。乾燥が完了したのち、純水で PVA 水溶液を洗い流した。



最終的に Fig.3.4 に示すような直径 200 µm のオレイン酸銅中実球を得た。

Fig.3.4 エマルジョン法により作製したオレイン酸銅中実球

3.4. オレイン酸銅ターゲットの評価

3.3 の手法により 200 µm のオレイン酸銅中実球を得ることができた。本節ではこれら の中実球の組成・分布および形状を測定し、ターゲットの仕様に適合しているかを評価した。

3.4.1. 密度測定

オレイン酸銅中実球の密度評価は水溶液中で比重が釣り合った時の水溶液の密度を計測することにより求めた。

Fig.3.5 に手法を示す。飽和ヨウ化カリウム(KI)水溶液を調整し、メスシリンダーに注入する。オレイン酸銅中実球をメスシリンダーに入れると KI 水溶液の密度が大きいため中実球 は溶液に浮く。純水を滴下していくと徐々に KI 水溶液の濃度が下がり、密度が小さくなっ ていく。やがて KI 水溶液の密度が中実球の密度と釣り合うと中実球が沈み始め、溶液の中 ほどに位置する。このまま純水を滴下していくと中実球の密度の方が大きくなり、メスシリ ンダーの底に沈む。比重が釣り合っているときの KI 水溶液の密度を比重計(Anton Paar:DMA35)により測定することによってオレイン酸銅中実球の比重を求めた。



Fig.3.5 ヨウ化カリウム(KI)水溶液を利用したオレイン酸銅中実球の密度測定手法。

測定の結果、オレイン酸銅中実球の密度は1.061±0.005 g/cm³であった。この密度は、レ ーザープラズマ実験においてよく用いられるポリスチレンと同等の値であり、燃料ターゲ ットとして用いるのに適しているといえる。

3.4.2. Cu 濃度の測定

Table 4 よりオレイン酸銅は理想的には原子分率で 0.93at.%、質量分率で 10.1 wt. %の Cu 原子を含有している。ここに不純物などが混入すると含有率が低下する可能性がある。また、 中実球を作製する過程は溶液を用いるため、Cu(II)の酸化・還元及び溶出等があれば含有率 の低下が考えられる。プラズマ実験において発光量の定量評価にはトレーサー原子の濃度 は既知である必要があるため、中実球作製後の Cu 原子含有率を測定する必要がある。

Cu 原子の含有率は、中実球に含まれる Cu 原子を溶解した水溶液の Cu 濃度と初期の中実 球質量から求めた。水溶液の Cu 濃度は高周波誘導結合プラズマ発光分光測定(Induced Coupled Plasma Atomic Emission Spectroscopy: ICP-AES)で測定した。

作製した直径 200 µm のオレイン酸銅中実球を 14~20 mg 秤量し、硝酸(HNO3: Tokyo Chemical Industry)および少量の硫酸(H₂SO4: 佐々木化学薬品)を加え、加熱して溶解した。さらに硝酸と過塩素酸(HClO4: Sigma-Aldrich)を加え加熱分解を行い、試料中の銅を完全に溶液中に溶出させた。この溶液を加熱濃縮し、希硝酸(HNO3: H₂O=1:9)で希釈し、50ml に定容とした。この溶液を ICP-AES(Hitachi, PS3520VDDII)を用いて Cu イオンの含有量を求めた。 オレイン酸銅中実球中の Cu 含有率は次のように求めた。

Cu weight fraction
$$=$$
 $\frac{m_{Cu}}{m_{OA}} \times 100 = \frac{c \times V}{m_{OA}} \times 100$ (*wt.*%) (3.3)

測定の結果 Cu の含有量は 9.65±0.01wt.%であった。化学式から計算された理論値は 10.1 wt.%であるので、実験結果から、中実球作製過程において Cu の含有率はほとんど変化し

ないことが分かる。

Cu の含有率が若干理論値よりも低い理由としては、試薬に混入していたオレイン酸 (C18H34O2)や、溶解後のフィルターによって取り除けなかった水和物などの不純物成分、また は、作製後に大気中の水蒸気を吸着することにより*m_{0A}を*過大評価したことが挙げられる。

3.4.3. Cu 分布の測定

トレーサーとして添加した原子は燃料中で不均一に分布していると発光強度や画像計測 から正確な情報を得ることができない。トレーサー原子が燃料中でどのように分布してい るかを理解しておく必要がある。

オレイン酸銅は熱によって融解してしまうため、試料の作製は PVA 水溶液とカミソリを 用いて行った。直径 200 µm のオレイン酸銅中実球を PVA に包埋した。カミソリを使用して オレイン酸銅中実球の赤道付近を切断し、断面を露出させた。電子顕微鏡観察の際のチャー ジアップを防ぐため、試料表面に Pt スパッタ(JEOL: JFC-1600)を用いて数 10 nm の Pt コー ティングを行った。

オレイン酸銅中実球中の Cu の分布の測定には走査型電子顕微鏡(Scanning Electron Microscope: SEM)及びエネルギー分散型 X 線分光器(Energy dispersive X-ray spectroscopy: EDS)を用いた。試料を SEM(JEOL: JSM-7400FS)および EDS(JEOL: JED-2300)で観察した。観察は加速電圧 15 kV, 倍率 500 倍で行った。Cu Ka線(8.04 keV)のカウントが微弱だったため、低エネルギー側の Cu La線(0.93 keV)を用い、マッピング計測を行った。マッピングは 512 ×384px(1px = 0.47 μ m)の範囲で測定を行った。



Fig.3.6 にオレイン酸銅中実球の断面の SEM および EDS での測定結果の画像を示す。

Fig.3.6 SEM-EDS によるオレイン酸銅中実球中の銅の空間分布測定。マッピング計測に より CuLα の信号が検出された点を緑点で示す。 図中の Cu La 線が検出された点を緑点で示す。この結果から、周囲の PVA の領域と比べ て Cu La 線がオレイン酸銅中実球中で検出されていることが分かる。詳細な分布を測定す るために、Fig.3.6 中の白い破線間の領域を中心から外側に向けてとったラインプロファイ ルを Fig.3.7 に示す。



Fig.3.7 Fig.3.6 中の白い破線間の領域を中心から外側に向けてとったラインプロファイル

x=0をオレイン酸銅中実球と PVA の境界にとり、中実球内部を(x < 0)、外部の PVA 部分 を(0 < x)とした。図中の黒破線は内部及び外部における信号の平均値を示す。

CuLa線の信号強度は中実球の内部では均一な値を示し、中実球の外部に至ると急激に信号強度が減少した。また、マッピングを行った範囲では信号の偏在は見られなかった。中実球の内部の信号強度のRMSは平均信号強度に対して10.8%であり、均一な信号が得られた。

これらの結果から、オレイン酸銅中実球内部では均一に Cu が分布している。

3.4.4. 形状測定

3.1 に述べたように、中実球燃料を用いた球心衝撃波による燃料圧縮の場合、球殻燃料を 用いたときと比べると流体不安定性の影響が小さくなる。これに従い燃料自身に求められ る形状の制限も大幅に緩和される。一方で、球心衝撃波の衝突時刻・位置、燃料表面のレー ザーの照射強度の一様性、実験の再現性を考慮すると球対称である必要性は依然として高 い。

中実球の場合、形状の特性は真球性と表面精度によって特徴づけられる。これらの値は試料の中心から表面の距離として測定される。中心からの距離を試料の周囲に沿って計測したものを表した模式図を Fig.3.8 に示す。



Fig.3.8 ターゲット形状と中心からの距離を試料の周囲に沿って計測したものを表した 模式図。(a)理想的なターゲット (b)低次モードの擾乱を持つターゲット (c)高次モード の擾乱を持つターゲット

図で示したように試料の形状が真球の場合、外周に沿って計測した半径の大きさは角度 によらず一定となる。これに対し、試料が真球ではない場合、中心からの距離は角度によっ て変化が生じる。この関数は円周一周分を周期とする関数となる。Fig.3.8(b)のように真球 性の低い試料では図のように周波数の低いモードの波が現れる。Fig.3.8(c)のように表面が 粗い試料の場合、高周波数の波が現れる。実際の測定結果は様々な周波数の波の合成となる ので、この関数にフーリエ変換を行うことによりその構造の波長と振幅分布を評価するこ とができる。また、円周を複数とることによって球全体の表面情報を取ることができれば、 ルジャンドルモードを評価することにより、球全体を考慮した評価を行う技術の開発も行 われている[9][10]。真球性は低周波数成分(low mode)に対応し、表面精度は高周波数成分 (High mode)に対応する。これらの両者の明確な境界はないが、本研究では便宜的に n=10 を 境界とし、2≦n≦10を Low mode、10 < n を High mode とした。なお、n=1 は測定中心と実 際の中心のズレによって生じるモードであるため、中実球のように外周のみを測定する場 合には形状としての情報は含まない。

本節では作製したオレイン酸銅中実球の真球性と表面精度を測定し、その結果から評価を行った。

真球性は光学顕微鏡で観察した画像から測定した。5 つのオレイン酸銅中実球をスライド ガラス上に任意に選び取った。光学顕微鏡で中実球の赤道面に焦点を合わせた画像(2272× 1704 pixel、1 px = 0.125 μm)を、一つの中実球に対して方向を変えて3 つずつ取得した。こ れらの画像を、画像解析ソフト ImageJ を用い画像処理を行った。画像処理の過程を Fig.3.9 に示す。まず画像をグレースケール 8-bit に変換した。次に中実球内部から外部までのライ ンプロファイルを取得し、境界部分での半値を求めこの値を閾値に画像を二値化した。中実 球部分の内部に閾値以下の領域があった場合には「Fill Hole」コマンドを用いて内部に値が ない pixel が無い様に処理した。中実球部分の重心を中心に1度刻みで外周までの距離を測 定した。実際の測定にはプラグインアプリケーションの「Radial Thickness Measurement」を 使用した。



Fig.3.9 オレイン酸銅中実球の真球性測定

本手法の分解能を調べる為に、上記の手法で直径 500 µm の SUS 球を測定した。SUS 球が 真球であると仮定すると、本手法による分解能は 0.7 µm と求められた。

5 つの中実球に対して行った測定結果を Fig.3.10 に示す。図中で縦軸は半径の平均からの 差、横軸は角度を表す。平均からの差の絶対値が大きいものについては縦軸を省略して表し た箇所がある。





Fig.3.10 オレイン酸銅中実球(a)~(b)の真球性測定結果。各中実球について 3 方向の測定 を行った。中実球の平均半径からの差を示した。一部、平均からの差の絶対値が大きいも のについては縦軸を省略して表した箇所がある。

これらの結果からほとんどの測定結果は半径の平均値からの差が±2 μm 以内に収まって いる。Sphere 1-3、Sphere 4-2、4-3 については一部 2 μm を大きく超えた変位を持つ箇所が観 測された。これらはいずれも 10~20°に対応するような急峻なピークなので異物の付着や作 製後に部分的なへこみなどが発生したもので本質的な真球性とは異なるものであると考え られる。

これらの結果から真球性を求めた。真球性の評価には様々な定義があるが[11][12]、本論 文では真球性 S を次の式のように定義する。

$$S = 1 - \frac{R_{max} - R_{min}}{R_{av}}$$
(3.4)

ここでR_{av}、R_{max}およびR_{min}はそれぞれ半径の平均、最大および最小を表す。Fig.3.10の測 定結果から行った真球性の評価を次の Table 5 に示す。

	Sphere 1			Sphere 2			Sphere 3		
	1-1	1-2	1-3	2-1	2-2	2-3	3-1	3-2	3-3
$R_{av}[\mu m]$	95.0	95.9	95.9	102.6	102.2	102.8	96.8	93.6	94.4
R_{max} [µm]	96.2	97.1	103.6	103.5	103.2	103.6	97.3	94.7	95.1
$R_{min} \left[\mu m \right]$	93.2	94.6	93.5	101.1	99.7	101.5	95.8	91.6	93.7
RMS [µm]	0.5	0.4	1.0	0.4	0.6	0.3	0.3	0.5	0.3
Sphericity	0.97	0.97	0.89	0.98	0.97	0.98	0.98	0.97	0.99

Table 5 The result of sphericity measurement of Cu-oleate microspheres

		Sphere 4		I	Sphere 5	
	4-1	4-2	4-3	5-1	5-2	5-3
$R_{av}[\mu m]$	101.3	98.7	99.5	88.9	88.1	88.5
R_{max} [µm]	102.7	102.2	103.5	89.6	88.9	89.4
R_{min} [µm]	99.3	96.8	98.0	88.2	86.7	87.6
RMS [µm]	0.5	0.7	0.7	0.3	0.4	0.4
Sphericity	0.97	0.95	0.94	0.98	0.97	0.98

ほとんどの測定結果において 0.97≦S の高い真球性が得られた。また、Sphere 1-3、Sphere 4-2、4-3 は低い真球性を示したが、Fig.3.10の結果から S を求める過程で変位が大きい箇所 の値を用いたためであると考えられる。RMS は Sphere 1-3 を除きすべて 0.7 µm を下回った。

次に、表面精度を測定した。ターゲット評価の際、表面精度は原子間力顕微鏡(AFM: Atomic Force Microscopy)を用いて数百~数nmのオーダーで評価を行うことが一般的である[9][13]。 しかしながら、作製したオレイン酸銅中実球は光学顕微鏡での観察でも確認できるほどの 凹凸が見られたため本試料には適さないと判断し、µm オーダーの構造を測定できるレーザ 一顕微鏡を用いて評価した。

真球性の測定と同様に直径 200 μm のオレイン酸銅中実球をスライドガラス上に任意に選び取った。この試料をレーザー顕微鏡(OLYMPUS:OLS1200)を用いて測定を行った。倍率100x で測定を行い測定 X-Y 方向の分解能は 0.125 μm、Z 軸の分解能は 0.079 μm であった。 測定視野は 128 μm x 96 μm なので、中実球の頂点周りの直径 100 μm 程度の範囲(半頂角 30°の立体角に相当)を測定した。測定結果は中実球の形状を反映しているので、半径 100 μm の球を仮定して計算によって球の形状を差し引いた。

Fig.3.11 (a)に表面プロット、(b)にラインプロファイルを示す。x、y軸は中実球表面上の 位置、z軸は半径 100 um を仮定したときの半径からのズレを示す。中実球の表面に直径 5-20 µm、深さ 1 µm 程度の凹みが見られた。これらの凹みは中実球の全面にわたって観測さ れた。測定範囲における RMS は 0.8 µm であった。この結果は光学顕微鏡による測定結果よ りも若干大きな値となったが、光学顕微鏡による測定の分解能が低かったためであり、本測 定の RMS が表面状態を表しているといえる。



Fig.3.11 レーザー顕微鏡によるオレイン酸銅中実球の表面形状測定。

以上のように真球性、表面精度の測定結果をもとに球面モード波による評価を行った。真 球性については Fig.3.10(b)の Sphere2-1 の結果を、表面精度は Fig.3.11(b)ラインプロファイ ルを用いた。それぞれのラインプロファイルについてフーリエ変換を行い、各球面モードに 対応する振幅を求めた。Fig.3.12 に結果を示す。2≦n≦10 については真球性測定の結果を、 n<10 では表面精度測定の結果を用いた。球面モードの振幅は低モードから右肩上がりに減 少するが、30<n<100 にかけてピーク振幅のピークが見られた。直径 200 μ m の球における モード n = 30 -100 は波長 λ =6.3-20.1 μ m に対応するため、表面精度測定の際に見られた深さ 1 um の凹凸がこれらの結果に対応していることが分かる。



Fig.3.12 実験結果から求めたオレイン酸銅中実球のモードスペクトル

3.4.5. シミュレーションを利用した評価

中実球燃料を用いた圧縮過程は Kidder 等の研究[14]などに見られるように新しい概念で はない。その一方で、球殻状燃料が主役となって以降、燃料形状が圧縮過程に及ぼす影響な どの研究はほとんど行われていなかったため、本研究で作製した中実球がプラズマ実験に 適応可能かどうかの明確な基準は設けられていなかった。そこで、本節では形状の評価結果 を元にシミュレーションを用いて作製した中実球が圧縮過程に及ぼす影響を評価した。

レーザープラズマ実験において広く用いられている 2D 輻射流体シミュレーションコー ド PINOCO[15]を用いて評価を行った。シミュレーション条件を Table 6 に示す。直径 200 µm のオレイン酸銅中実球(C₁₈H₃₃O₂)₂Cu を正十二面体の面の位置に配置された 12 本のレー ザービームで照射する。レーザーの照射開始時刻を t=0 とし、ビームは照射開始後 1.5 ns で ピーク強度を迎える。

Table 6 The conditions of 2D-simulation						
Laser condition						
number of beams	12	(spherical)				
Wavelength	0.53	μm				
Energy	250	J / beam				
Peak timing	1.5	ns				
Target condition						
Diameter	200	μm				
Material	$(C_{18}H_{33}O_2)_2Cu$					

ターゲット形状の影響を調べるため、理想的な中実球と Fig.3.12 で得られたモードの擾乱 を持つ中実球の両者を同じ条件でシミュレーションし、比較を行った。シミュレーション結 果を Fig.3.13 に示す。Fig.3.13(a)、(b)は t=1.5 ns の作製した中実球および理想的な中実球の シミュレーション結果を示す。





Fig.3.13 2D シミュレーションによる圧縮過程の計算結果。 ⊨1.5ns における作製した中 実球(a)と理想的な中実球(b)。図の上半分が密度、下半分は電子温度を示す。(c)各時刻に おける軸上の半径密度積の時間経過。実線が作製した中実球、破線は理想的な中実球を示 す。

初期擾乱がない理想的な中実球(b)に比べ、初期擾乱のある中実球(a)では衝撃波による圧縮 のタイミングが若干遅くなっていることが分かる。対称軸上の半径密度積 pR の時間変化を Fig.3.13 (c)に示す。実線で示した初期擾乱ありの中実球は最大圧縮を迎えるタイミングが破 線で示した理想的な中実球よりも遅くなっているが、ピーク時刻の差は 0.02 ns であり、加 熱レーザーの入射タイミングのジッター(~数 10 ps)と同程度であり、実験での使用には問題 のないレベルであると考えられる。また、初期擾乱あり中実球の最大 pR は 0.069 g/cm² であ り、理想球の 0.070 g/cm² と比べて 1.5%程度しか変わらなかった。Murakami 等の報告による と、中実球を圧縮した場合、n=42 以上の高次モードは圧縮途中で減衰される[16]。本研究で 作製した中実球は高い真球性を持っており、表面に見られた凹凸は高次モードに該当して いたため、爆縮への影響がほとんどなかったと考えられる。

以上より、本研究で作製した中実球は理想的な中実球と比べてもほぼ同様なパフォーマンスが期待でき、プラズマ実験に導入可能である。

3.5. 表面凹凸の考察

前節の形状測定によって、オレイン酸銅中実球の表面には直径 5-20 µm、深さ 1 µm 程度の凹みが見られた。本節では、これらの凹凸の発生原因について議論する。

オレイン酸などの脂肪酸、オレイン酸銅のような錯イオンなどの分子は化学的な結合と

しては飽和しているが、分子間には相互作用が働いている。この相互作用は化学結合に比べ 小さいが、分子の構造、物性、反応に影響を与える場合がある。相互作用としては分子間の ファンデルワールスカ、水素結合等が挙げられる[17]。これらの相互作用により、多様な結 晶が生じる。

多様な結晶が生じる原因としては、結晶の形態による構造的な要因、溶解度などの熱力学 的要因、さらに、結晶成長と転移の速度による速度論的要因がある。溶液からの多形の析出 過程は①溶質分子の凝集、②多形の競争的核発生、③多形の競争的核成長であり、これらの 過程が進行するにつれて溶液の状況が変化とともに様々な結晶が発生する[18]。また、結晶 間の転移も同時に起こるため、非常に複雑な過程となる。

オレイン酸銅をフルオロベンゼンに溶解した溶液をスライドガラスに滴下し、溶媒乾燥 後のオレイン酸銅の表面を観察した写真を Fig.3.14 に示す。オレイン酸銅表面に波長 10 µm 程度の波状の形状が形成されていることが分かる。これらは溶媒が揮発するに伴いオレイ ン酸銅の結晶構造が形成されたためと考えられる[19]。オレイン酸銅の前駆体であるオレイ ン酸では温度などの状況によって α 、 β 1、 β 2、 γ の4種類の結晶構造をとることが報告され ている[20][21]。このようにオレイン酸銅中実球でも溶媒を除去する過程で結晶構造が形成 されたと考えられる。



Fig.3.14 オレイン酸銅溶液をスライドガラス上で溶媒を除去した際の表面写真

また、脂肪酸の結晶化はエマルションのような界面に囲まれることによっても影響を受ける。本研究で作製したオレイン酸銅中実球は PVA 水溶液中で溶媒を除去して作製されるため、この過程の途中でもエマルションの界面が強く影響を及ぼしていると考えられる。 Arima 等は水相、油相それぞれに界面活性剤を添加することでエマルションの結晶成長を抑制することを報告している[22]。この手法を用いることでオレイン酸銅中実球も抑制することができると考えられる。

3.6. プラズマ実験における使用実績

本研究で作製されたオレイン酸銅中実球はレーザープラズマ実験に使用され、高速点火核 融合の加熱機構の解明および、高速電子を用いた実験に導入されている。本節では、オレイ ン酸銅ターゲットの使用状況およびそれを用いた実験の概要について述べる。

オレイン酸銅製の中実燃料に高速電子が入射されると銅原子から特性X線が発生される。 このX線を単色X線イメージャーで画像的に計測した。実験では、爆縮の際に発生するコ ロナプラズマから特性X線が発生することを抑制するために直径200μmのオレイン酸銅 中実球に25μmのPVAをコーティングした。この銅添加燃料に金製のガイドコーンが取り 付けられたものをターゲットとした。ターゲットの写真をFig.3.15に示す。このターゲッ トを用い、燃料圧縮および加熱レーザーの入射を行う統合実験が行われた。この実験では、 外部磁場の印加やガイドコーンの先端のティップの効果などによる高速電子の挙動の変化 が観測された。



Fig.3.15 統合実験に用いられた PVA コーティングを施されたオレイン酸銅中実球ター ゲット。(Target No. FM-03-018)

実験で得られた燃料の X 線画像計測の結果を Fig.3.16 に示す。爆縮のみの際にはほとんど X 線発光が見られていないが、加熱レーザーを入射することにより X 線の発光が見られた。 また、加熱レーザー照射時に外部磁場を印加することによって X 線の発光が増大している 様子が見られる。これは、高速電子が外部磁場に沿って動くことで、電子ビームの発散をコ リメートしたことによる。オレイン酸銅中実球を用いることで外部磁場のアシストによる 加熱効率の増大の実証に成功した[23]。この他、特性 X 線の発光スペクトルの計測からは燃 料プラズマの電子温度が 1.7 keV に到達していることが分かった。



Fig.3.16 統合実験における X 線画像計測結果

3.7. まとめ

本章では高速点火核融合の加熱機構解明のためのトレーサー導入ターゲット開発につい て述べた。高速電子による加熱領域の測定のために、10wt%銅トレーサーを含有したターゲ ットを設計した。従来の CVD による手法とは異なりオレイン酸銅をターゲット材として用 いることでエマルジョン法による中実球の作製を行うことが可能となった。流体デバイス を用いることで単分散かつ直径のコントロールが可能となった。作製した中実球の密度、組 成、形状について評価を行った。中実球は密度 1.06 g/cm³ で 10 wt.%の銅原子を均一に含有 していた。また中実球は 97%以上の高い真球性を持つが、表面に直径 5-20 µm の凹凸を持っ ていた。シミュレーションの結果からこれらの形状特性はレーザーによる圧縮にはほとん ど影響しないことが分かった。これらの結果より、作製したオレイン酸銅中実球ターゲット はレーザープラズマ実験に使用可能であることを実証した。これらの中実球は高速点火実 験にターゲットとして用いられ、銅トレーサーからの特性 X 線の計測によって高速電子の 挙動および電子温度計測が可能となった。

第3章の参考文献

- H. Daido, F. Miki, K. Mima, M. Fujita, K. Sawai, H. Fujita, Y. Kitagawa, S. Nakai, C.
 Yamanaka, Generation of a strong magnetic field by an intense CO2 laser pulse, Phys. Rev.
 Lett. 56 (1986) 846–849. doi:10.1103/PhysRevLett.56.846.
- [2] S. Fujioka, Z. Zhang, K. Ishihara, K. Shigemori, Y. Hironaka, T. Johzaki, A. Sunahara, N. Yamamoto, H. Nakashima, T. Watanabe, H. Shiraga, H. Nishimura, H. Azechi, Kilotesla Magnetic Field due to a Capacitor-Coil Target Driven by High Power Laser, Sci. Rep. 3 (2013) 1170. doi:10.1038/srep01170.
- J.J. Santos, M. Bailly-Grandvaux, M. Ehret, A. V. Arefiev, D. Batani, F.N. Beg, A. Calisti, S. Ferri, R. Florido, P. Forestier-Colleoni, S. Fujioka, M.A. Gigosos, L. Giuffrida, L. Gremillet, J. Honrubia, S. Kojima, P. Korneev, K.F.F. Law, J.-R. Marquès, A. Morace, C. Mossé, O. Peyrusse, S. Rose, M. Roth, S. Sakata, G. Schaumann, F. Suzuki-Vidal, V.T. Tikhonchuk, T. Toncian, N. Woolsey, Z. Zhang, Laser-driven strong magnetostatic fields with applications to charged beam transport and magnetized high energy-density physics, (2017) 1–11. http://arxiv.org/abs/1712.07175.
- [4] H. Sawada, W. Theobald, C. Stoeckl, G. Fiksel, P.K. Patel, C.D. Chen, T. Yabuuchi, F.N. Beg, R.B. Stephens, K.U. Akli, H.S. McLean, M.H. Key, Monochromatic Imaging of 8.0-keV Cu <formula formulatype="inline"><tex
 Notation="TeX">\$¥hbox{K}¥alpha\$ </tex></formula> Emission Induced by Energetic Electrons Generated at OMEGA EP, IEEE Trans. Plasma Sci. 39 (2011) 2816–2817. doi:10.1109/TPS.2011.2160877.
- [5] H. Sawada, S. Lee, T. Shiroto, H. Nagatomo, Y. Arikawa, H. Nishimura, T. Ueda, K. Shigemori, A. Sunahara, N. Ohnishi, F.N. Beg, W. Theobald, F. Pérez, P.K. Patel, S. Fujioka, Flash Kα radiography of laser-driven solid sphere compression for fast ignition, Appl. Phys. Lett. 108 (2016) 254101. doi:10.1063/1.4954383.
- [6] H. Sawada, T. Daykin, H.S. McLean, H. Chen, P.K. Patel, Y. Ping, F. Pérez, Two-color monochromatic x-ray imaging with a single short-pulse laser, Rev. Sci. Instrum. 88 (2017) 63502. doi:10.1063/1.4985729.
- [7] A. Nikroo, E. Castillo, D. Hill, A.L. Greenwood, Preparation of Cu-doped glow discharge polymer coatings for ICF applications, Fusion Sci. Technol. 45 (2004) 144–147.
- [8] L.C. Jarrott, M.S. Wei, C. McGuffey, A.A. Solodov, W. Theobald, B. Qiao, C. Stoeckl, R. Betti, H. Chen, J. Delettrez, T. Döppner, E.M. Giraldez, V.Y. Glebov, H. Habara, T. Iwawaki, M.H. Key, R.W. Luo, F.J. Marshall, H.S. McLean, C. Mileham, P.K. Patel, J.J. Santos, H. Sawada, R.B. Stephens, T. Yabuuchi, F.N. Beg, Visualizing fast electron energy transport into laser-compressed high-density fast-ignition targets, Nat. Phys. advance on (2016) 1–7. doi:10.1038/nphys3614.

- [9] R.L. McEachern, C.E. Moore, R.J. Wallace, The design, performance, and application of an atomic force microscope-based profilometer, J. Vac. Sci. Technol. A Vacuum, Surfaces, Film. 13 (1995) 983–989. doi:10.1116/1.579662.
- [10] D.H. Edgell, R.S. Craxton, L.M. Elasky, D.R. Harding, S.J. Verbridge, M.D. Wittman, W. Seka, Three-Dimensional Characterization of Spherical Cryogenic Targets Using Ray-Trace Analysis of Multiple Shadowgraph Views, Fusion Sci. Technol. 51 (2007) 717–726. doi:10.13182/FST07-A1469.
- [11] N. Iwata, K. Mima, Y. Sentoku, A. Yogo, H. Nagatomo, H. Nishimura, H. Azechi, Fast ion acceleration in a foil plasma heated by a multi-picosecond high intensity laser, Phys. Plasmas. 24 (2017) 73111. doi:10.1063/1.4990703.
- M. TAKAGI, T. NORIMATSU, T. YAMANAKA, S. NAKAI, Development of deuterated polystyrene target for laser fusion by means of density-matched emulsion method., KOBUNSHI RONBUNSHU. 48 (1991) 41–45. doi:10.1295/koron.48.41.
- [13] H. Huang, L.C. Carlson, W. Requieron, N. Rice, D. Hoover, M. Farrell, D. Goodin, A. Nikroo, J. Biener, M. Stadernann, S.W. Haan, D. Ho, C. Wild, Quantitative defect analysis of ablator capsule surfaces using a leica confocal microscope and a high-density atomic force microscope, Fusion Sci. Technol. 70 (2016) 377–386. doi:10.13182/FST15-220.
- [14] R.E. Kidder, Theory of homogeneous isentropic compression and its application to laser fusion, Nucl. Fusion. 14 (1974) 53. doi:10.1088/0029-5515/14/1/008.
- [15] H. NAGATOMO, T. JOHZAKI, A. SUNAHARA, K. MIMA, The formation of high-density core plasma in non-spherical implosion using high-resolution two-dimensional integrated implosion code, J. Plasma Phys. 72 (2006) 791. doi:10.1017/S0022377806004892.
- M. Murakami, J. Sanz, Y. Iwamoto, Stability of spherical converging shock wave, Phys. Plasmas. 22 (2015) 1–10. doi:10.1063/1.4923437.
- [17] 笹田義夫, 大橋裕二, 齊藤喜彦, 結晶の分子科学入門, 1989.http://www.kspub.co.jp/book/detail/1533141.html.
- [18] 松岡正邦,結晶多形の基礎と応用,2010. https://www.cmcbooks.co.jp/products/detail.php?product%7B_%7Did=2827.
- [19] K. Sato, 長鎖脂肪酸の結晶多形と結晶化機構, 日本結晶成長学会誌. 11 (1989) 157– 175. doi:10.19009/jjacg.11.4_157.
- [20] M. Suzuki, T. Ogaki, K. Sato, Crystallization and transformation mechanisms of α, β- and γpolymorphs of ultra-pure oleic acid, J. Am. Oil Chem. Soc. 62 (1985) 1600–1604. doi:10.1007/BF02541697.
- [21] K. Sato, J. Yano, I. Kawada, M. Kawano, F. Kaneko, M. Suzuki, Polymorphic behavior of gondoic acid and phase behavior of its binary mixtures with asclepic acid and oleic acid, J. Am. Oil Chem. Soc. 74 (1997) 1153–1159. doi:10.1007/s11746-997-0039-7.

- [22] S. Arima, S. Ueno, A. Ogawa, K. Sato, Scanning Microbeam Small-Angle X-ray Diffraction Study of Interfacial Heterogeneous Crystallization of Fat Crystals in Oil-in-Water Emulsion Droplets, Langmuir. 25 (2009) 9777–9784. doi:10.1021/la901115x.
- [23] S. Sakata, S. Lee, T. Johzaki, H. Sawada, Y. Iwasa, H. Morita, K. Matsuo, K.F.F. Law, A. Yao, M. Hata, A. Sunahara, S. Kojima, Y. Abe, H. Kishimoto, A. Syuhada, T. Shiroto, A. Morace, A. Yogo, N. Iwata, M. Nakai, H. Sakagami, T. Ozaki, K. Yamanoi, T. Norimatsu, Y. Nakata, S. Tokita, N. Miyanaga, J. Kawanaka, H. Shiraga, K. Mima, H. Nishimura, M. Bailly-Grandvaux, J.J. Santos, H. Nagatomo, H. Azechi, R. Kodama, Y. Arikawa, Y. Sentoku, S. Fujioka, Magnetized Fast Isochoric Laser Heating for Efficient Creation of Ultra-High-Energy-Density States, (2017) 1–10. http://arxiv.org/abs/1712.06029.

4. トリチウム添加手法の開発

4.1. トリチウムによるイオン温度計測

燃料のイオン温度は核融合研究において最も重要なパラメータの一つである。

通常、イオン温度は核融合中性子の計測によっておこなわれる。最も一般的な測定法は中 性子のドップラー拡がりからイオン温度を見積もるものである[1][2][3]。燃料プラズマ中で、 DT 燃料はイオン温度に対応したマクスウェル分布に従った速度分布をもつ。核融合反応で 発生する中性子は基本的には単色のエネルギーを持っているが、燃料が持っている初期速 度分布を反映した速度分布をもつ。この測定では、核融合燃料から発生した中性子の飛行時 間分解(Time-of-flight)測定を行うことにより、燃料のイオン温度を測定することができる。

高速点火核融合実験では、加熱レーザーによって燃料のイオン温度がどこまで上昇した かを測定することは非常に重要となる。しかしながら、序論で述べたように、高強度の短パ ルスレーザーを照射することによって発生した硬 X 線、およびそれに伴う光核中性子が大 量に発生する。これらの中性子はブロードなエネルギー分布をもっている為、核融合中性子 を統計的に計測することの妨げとなっている[4][5]。

イオン温度測定を測定するための異なる手法として、DD 反応と DT 反応の反応断面積の 違いを利用してイオン温度を測定することが挙げられる。DD 反応と DT 反応ではイオン温 度に対する反応断面積が異なる[6]。Fig.4.1 に反応断面積を示す。



Fig.4.1 核融合反応断面積のイオン温度特性[6]

DとTを既知の比で調整した燃料を用いることで、発生した DD 中性子と DT 中性子の比からイオン温度を導くことができる。単位体積、単位時間当たりの DD 核融合反応、DT 核融合反応の反応率 R_{DD} および R_{DT} は次の式のように表せる。

$$R_{DD} = \frac{n_d^2}{2} \langle \sigma v \rangle_{DD} \tag{4.1}$$

$$R_{DT} = n_D n_T \langle \sigma \nu \rangle_{DT} \tag{4.2}$$

 n_d 、 n_t はそれぞれ重水素、トリチウムの原子数密度、 $(\sigma v)_{DD}$ 、 $(\sigma v)_{DT}$ はそれぞれ DD 核融合 反応、DT 核融合反応の平均反応性を表す。 $(\sigma v)_{DD}$ 、 $(\sigma v)_{DT}$ はいずれもイオン温度に依存す る値である。トリチウムが添加された重水素含有燃料から発生した DD 中性子、DT 中性子 をそれぞれ Y_{nDD} 、 Y_{nDT} とすると Y_{nDD}/Y_{nDT} は次のようになる。

$$\frac{Y_{nDT}}{Y_{nDD}} = \frac{2n_t \langle \sigma v \rangle_{DT}}{n_d \langle \sigma v \rangle_{DD}}$$
(4.3)

この式で、初期の重水素-トリチウム原子比 n_t/n_d が既知であれば中性子の発生数の比は (σv)_{DT}/(σv)_{DD}に依存する。この比は Fig.4.1 のように温度によって決定されるため、イオン 温度を逆算することが可能となる。

初期の燃料比を D:T=99:1 とすると次の Fig.4.2 に示すような DD/DT 中性子比の計測を

行うことができる。



Fig.4.2 トリチウム添加ターゲットを用いた際の DT、DD 中性子発生比[7]

また、計測条件を同様にするため、発生した DD 中性子と DT 中性子は同じ計測器で検出 することが望ましい。中性子検出の際には発生する中性子の数によってシンチレータに取 り付けられた光電子増倍管の印加電圧を調整する。同一の検出器で検出するためには DD 中 性子と DT 中性子のおおよその中性子発生数が同程度であることが必要である。DT 中性子 の反応断面積は DT 中性子に比べ 100 倍程度大きいため、DD、DT 中性子の発生数自体が同 程度発生させるためには、トリチウムを 1%程度添加したターゲットが必要である。

核融合点火を狙うような実験では固体の重水素-三重水素を主燃料に用いたターゲットが 用いられるが、固体水素を得るためには極低温環境が必要であるため基礎実験には模擬燃 料ターゲットが用いられる。重水素化ポリスチレン製のシェルターゲットは低原子番号の 元素で構成され、化学的に安定で高精度のカプセルを形成できるため模擬燃料としてレー ザー核融合実験に用いられてきた[8]。本研究では重水素化ポリスチレン製のシェルターゲ ットにトリチウムを添加する技術の開発を行った。

4.2. トリチウム添加ターゲット

4.2.1. Wilzbach 法によるトリチウム添加

トリチウムをプラスチックシェルターゲットに添加するにはシェル形成段階前のエマル ジョン合成段階で重水素(D)とトリチウム(T)を化学的に交換する手法が考えられる。この 手法では、ポリマー中のトリチウム濃度が均一になり、化学量論的に濃度を正確に調整す
ることが可能である。しかし、高濃度のトリチウムを用いる場合、合成したエマルジョン は高い被放射能を持ち、1%の重水素をトリチウムに置換した場合エマルジョンの被放射 能は1TBq/gとなり取り扱いが難しくなり、作成の際に100TBqを超えるトリチウムが必 要となる。また、トリチウムから放出されるβ線によってポリマーの分解・合成などが生 じ、精密なシェルの製造に影響を及ぼすことが懸念される。

そこで、一旦成形されたポリスチレンシェルをトリチウムガス中に置き、有機化合物に標 識化する手法として、気体接触法(Wilzbach法)[9][10]を用いる。この手法ではトリチウムの β線が有機化合物に照射されることによって、化合物中の水素(または重水素)との同位体 交換が生じる。

この反応では以下のような反応が生じていると考えられている[10]。

(1)三重水素の崩壊による反跳三重水素による反応

$$T_2 \rightarrow (3HeT) + +R-H \rightarrow R-T \tag{4.4}$$

(2) β線によって励起、イオン化された三重水素と被標識化合物の反応

$$T_2 + \beta \rightarrow T_2^* \rightarrow 2T \tag{4.5}$$

$$2T+R-H\rightarrow R-T+HT$$

(3)β線によって励起イオン化された被標識化合物分子と三重水素の反応

$$R-H+\beta \rightarrow R-H^{+}+e^{-}$$

$$R-H+\beta \rightarrow R-H^{*}$$

$$R-H^{+}+T_{2}\rightarrow R-T+HT$$

$$R-H^{*}+T_{2}\rightarrow R-T+HT$$
(4.6)

Rは被標識有機化合物を表す。

しかし、この反応はトリチウムの崩壊に依存しているため置換速度は遅い。トリチウムは 気体状の非密封放射性物質であるため、使用する時間は可能な限り短いほうが好まれ、充填 時間は 24 hr 程度であることが現実的であると考えられる。

先行研究[11]の実験によると、DT ガス 20 気圧下に重水素化ポリスチレンシェルを置き、 168 時間、432 時間接触させたのち、取り出して放射能を測定したところ、両者とも単位時 間、トリチウム圧力あたりの置換率が 0.0211 GBq/g/atm/hr、0.0207 GBq/g/atm/hr であった。 この置換率を用いて、トリチウム 1 atm 中での置換を考えると 1%の置換にかかる時間は

$$\frac{3.82 * 10^{13} / 50}{0.021 * 10^9} = 3.64 \times 10^4 [hr]$$
(4. 7)

となり、置換率が低く現実的な値でないことが分かる。このため、置換を促進し、置換率を 増大する必要がある。

4.2.2. Wilzbach 法の促進

Wilzbach 法の置換率を向上させるための手法として、触媒による置換促進、紫外線照射法、プラズマ照射法、γ線(X線)照射法、ヨウ素添加法などがあげられる[10][12][16]。

爆縮実験に用いる際にはシェルの構成元素はプラズマ化する。Z 番号の高い元素が含まれ ていると爆縮過程で強い X 線を放出し、輻射によるプラズマ冷却やコアの先行加熱 (preheating)の問題がある。このため高 Z 原子の残留が免れない触媒による方法と、ヨウ 素添加による手法はここでは不適となる。また、γ線の照射はポリスチレンシェル自体を分 解してしまう可能性があり、シェルの表面状態の悪化が予想されるため、ここでは不適とし た。本研究では、紫外線照射とプラズマ照射による手法について検討した。

Takagi 等はプラスチックカプセルにトリチウム添加を行い、表面付近では 1:1 程度までプ ラスチック内でのトリチウム濃度を高めることを報告している[11]。しかし、これらの手法 によるトリチウム添加は完全に理解されてはおらず、添加手法の基礎的な特性の理解が必 要である。また、この研究では石英管にトリチウムを 20-30 気圧程充填して実験を行ってい た。トリチウムは放射性物質であるため、負圧状態で取り扱うことが望ましい。本研究では 負圧にトリチウムを充填した状態でのトリチウムの添加促進を行った。

本研究ではトリチウム添加燃料作製のために次の(1)トリチウム添加促進手法、(2)ト リチウム添加量、(3)トリチウムの空間分布の3つの技術についての研究を行った。

4.3. トリチウム添加促進手法の検討

4.3.1. 照射方法の検討

トリチウムは放射性物質であるために、取り扱いには非常に注意が必要である。Wilzbach 法を用いてトリチウム添加を行う場合、トリチウムを充填している際に生じる不測の事態 を考慮する必要があるため、充填時間はできるだけ短い方が好ましい。

前節で述べた通り、紫外線照射、プラズマ照射によるトリチウム添加促進効果についての 検討を行った。

4.3.2. 実験手法

放射性物質の取扱いは、放射線管理区域で使用せねばならず、紫外線照射実験については 大阪大学レーザーエネルギー学研究センター内にある三重水素充填室で、プラズマ照射実 験については富山大学水素同位体科学研究センターで行った。また、本研究で取り扱った三 重水素は T₂ ガス(非密封 RI)の形で保管されているので、気体の拡散や安全面の対策として T₂ ガスを用いる系は全てグローブボックスの中で行った。

Fig.4.3 にトリチウム実験用のグローブボックスの写真を示す。このグローブボックスは 三重水素回収室にある三重水素回収装置と接続されており、回収装置を起動させるとグロ ーブボックス内の三重水素を回収装置で吸着できるようになっている。本研究では充填実 験時にはこの回収装置を起動したまま行った。



Fig.4.3 トリチウムハンドリング用のグローブボックス

次に、三重水素の吸着および放出を行う三重水素ハンドリング系について記す

平常時、三重水素は Zr-Ni に吸着されており、実験時にはこの Zr-Ni の周りのヒーターで Zr-Ni を加熱することによって三重水素を放出させる。Zr-Ni は、実験系への導入口および真 空ポンプとパイプ(Swagelock 製)により接続されている。このパイプにはいくつかの真空バ ルブ(Swagelock 製)が取り付けられており、これらによって、三重水素を充填した領域また は真空を引いた領域をコントロールすることが可能である。真空ポンプには ISP-250C(アネ スト岩田製、到達圧力 1.6 Pa 以下)を用いた。系にはトランスデューサー(Swagelock S モデ ル)、キャパシタンスゲージ(Canon Anelva M341DG)、コールドカソードピラニーゲージ (Canon Anelva M360CP)の 3 つの真空計、圧力計が取り付けられており、これらの数値をも とに、ヒーター、真空ポンプ、バルブを操作する系になっている。Fig.4.4 に系を示す。こ の三重水素ハンドリング装置に実験系をつなぐことによって実験系に三重水素を充填し実 験を行った。



Fig.4.4 三重水素ハンドリング装置の模式図(a)と写真 (b)

次に Fig.4.5 に実験系を示す。

本実験では添加促進手法による添加効果の比較のため、添加促進を行わないサンプルと、2つの波長の紫外線(266 nm, 355 nm)をそれぞれ照射したサンプル、トリチウムを含む水素同位体混合ガスを放電させた水素プラズマに接触させたサンプルの4種類を比較した。



Fig.4.5(a)紫外線照射実験および(b)プラズマ照射実験の実験系

チャンバーを真空引きしたのち、Zr-Ni ベッドを加熱することで 4.8×10⁴ Pa の T₂ ガスを 充填した。ポリスチレン(Nacarai tesque, n= 1000-1400)をホットプレートの上で 120℃まで加 熱し、プレスすることで 1 mm の厚さに加工した。紫外線の光源は Nd:YAG レーザーの第 3 高調波(355 nm)及び第 4 高調波(266 nm)を利用した。レーザーのパルス幅は 10 ns、繰り返し は 10 Hz であった。レーザーは石英窓が取り付けられたチャンバーに導かれ、薄膜試料に垂 直に照射される。照射エネルギーはカロリーメーター(THORLABS 302C)を用いて測定した。 レーザーはアパーチャーを用いて直径 2.3 mm に調整した。紫外線のインテンシティが高い とポリスチレンへのダメージやアブレーションなどが引き起こされるため、ポリスチレン へのダメージが見られない強度で紫外線を照射した。このときの 266 nm および 355 nm の 紫外線はそれぞれ 17 mW、25 mW でサンプルに照射され、インテンシティは 4.1×10⁶ W/cm²、 6.0×10⁶ W/cm² であった。トリチウムへの暴露及びレーザーの照射は 2 時間行った。

水素プラズマの照射を行ったチャンバーは試料台が陰極、チャンバー全体が陽極になって おり、電圧を印加することで水素のグロー放電プラズマを得ることができる。プラズマ放電 を行うため、Zr-Coベッドから H:D:T=82:13:5 の比率で全圧 120 Paの水素ガスを充填した。 試料のポリスチレンフィルムは伝導性のある SUS プレートの上に作製する必要があるため、 ジクロロエタンに溶解したのち、SUS のプレート上に溶液を滴下し、溶媒を除去すること で得た。電極に 250V の電圧を印加することで、チャンバー中に水素のグロー放電プラズマ を作製した。電圧の印加は1時間行った。

Table 7 に実験条件を示した。

	Time [hr]	Partial Pressure [Pa]	Energy [J]	Intensity [W/cm ²]
w/o enhancement	2	$4.8 imes 10^4$	-	-
266 nm	2	$4.8 imes 10^4$	1.2×10^{2}	4.1×10^{6}
355 nm	2	$4.8 imes 10^4$	1.7×10^{2}	6.0×10^{6}
Plasma	1	6	-	-

Table 7 添加促進実験の条件

照射後の試料は、イメージングプレート(GE Healthcare BAS-IP TR)を利用して測定した。 イメージングプレートに試料を設置し、15分間トリチウムから放出されるβ線を照射した。 イメージングプレートをリーダー(GE Health- care Typhoon FLA7000)で読み出すことでβ線 の照射量に応じた Photostimulated luminescence (PSL)と呼ばれる信号量を得る[13]。トリチウ ムの添加量と PSL の関係は標準線源を用いて校正を行った。

4.3.3. 実験結果

Fig.4.6にイメージングプレートでの測定結果を示す。



Fig.4.6 添加促進実験の測定結果(a)促進なし(b)266nm 照射(c)355nm 照射(d)プラズマ照射

この結果から、レーザーを照射したスポットが局所的に高いトリチウム添加量が得られたことが分かる。また、プラズマを照射した試料では均一にトリチウムが照射された。Fig.4.6内の破線で囲んだ領域の平均のトリチウム添加量をFig.4.7に示す。



Fig.4.7 紫外線・プラズマ照射による添加促進効果

添加促進効果を行っていないサンプルのトリチウム添加効果は先行研究で得られた 2.1×10⁷ Bq/g/atm/hr に比べ3 ケタほど高い 8.8×10¹⁰ Bq/g/atm/hr であった。これは照射チャン バーの形状の違いによって試料に照射された β 線量が異なっていたことが原因であると考 えられる(AppendixII)。また、先行研究では液体シンチレーターによるポリスチレンシェル 全体の比放射能を測定しているのに対し、本研究ではイメージングプレートによる測定を 行っているため、測定される β線は表面近傍に存在しているトリチウムを反映したもので ある。Lewkowicz等は表面付近とバルク中ではWilzbach法によるトリチウム添加効果が異 なっていることを報告しており[14]、このような違いが見られたと考えられる。

紫外線・プラズマ照射を行った試料では未照射のものに比ベトリチウムの添加量が増大 していることが分かる。この内、266 nm の紫外線を照射した試料では未照射時に比べ約 10 倍程度のトリチウム添加量が得られた。355 nm を照射した試料では照射したスポットでは 未照射サンプルに比べ約 2 倍程度の添加促進効果が得られた。照射したエネルギーは 266 nm 比べても多かったにもかかわらず、添加促進効果は 266 nm のものよりも小さい。これ はポリスチレンフィルムでの紫外線の吸収量が関係していると考えられる。Fig.4.8 にポリ スチレンフィルムの紫外線の透過率を示す。



Fig.4.8 ポリスチレンフィルムの紫外線透過率

355 nm ではポリスチレンへの透過率が高く、ポリスチレン中での紫外線の吸収はほとん ど期待できない。一方、ポリスチレンは 260 nm 付近にベンゼン環に起因する吸収帯を持つ [15]。266 nm はポリスチレン中のベンゼン環に吸収され、トリチウム添加が促進されたと考 えられる。また、吸収のない 355 nm の照射でも置換促進が生じた理由は、重合後にポリス チレンに存在する発色団の吸収によってラジカルが発生したからであると考えられる [16][17]。

紫外線が照射されたときの、ポリスチレンの反応過程では次のような反応が考えられる。

まず、ポリスチレン中のベンゼン環が光を受け、励起一重項状態となり、次に三重項状態 へと進む。



このとき三重項状態のエネルギーによって C-Phenyl 結合を切断する。





このとき **D***は非常に動きやすいので、ポリマー外に出るがベンゼン環は動きが制限され るのでその周囲の分子と反応する。そのときにポリマー中の水素を引き抜くことがある。 さらに不均斉化反応で切断も起きる。



以上のようにして生成したポリスチレンラジカル(-C*)、励起状態(-CD*)およびイオン化 状態(-CD⁺)の近傍に三重水素が存在することから置換が行われると考えられる[18][19]。 プラズマを照射した試料では未照射試料に比べ、試料全面に均一に 2 倍程度の添加促進 効果が得られた。本実験で用いた水素ガスはトリチウムを 5%含んだものであるため、T₂ガ スを用いた際には更なるトリチウム添加量が期待できる。ここで、トリチウム添加量がトリ チウム分圧、照射時間に比例すると仮定すると、1 時間当たりのトリチウム添加量は 4.3×10¹¹ Bq/g/hr となる。これは 266 nm の紫外線を照射した際の 1 時間当たりのトリチウム添加量 4.2×10¹⁰ Bq/g/hr に比べ 10 倍大きな値となる。このことからプラズマ照射を行うことでトリ チウムを効率よく添加することができることが分かった。

4.4. 紫外線によるトリチウム添加量

4.4.1. 紫外線の照射量

4.3 では、紫外線照射、プラズマ照射がトリチウム添加に有用であることを示した。本 節では、照射量及び試料形状の制限が少ない紫外線照射法に着目して述べる。

トリチウム添加ターゲットを作製する際、トリチウムの添加量を制御することは重要で ある。本節では目標の添加量に必要な紫外線の照射量を見積もるために紫外線の照射量と トリチウム添加量の関係について述べる。

4.4.2. 実験手法

本節では紫外線の照射量を変えながら、トリチウムの添加量を測定した。 試料、実験系は 4.3.2 で示したものと同一のものを用いた。紫外線をそれぞれ 1 時間、2 時間、10 時間照射した。

トリチウム添加量の測定は4.3.2 と同様である。トリチウム添加量がイメージングプレートの読み出しの上限を超えると一度の読み出しでは添加量が測定できないため、複数回読み出しを行った。この場合も、標準線源を照射したイメージングプレートを複数回読み出して校正を行った。

4.4.3. 実験結果

Fig.4.9に結果を示す。10時間照射した試料はイメージングプレートの読み出し上限を超 えていたため、3回読み出した結果を示す。



Fig.4.9 紫外線照射を行った試料のイメージングプレート結果

これらの結果を紫外線の照射量によってプロットしてものを Fig.4.10 に示す。



Fig.4.10 紫外線照射量に対するトリチウム添加量。赤破線は1%トリチウム添加を行った際のトリチウム濃度を示す。

この結果からトリチウム添加量は紫外線の照射量に比例して増加していることが分かる。 図中に 1%のトリチウム添加した際の 7.6×10¹¹ Bq/g を赤の破線で示した。これらの結果か ら、紫外線照射量に対するトリチウム添加量の添加効率を計算すると 7.4×10⁸ Bq/g/J を得た。 1%の添加にはおよそ 1000 J の紫外線を照射すればよいことが分かった。 Table 8 に添加手法ごとの1%トリチウム添加に必要な時間を示す。

	w/o enhancement	UV 17 mW	plasma in 100% Tritium
doping rate [Bq/g/hr]	4.6 x 10 ⁹	4.2 x 10 ¹⁰	4.3 x 10 ¹¹
doping time [hr]	165	18	1.8
enhance efficiency	-	9.3	93

Table 8 トリチウム添加手法と1%トリチウム添加に要する照射時間

この結果より、添加促進を行わなかった場合に比べ、266nm およびプラズマを照射することで、10-100 倍のトリチウム添加を行うことができる。この結果、トリチウムの取り扱い時間を1 日以内にすることができることが分かった。

4.5. 燃料中のトリチウム空間分布の測定

4.5.1. ポリスチレン中でのトリチウム分布

爆縮実験ではシェルターゲットに球対称的にレーザーが照射され、シェルの外側に設けられたアブレーターと呼ばれる箇所がアブレーションによって外側に噴出する。この反作用によってシェルの内側の燃料が圧縮される。点火用ターゲットではアブレーターはプラスチック、ダイアモンド等の低 Z 番号の原子によって作られ、その内側に燃料となる重水素とトリチウムの固体層が設けられるが、重水素化プラスチックシェルターゲットを用いる実験ではプラスチックがアブレーター・燃料の両方の役割を果たす。このため、トレーサーとして添加したトリチウムが核融合燃料として反応するかは空間分布に大きく依存する。Fig.4.11に1次元シミュレーションコード ILESTA で直径 500 µm、膜厚 7 µm のシェルを3 kJ レーザーで行った典型的な爆縮の計算結果を示す。



Fig.4.11 ILESTA による φ500 μm、膜厚 7 μm シェルの爆縮シミュレーション結果。赤 で示したラインは外側から 3.5 μm の層を表す。

赤で示した線はシェルの中点に位置する層の挙動を示す。これより、シェルの外側の約半 分が噴出し、残りの半分が高密度コアを形成していることが分かる。よって、トリチウムを 核融合の燃料として用いるためにはシェルの内側 3.5 μm に添加する必要がある。

本節ではトリチウムがポリスチレン中でどのような空間分布をもっているかを測定した。

4.5.2. 実験手法

前節でポリスチレンに紫外線を照射しトリチウムを添加した試料の断面を作製した。この断面から放出されるβ線の分布を測定することでトリチウムの空間分布を測定した。 Fig.4. 12 に測定の概要を示す。



Fig.4.12 トリチウム添加を行った試料の空間分布測定手法

試料測定について述べる。試料薄膜をナイフで切断し、PVA 水溶液を用いて 15×10 mm のスライドガラスに張り付けた。このスライドガラスをプラスチック容器中に治具を用い て垂直に立て、試料包埋用のエポキシ樹脂を流し込み1日程度静置することで試料を包埋 した。今後、この試料を包埋したものを断面サンプルとよぶ。断面サンプルの表面を紙や すり(#1000-#3000)で湿式研磨を行い、最後にアルミナ研磨剤(粒径 0.3 μm)で仕上げた。研 磨後、20 分間超音波洗浄を行った。作製した試料を Fig.4.13 に示す。



Fig.4.13 エポキシ樹脂に包埋し、断面を研磨した試料。

次に、ラジオグラフィ法による測定手法について述べる。これまでの実験で用いたイメー ジングプレートを用いたラジオグラフィ法は暗室での処理が不要である、現像がいらず読 み取りが容易であるなどの利点をもつが、読み取りの分解能が最大で25×25 μm であるため、 本章の測定対象である分布測定には用いることができない。このような理由から本実験で は写真乳剤を用いたミクロオートラジオグラフィを用いた測定を行った。

写真乳剤には感光性の銀塩が用いられており、光や放射線などのエネルギーによってハ ロゲン化銀が分解し潜像を作り、現像処理を施すことで銀粒子が析出し画像情報を読み取 ることができる。この時の銀粒子の平均粒子径で分解能が決定する。本実験では平均粒径 0.4 µm の銀塩写真乳剤(Kodak NTB emulsion)を用いた。

写真乳剤をスライドガラスに塗布する方法を述べる。写真乳剤は可視光で感光してしま うため現像処理するまでは暗室または遮光した箱内に入れ保管し、作業はすべて赤色のセ ーフライト下で行った。銀塩は温度によっても化学変化を起こしてしまうため、写真乳剤 は通常 4-13 ℃で保管した。この状態では乳剤は固体なので、使用する際は 43-45 ℃の湯 で湯煎し溶解した。この状態で洗浄済みのスライドガラスを乳剤に浸し引き上げた。乳剤 を塗布したスライドガラスを暗室で1日乾燥させ、その後は冷蔵庫で保管した。

遮光された箱の中で、作成した断面サンプルの上に写真乳剤を塗布したスライドガラス を置き接着させ露光を行った。露光時間は写真乳剤の感度とサンプルのトリチウム添加量 によって決定した。露光終了後、写真乳剤をサンプルから離し、現像処理を行った。 現像は現像液(Kodak DEKTOL Developer)に浸し2分現像を行った。10秒間純水に浸し現像を停止したのち、定着液(Kodak Fixer)に5分浸し、最後に純水で5分間洗浄した。その後、通常照明下で乾燥を行った。以上の露光・現像はすべて室温下で行った。

現像後の銀粒子の分布をデジタルマイクロスコープ(KH-7700)で観察した。可動式ステージを用い 2D タイリングを行うことにより、複数の画像を一つにまとめて解析を行った。

4.5.3. 実験結果

Fig.4. 14 に 10 時間紫外線を照射したてトリチウムを添加したサンプルの断面を 40 分間写真乳剤に露光して得られた顕微鏡画像を示す。



Fig.4.14 写真乳剤の黒化度の観察画像

紫外線を照射した薄膜の表面付近にトリチウムの β 線によって写真乳剤が黒化した様子 が観察された。この黒化度分布は薄膜から放出された β 線を検出したものであるため、実際 のトリチウム分布の特定には β 線がポリスチレン中、および写真乳剤中を進んだ飛程を考 慮する必要がある。

トリチウムは最大 18.6 keV、平均 5.7 keV の β 線を放出する。位置 x=0 で放出された β 線 が高分子中での位置 x でのエネルギーEx は次式のように表せる[20]。

$$E_x = E_0 exp(-\frac{x}{0.88}) \tag{4.11}$$

ここで Eoはβ線の初期エネルギーを表す。

Takagi 等は紫外線を照射してトリチウム添加促進を行うと紫外線の強度分布に従ったト リチウム分布が得られることを報告している[11]。また、同様に酸素雰囲気中でポリスチレ ンに紫外線を照射した実験でも紫外線の波長に依存する分布が見られることが報告されて いる[21]。本研究で照射した 266 nm のポリスチレン中の吸収減衰分布は次の式のように表 せられる。

$$I_x = I_0 exp(-0.42x) \tag{4.12}$$

ここで I₀および I_xは距離 0、x の際の紫外線の強度を表す。トリチウム分布がこの分布に従 うとすれば、写真乳剤の黒化度の空間分布は式(4.11)の拡がりと式(4.12)を畳込みした式 で表せる。

Fig.4.15(a)のようにポリスチレンの表面を x=0 とし、ポリスチレン内部を負、外側を正と すると x=t の位置から発生するトリチウムによる写真乳剤へのエネルギー付与関数 f(x,t)は 次式のように書ける。

$$f(x,t) = exp(0.419t - \frac{|x-t|}{0.88})$$
(4.13)

この関数をtについて積分することで写真乳剤上で得られたエネルギー付与分布関数F(x) を次のように得る。

$$F(x) = \int_{-\infty}^{0} f(x,t)dt$$
 (4.14)

このようにして得られた分布関数 F(x)を Fig.4.15(b)に示す。



Fig.4.15 (a)トリチウムからのβ線拡がり分布の模式図と(b)コンボリューションで得ら れた写真乳剤でのエネルギー付与分布関数 F(x)

Fig.4. 14 で示した実験で得られた黒化度分布と、これらのモデルによる分布関数を比較 したものを Fig.4. 16 に示す。



Fig.4.16 写真乳剤の黒化度分布(黒線)とモデル分布関数(青破線)

この図からわかるように、実験で得られた写真乳剤の黒化度分布はよく一致した。このこ とから、ポリスチレン中でのトリチウムは紫外線の吸収減衰分布に一致し、指数関数的に減 少しており、トリチウムはポリスチレンの表面から数 µm の範囲に分布していることが分か った。

同様の測定を、プラズマを照射した試料で行ったものを Fig.4.17 に示す。



Fig.4.17 プラズマを照射した試料の写真乳剤の黒化度分布

紫外線を照射したものにくらべ、黒化度分布が狭い領域に限られていることが分かる。この 分布はポリスチレンの内部、外部共に同じ程度の拡がりを持つことから、プラズマを照射し た試料では表面近傍の狭い領域(<1 μm)に分布していると考えられる。

4.6. トリチウム添加ターゲットの作製

4.4、4.5の結果から、紫外線およびプラズマを照射することでポリスチレンへのトリチ ウム添加効果を有意に促進できることが分かった。また、4.6の結果から、紫外線又はプラ ズマを用いた場合、トリチウムは照射された表面から数 µm 以内に分布することが分かっ た。Fig.4.11に示した1次元シミュレーションの結果では、ポリスチレンシェルの外側半 分は外側に噴出され、核融合燃料とならないため、紫外線、プラズマをシェルの外側から照 射することは有効な手段とならない。

プラズマの照射は燃料形状や電極の必要性など自由度が少なく、添加されるトリチウム も表面近傍に限られてしまうため、紫外線による添加促進を選択した。シェルターゲットに トリチウムを添加するためにはシェルの内部から添加促進を行う必要がある。高速点火タ ーゲットにはガイドコーンを設置するための直径 200 μm 程度の穴があるため、この穴を利 用した照射方法を考えた。

Fig.4. 18(a)は石英ファイバーの先端に直径 1µm の石英粉末を取り付けたものである。この石英ファイバーに紫外線を導くことで石英粉末によって散乱される。このファイバーをガイドコーン用の穴から導入することで、シェル内部に紫外線が照射される。Fig.4. 18(b)に

組み立てられたファイバー付きターゲットの図を示す。



Fig.4.18 プラズマを照射した試料の写真乳剤の黒化度分布(黒線)

このような照射系を用いることでトリチウムを1%添加したポリスチレンシェルターゲットの作製が可能であると考えられる。

4.7. まとめ

本章では、燃料イオン温度評価のためのトリチウムを1%添加したポリスチレンシェルタ ーゲットの開発を行った。

本章ではトリチウム Wilzbach 法を促進するために紫外線およびプラズマを用いた添加促進手法を検討した。その結果、266 nm を照射することにより 10 倍近い添加促進効果が見られた。この促進効果にはベンゼン環による吸収が効果的に作用していることが分かった。

266 nm の紫外線の照射量を増加していくとトリチウムの添加量が照射エネルギーに比例 して増加していくことを明らかにした。1%のトリチウムを照射するためには約 1000 J の紫 外線の照射が必要であることが分かった。

紫外線、プラズマを照射したポリスチレン薄膜の断面を写真乳剤によるミクロオートラ ジオグラフィ法によって測定した。紫外線を照射した試料では、トリチウムが紫外線の吸収 減衰分布に従って分布していることが分かった。また、プラズマを照射した試料では表面近 傍に位置していることが分かった。

これらの結果をもとに、シェルターゲットの内部から石英ファイバーを用いて紫外線を 照射することで1%のトリチウムを添加したターゲットを作製できることを示した。

第4章の参考文献

- R.A. Lerche, L.W. Coleman, J.W. Houghton, D.R. Speck, E.K. Storm, Laser fusion ion temperatures determined by neutron time-of-flight techniques, Appl. Phys. Lett. 31 (1977) 645–647. doi:10.1063/1.89509.
- [2] M.A. Russotto, R.L. Kremens, Measurement of fuel ion temperatures in ICF implosions using current-mode neutron time-of-flight detectors, Rev. Sci. Instrum. 61 (1990) 3125– 3127. doi:10.1063/1.1141702.
- O.A. Hurricane, D.A. Callahan, D.T. Casey, P.M. Celliers, C. Cerjan, E.L. Dewald, T.R. Dittrich, T. Döppner, D.E. Hinkel, L.F.B. Hopkins, J.L. Kline, S. Le Pape, T. Ma, A.G. MacPhee, J.L. Milovich, A. Pak, H.-S. Park, P.K. Patel, B.A. Remington, J.D. Salmonson, P.T. Springer, R. Tommasini, Fuel gain exceeding unity in an inertially confined fusion implosion, Nature. 506 (2014) 343–348. doi:10.1038/nature13008.
- [4] Y. Arikawa, T. Nagai, H. Hosoda, Y. Abe, S. Kojima, S. Fujioka, N. Sarukura, M. Nakai, H. Shiraga, T. Ozaki, H. Azechi, The photonuclear neutron and gamma-ray backgrounds in the fast ignition experiment, Rev. Sci. Instrum. 83 (2012) 10–13. doi:10.1063/1.4732180.
- [5] Y. Abe, H. Hosoda, Y. Arikawa, T. Nagai, S. Kojima, S. Sakata, H. Inoue, Y. Iwasa, K. Iwano, S. Fujioka, H. Shiraga, M. Nakai, T. Norimatsu, H. Azechi, Development of multichannel time-of-flight neutron spectrometer for the fast ignition experiment, Plasma Fusion Res. 9 (2014) 5–7. doi:10.1585/pfr.9.4404110.
- [6] S. Atzeni, J. Meyer-ter-Vehn, The Physics of Inertial Fusion, 2009.
- [7] 安部勇輝,博士論文,(2016).
- [8] M. TAKAGI, T. NORIMATSU, T. YAMANAKA, S. NAKAI, Development of deuterated polystyrene target for laser fusion by means of density-matched emulsion method., KOBUNSHI RONBUNSHU. 48 (1991) 41–45. doi:10.1295/koron.48.41.
- K.E. Wilzbach, TRITIUM-LABELING BY EXPOSURE OF ORGANIC COMPOUNDS TO TRITIUM GAS 1, J. Am. Chem. Soc. 79 (1957) 1013–1013. doi:10.1021/ja01561a078.
- [10] E.A. Evans, Tritium and its compounds, 2nd ed., Butterworths, 1974.
- M. Takagi, T. Norimatsu, T. Yamanaka, S. Nakai, Fabrication of deuterated-tritiated polystyrene shells for laser fusion experiments by means of an isotope exchange reaction, J. Vac. Sci. Technol. A Vacuum, Surfaces, Film. 10 (1992) 239–242. doi:10.1116/1.578142.
- [12] トリチウム化学研究専門委員、トリチウムの化学、日本原子力学会、1982.
- B.H. Ohuchi, Y. Hatano, Tritium measurement using a photo-stimulable phosphor BaFBr
 (I): Eu 2 + plate, Proc. Radiochem. A Suppl. to Radiochim. Acta. 1 (2011) 49–53.
 doi:10.1524/rcpr.2011.0008.
- [14] I. Lewkowicz, Y. Haruvi, S. Shamash, Targets for Laser-Induced Plasma Experiments, PLASMA Phys. FUSION Technol. (1976) 54–55.

- [15] M.J. Reiney, M. Tryon, B.G. Achhammer, Study of degradation of polystyrene, using ultraviolet spectrophotometry, J. Res. Natl. Bur. Stand. (1934). 51 (1953) 155. doi:10.6028/jres.051.020.
- J.B. Lawrence, N.A. Weir, Photodecomposition of polystyrene on long-wave ultraviolet irradiation: A possible mechanism of initiation of photooxidation, J. Polym. Sci. Polym. Chem. Ed. 11 (1973) 105–118. doi:10.1002/pol.1973.170110109.
- B. Mailhot, J.L. Gardette, Polystyrene photooxidation. 1. Identification of the IR-absorbing photoproducts formed at short and long wavelengths, Macromolecules. 25 (1992) 4119–4126. doi:10.1021/ma00042a012.
- [18] J.F. Rabek, B. Rånby, Studies on the photooxidation mechanism of polymers. I. Photolysis and photooxidation of polystyrene, J. Polym. Sci. Polym. Chem. Ed. 12 (1974) 273–294. doi:10.1002/pol.1974.170120203.
- [19] R.K. Wells, A. Royston, J.P.S. Badyal, Direct Evidence for the Generation of Phenyl Radicals and Crosslinking during the Photolysis of a Polystyrene Film, Macromolecules. 27 (1994) 7465–7468. doi:10.1021/ma00103a033.
- [20] P.C. Souers, Hydrogen properties for fusion energy, University of California Press, 1986. http://ci.nii.ac.jp/ncid/BA01375035.
- B. Mailhot, J.L. Gardette, Polystyrene photooxidation. 2. A pseudo wavelength effect, Macromolecules. 25 (1992) 4127–4133. doi:10.1021/ma00042a013.

5. 結論

本研究では高速点火レーザー核融合実験用トレーサー添加ターゲット開発に関する研究を行った。

高速点火レーザー核融合において、基礎物理の理解には、あらかじめ燃料にトレーサーと なる原子を含有させておき、発生した特性 X 線や核反応を計測することによって現象の理 解を進める手法が有用である。このため、燃料へのトレーサー添加技術は非常に重要な技術 である。また、近年、様々な燃料デザインが実験に用いられるようになったことから、燃料 作製も幅広いアプローチの作製技術が求められる。

本研究ではトレーサー添加ターゲット開発において以下の結論を得た。

燃料作製を均一かつ再現性良く行うためにマイクロ流体デバイスのエマルション生成の 操作性の検討を行った。この結果、1%以下のばらつきで精度よくエマルションを生成でき ることが分かった。また、流量をコントロールすることで、様々な実験用及び発電用のレー ザー核融合燃料容器の作製が可能であることが分かった。これらの結果より、マイクロ流体 デバイスは核融合燃料作製に有用であることを示した。

銅トレーサーを含有した中実燃料の作製手法を開発した。エマルション法を用いて直径 200µm 級の中実球を作製した。この中実燃料は原子比で 0.93%の銅を含み、燃料中で均一に 分布していた。また、燃料形状は真球度で 97%以上を示したが、表面には 1µm 程度の凹凸 が見られた。流体シミュレーションを用いることでこの擾乱は中実球爆縮に影響がないこ とを示した。

トリチウム雰囲気下でのトリチウムの添加を促進するため、①添加促進手法の検討、②ト リチウム添加量、③ポリスチレン中のトリチウムの空間分布の測定を行った。添加手法では 紫外線およびプラズマを用いることでトリチウムの添加を 10-100 倍促進できることが分か った。また、紫外線の照射量とトリチウム添加量の関係を明らかにした。ポリスチレン中の トリチウム分布は紫外線の吸収減衰分布に一致していることがわかり、表面からおよそ 4µm までの領域にトリチウムが存在していることを明らかにした。これらの結果からトリチウ ム添加技術の基礎的な特性が明らかになった。

これらの結果により、高速点火レーザー核融合実験の基礎物理を解明するためのトレーサー添加ターゲットの作製が可能となった。

謝辞

本研究を遂行するにあたり、丁寧なご指導、ご鞭撻を賜りました乗松孝好教授に深い感謝の念を表します。

本研究を行うにあたり数々の助言、ご指導をいただきました、長友英夫准教授に深く感謝いたします。

本研究を行うにあたり数々の助言、直接的なご指導、ご協力をいただきました、山ノ井航 平助教に深く感謝いたします。

本研究を行うにあたりご指導、ご協力をいただきました、有川安信講師に深く感謝いたし ます。

本研究の先達であり、研究の各面において貴重なご助言をいただきました高木勝博士に 深く感謝いたします。

本論文をまとめるにあたり、ご指導賜りました猿倉信彦教授、村田勲教授に深く感謝いたします。

本研究の先達であり、サンプル作成や測定装置の使用方法などで多くのご助言、ご協力を 頂きました、永田みず穂氏、細川仁美氏、兼安祐実氏、橋本崇氏、加藤宏太氏、門田速人氏 に深く感謝いたします。

高速点火核融合研究に関する議論および研究に対する様々なご助言をいただきました、 FIREX プロジェクトメンバーのみなさまに深く感謝いたします。

マイクロ流体デバイスの作製および使用法についてご指導いただきました大阪大学基礎 工学研究科内田幸明准教授、岩井陽典博士に感謝いたします。

トリチウムを利用した実験に関して、様々な助言をいただきました富山大学水素同位体 科学研究所の松山政夫名誉教授、波多野雄治教授、原正憲准教授はじめ教職員の方々に感謝 いたします。

ポリスチレンサンプルの加工についてご指導いただきましたレーザー総合研究所の染川 智弘博士に感謝いたします。

ポリスチレンサンプルの測定に関してご助言と装置使用法をご指導いただきました兵庫 県立大学の古賀真由子准教授に感謝いたします。

学術論文執筆において、論文作製および英作文を丁寧にご指導いただきました Empizo Melvin John Fernandez 特任助教に感謝いたします。

本研究を行う機会を与えてくださり、熱心な討論および叱咤激励をいただきました大阪 大学レーザー科学研究所の兒玉了祐教授、西村博明教授、宮永憲明教授、白神宏之教授、中 井光男教授、斗内政吉教授、村上匡旦教授、猿倉信彦教授、千徳康彦教授、吉村政志教授、 藤岡慎介教授をはじめ、教職員の先生方、並びに、庶務、会計係のみなさま、企画係のみな さま、大阪ガスファシリティーズのみなさま、日々の研究生活を支えていただきました職員 の方々に感謝いたします。 これまでに環境・エネルギー工学専攻におきまして、講義、実験などで熱心なご指導を賜 りました、東海明宏教授、近藤明教授、澤木昌典教授、矢吹信喜教授、池道彦教授、桐原聡 秀教授、吉田陽一教授、下田吉之教授、山中伸介教授、粟津邦男教授、北田孝典教授、藤井 俊行教授、福田武司教授、村田勲教授、猿倉信彦教授、若本和仁准教授、福田知弘准教授、 井上大介准教授、秋山庸子准教授、惣田訓准教授、秋山庸子准教授、西川宏准教授、誉田義 英准教授、楊金峰准教授、町村尚准教、山口容平准教授、黒崎健准教授、牟田弘明准教授、 間久直准教授、帆足英二准教授、北野勝久准教授、佐藤文信准教授、小島直也助教、嶋寺光 助教、松尾智仁助教、松本邦彦助教、黒田真史助教、近藤孝文助教、菅晃一助教、松井孝典 助教、大石佑治助教、石井克典助教、真鍋勇一郎助教、武田敏助教、沖田隆文助教、加藤千 図助教、清水俊彦助教に深く感謝いたします。

6年間の研究生活において、苦楽を共にし、熱心な討論とご協力をいただきました岩野圭 介氏、倉橋慎理博士、長井隆浩博士、石原宏恵氏、松本昌也氏、安部勇輝博士、里圭人氏、 朝比奈隆志氏、佐々木啓氏、山中拓馬氏、佐藤龍麿氏、石本拓矢氏、島田陸氏、平山颯太氏、 畠中健氏、瀬戸慧太博士、畑昌育博士、松隈啓博士、岩田夏弥博士、南佑輝氏、小島完興博 士、坂田匠平氏、Lee Seungho 氏、加藤弘樹氏、井上裕晶氏、服部祥治氏、宇津木卓氏、池 ノ内孝仁氏、増田将也氏、吉田健祐氏、松尾一輝氏はじめ研究所でお世話になりました学生 のみなさまに感謝いたします。

また、本研究を遂行するにあたり学術振興会特別研究員として、研究奨励金および科研費 15J009020による経済的な支援を受けたことを深く感謝いたします。

最後に、長い学生生活を支えていただきました家族および友人のみなさまに感謝いたし ます。

87

業績目録

学術論文(査読あり、主要論文)

- <u>Y. Iwasa</u>, K. Yamanoi, Y. Kaneyasu, T. Norimatsu, Controlled generation of double emulsions for laser fusion target fabrication using a glass capillary microfluidic device, Fusion Sci. Technol. (2017). doi:10.1080/15361055.2017.1372988.
- [2] <u>Y. Iwasa,</u> K. Yamanoi, K. Fujioka, S. Lee, S. Sakata, A. Yao, H. Sawada, A. Yogo, H. Nagatomo, S. Fujioka, T. Norimatsu, Cu-oleate microspheres fabricated by emulsion method as novel targets for fast ignition laser fusion experiments, Fusion Eng. Des. (2017). doi:10.1016/j.fusengdes.2017.11.009.
- [3] <u>Y. Iwasa</u>, K. Yamanoi, K. Iwano, M. J. F. Empizo, Y. Arikawa, S. Fujioka, N. Sarukura, H. Shiraga, M. Takagi, T. Norimatsu, H. Azechi, K. Noborio, M. Hara, and M. Matsuyama, "Tritium-doping enhancement of polystyrene by ultraviolet laser and hydrogen plasma irradiation for laser fusion experiments," *Fusion Eng. Des.*, vol. 112, pp. 269–273, 2016.

学術論文(査読あり、その他)

- K. Iwano, K. Yamanoi, <u>Y. Iwasa</u>, K. Mori, Y. Minami, R. Arita, T. Yamanaka, K. Fukuda, M. J. F. Empizo, K. Takano, T. Shimizu, M. Nakajima, M. Yoshimura, N. Sarukura, T. Norimatsu, M. Hangyo, H. Azechi, B. G. Singidas, R. V. Sarmago, M. Oya, and Y. Ueda, "Optical transmittance investigation of 1-keV ion-irradiated sapphire crystals as potential VUV to NIR window materials of fusion reactors," *AIP Adv.*, vol. 6, no. 10, p. 105108, 2016.
- K. Yamanoi, T. Murata, T. Yanagida, Y. Fujimoto, M. J. F. Empizo, K. Iwano, <u>Y. Iwasa</u>, R. Arita, Y. Minami, Y. Arikawa, T. Shimizu, N. Sarukura, T. Norimatsu, H. Azechi, S. Fujino, H. Yoshida, N. Satoh, and H. Kan, "Scintillation and Optical Properties of Ce-Doped Fluoride Glass Samples with Different Ce Concentrations," *Sensors Mater.*, vol. 27, no. 3, pp. 229–235, 2015.
- [3] Y. Abe, H. Hosoda, Y. Arikawa, T. Nagai, S. Kojima, S. Sakata, H. Inoue, <u>Y. Iwasa</u>, K. Iwano, K. Yamanoi, S. Fujioka, M. Nakai, N. Sarukura, H. Shiraga, T. Norimatsu, and H. Azechi, "Characterizing a fast-response, low-afterglow liquid scintillator for neutron time-of-flight diagnostics in fast ignition experimentsa)," *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 85, no. 11, p. 11E126, 2014.
- [4] Y. Arikawa, T. Nagai, Y. Abe, S. Kojima, S. Sakata, H. Inoue, M. Utsugi, <u>Y. Iwasa</u>, T. Murata, N. Sarukura, M. Nakai, H. Shiraga, S. Fujioka, and H. Azechi, "Development of multichannel low-energy neutron spectrometera)," *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 85, no. 11, p.

11E125, Nov. 2014.

Y. Abe, H. Hosoda, Y. Arikawa, T. Nagai, S. Kojima, S. Sakata, H. Inoue, <u>Y. Iwasa</u>, K. Iwano,
 L. Team, S. Fujioka, H. Shiraga, M. Nakai, T. Norimatsu, and H. Azechi, "Development of multichannel time-of-flight neutron spectrometer for the fast ignition experiment," *Plasma Fusion Res.*, vol. 9, no. SPECIALISSUE.3, 2014.

国際会議における発表

- <u>OYuki Iwasa</u>, Kohei Yamanoi, Kana Fujioka, Seungho Lee, Shohei Sakata, Hiroshi Sawada, Akira Yao, Akifumi Yogo, Hideo Nagatomo, Shinsuke Fujioka, Takayoshi Norimatsu, "Cutracer containing targets for characterization of laser plasma experiment" The 8th Target Fabrication Workshop, London (UK) 2017/5/8 口頭発表
- <u>OYuki Iwasa</u>, Kohei Yamanoi, Kana Fujioka, Seungho Lee, Shohei Sakata, Hiroshi Sawada, Akira Yogo, Akifumi Yogo, Hideo Nagatomo, Shinsuke Fujioka, Takayoshi Norimatsu, Hiroshi Azechi, "Fabrication of spherical Cu-oleate targets using emulsion method" The 22nd Target Fabrication Meeting, Las Vegas NV (USA) 2017/3/16 口頭発表
- 3. <u>OYuki Iwasa</u>, Kohei Yamanoi, Yasunobu Arikawa, Keisuke Iwano, Shinsuke Fujioka, Nobuhiko Sarukura, Hiroyuki Shiraga, Masaru Takagi, Takayoshi Norimatsu, Hiroshi Azechi, Kazuyuki Noborio, Masanori Hara and Masao Matsuyama "Tritium Doping Method for Fabrication of Tritium Doped Polystyrene Shell Targets" The 9th International Conference on Inertial Fusion Sciences and Applications (IFSA2015), Th.Po.52, Bellevue WA (USA) 2015/9/24 ポスター発表
- 4. <u>OIwasa Yuki</u>, Yamanoi Kohei, Iwano Keisuke, Arikawa Yasunobu, Fujioka Shinsuke, Sarukura Nobuhiko, Shiraga Hiroyuki, Takagi Masaru, Norimatsu Takayoshi, Azechi Hiroshi, Kazuyuki Noborio, Hara Masanori and Matsuyama Masao, "Enhancement of tritium doping rate in plastic shell target by Ultraviolet light irradiation for laser fusion experiment" 1st Asia-Pacific Symposium on Tritium science (APSOT-1), A24, Mianyang, Sichuan (China) 2015/11/3 ポスター発表
- <u>OYuki Iwasa</u>, Kohei Yamanoi, Yasunobu Arikawa, Keisuke Iwano, Shinsuke Fujioka, Nobuhiko Sarukura, Hiroyuki Shiraga, Takayoshi Norimatsu and Hiroshi Azechi, "Development of Tritium doped plastic target for laser fusion experiment", International Symposium on Integgrated Molecular/Materials Science and Engineering (IMSE 2014), p.122 Poster presentation No.17 Nanjing, China 2014/11/2 ポスター発表
- 6. <u>**OYuki IWASA**</u>, Yasunobu ARIKAWA, Keisuke IWANO, Kohei YAMANOI, Shinsuke FUJIOKA, Nobuhiko SARUKURA, Hiroyuki SHIRAGA, Takayoshi NORIMATSU and

Hiroshi AZECHI"Development of tritium doped plastic target for FIREX", The 5th Japan-China Bilateral Workshop on IFE Target Materials and Technology, pp.9-10 Gifu, Japan 2014/1/24 口頭発表

 <u>OYuki IWASA</u>, Yasunobu ARIKAWA, Keisuke IWANO, Kohei YAMANOI, Shinsuke FUJIOKA, Nobuhiko SARUKURA, Hiroyuki SHIRAGA, Takayoshi NORIMATSU and Hiroshi AZECHI "Development of tritium doped plastic target for laser fusion", The Eighth International Conference on Inertial Fusion Science and Applications (IFSA 2013), p.313 P.Th_22 Nara, Japan 2013/9/12 ポスター発表

国内学会における発表

- 8. <u>〇岩佐祐希</u>,山ノ井航平,兼安祐実,乗松孝好 PLASMA 2017 「マイクロ流体デバイ スを利用したレーザー核融合燃料球の作製」姫路商工会議所 2017/11/23 ポスター発 表
- 9. <u>〇岩佐祐希</u>,山ノ井航平,有川安信,岩野圭介,藤岡慎介,高木勝,猿倉信彦,白神宏之, 乗松孝好,疇地宏,登尾一幸,原正憲,松山政夫第11回 核融合エネルギー連合講演会 「レーザー核融合燃料プラスチックターゲットへのトリチウム添加手法の開発」、九 州大学 2016/7/14 ポスター発表
- 10. <u>〇岩佐祐希</u>,山ノ井航平,有川安信,岩野圭介,藤岡慎介,高木勝,猿倉信彦,白神宏之, 乗松孝好,疇地宏,登尾一幸,原正憲,松山政夫 「レーザー核融合ターゲットへのト リチウム添加促進手法の開発」プラズマ核融合学会 第32回年会 24a52P 名古屋大学 2015/11/24 ポスター発表
- 11. <u>〇岩佐祐希</u> 有川安信 岩野圭介 山ノ井航平 藤岡慎介 猿倉信彦 白神宏之 乗松孝 好 疇地宏 ターゲットグループ 登尾一幸 原正憲 松山政夫 「トリチウム添加 プラスチックターゲットの開発」レーザー研シンポジウム2015 ポスター番号10 大 阪大学銀杏会館 2015/4/8 ポスター発表
- 12. <u>〇岩佐祐希</u>、有川安信、岩野圭介、山ノ井航平、藤岡慎介、猿倉信彦、白神宏之、乗 松孝好、疇地宏 「レーザー核融合実験のためのトリチウム添加プラスチックターゲ ットの開発」、日本原子力学会「2014年秋の大会」p.11 B11、京都大学吉田キャン パス、2014/9/8 ロ頭発表
- 13. <u>〇岩佐祐希</u>、有川安信、岩野圭介、山ノ井航平、藤岡慎介、猿倉信彦、白神宏之、乗 松孝好、疇地宏 「高速点火核融合実験のためのCDTシェルターゲット開発」、第10回 核融合エネルギー連合講演会 オンライン予稿集 19-123、つくば国際会議場 、 2014/6/20 ポスター発表
- 14. <u>〇岩佐祐希</u>、岩野圭介、山ノ井航平、有川安信、藤岡慎介、猿倉信彦、白神宏之、乗 松孝好、疇地宏「レーザー核融合のための三重水素添加プラスチックターゲットの開 発」、プラズマ・核融合学会第30回年会 オンライン予稿集 05pE66P 、東京工業大

学大岡山キャンパス 2013/12/5 ポスター発表

15. <u>〇岩佐祐希</u>、岩野圭介、有川安信、藤岡慎介、白神宏之、乗松孝好、疇地宏、ターゲットグループ「高速点火核融合原理実証実験のためのトリチウム充填ターゲットの開発」、日本物理学会 2013年秋季大会 26pKB-6、徳島大学常三島キャンパス 2013/9/26 口頭発表

受賞歴等

○Yuki IWASA "Student Poster Prize for IFSA 2013 NARA" IFSA Nara (2013年9月)
 ○岩佐祐希 若手優秀発表賞 第10回核融合エネルギー連合講演会 (2014年6月)
 ○Yuki Iwasa Young Researcher Award APSOT-1 (2015年11月)

外部資金

特別研究員奨励金 (DC1) 「レーザー核融合実験のためのトリチウム添加プラスチックシェ ルターゲットの開発」15J00902

Appendix.I マイクロ流体デバイスの作製

I.1 マイクロ流体デバイスの概要

マイクロ流体デバイスは Fig. I.1 に示すように四角キャピラリー中に2つの丸形キャピ ラリー (Injection tube、Collection tube) を向かい合わせながらはめ合わせてできている。こ のデバイスは安価な部品と簡単な工作で準備できるため、作製したいエマルションに合わ せてオリフィスの大きさやジオメトリーを変更できる。さらに、シンプルな構造であるた め、カスケードに接続することで多層のカプセル構造を作製することができるなど、柔軟 な使用ができる可能性がある。



Fig.I.1 An optical image of whole microfluidic device (left) and a zoomed image of nozzles.

本節では、マイクロ流体デバイスの組み立て方及びエマルション作製の詳細を述べる。

I.2 構成部品

マイクロ流体デバイスを構成する部品は次の通りである。

Components	Memo			
丸形キャピラリー ×2本				
O.D. 0.97 mm I.D. 0.69 mm Dramond (for 1 mm)	牛地おどぺいし⊬のとの			
O.D. 1.95 mm I.D. 1.62 mm 富士理化ガラス(for 2 mm)	元姉がし、、ツト仏のもの。			
O.D. 2.95 mm I.D. 2.44 mm 富士理化ガラス(for 3 mm)				
四角キャピラリー ×1 本				
I.D 1.0 mm VitroCom ST8100 (for 1mm)	丸形キャピラリーをはめ合わ			
I.D 2.0 mm VitroCom S102 (for 2mm)	せることができるもの。			
I.D 3.0 mm VitroCom S103 (for 3mm)				
撥水処理剤 ドデシルトリクロロシラン	Oil 相側のみに塗布。			

プラスチック製注射針 ×3個	各液相のハウジング	
20G×1 1/2" TERMO NN-2038R		
スライドガラス	デバイスの基板	
エポキシ接着剤 NICHIBAN Araldite (AR-R30)	各部品の接続	
ポリエチレンチューブ	シリンジ-デバイス-捕集間の接	
O.D. 1.27 mm I.D.0.86 mm BECTON DICKINSON PE90	続用	

組み立てに際にはこれに加え、キャピラリープーラー、紙やすり、ピンセットを用いる。

I.3 組み立て

I3.1 部品の準備

丸形キャピラリーをキャピラリープーラ—(Narishige PC-10/PC-100)に設置し、先端をピペット状に加工する。ヒーターの出力、重り位置などを変更することで先端の形を制御することができる。先端がキャピラリーの中心から外れている場合、ドロップレット作製に支障をきたすため注意が必要である。キャピラリー径が 1mm を超える場合、プーラ—にセットできないため、ガスバーナーでキャピラリーの一端を炙り、ピンセットで先端を引き延ばすことにより作製した。

プーラーにより加工した丸形キャピラリの先端を紙やすり等を用いて任意のノズルサイ ズに加工する。ノズル径が小さい Injection tube とオリフィス径の大きい Collection tube の2 種類を加工する。Injection tube のオリフィス径は作製したエマルションの内径よりも小さ い必要がある。紙やすりで加工する場合 φ 50µm より小さい径を作製するのは難しいた め、それ以下の径が必要な場合、キャピラリ先端を包埋するなどして対策を施す必要があ る。Collection tube の径は作製したいエマルションの径に対し同程度(0.8-1.2)のサイズであ ることが望ましい。また、先端面が軸方向に対して垂直でないと、流れが崩れたり W1 相 が O 相内にうまく入らない等の問題を引き起こす可能性があるため、顕微鏡で先端を確認 しながら加工を行う。Collection tube はキャピラリの端面をライターなどで少し加熱するこ とでも作製は可能である。

四角キャピラリーは 30-40 mm 程度にカットする。ノズル集合部でキャピラリーと垂直 な界面ができるように Oil 相が壁面と接する箇所に撥水剤によって表面処理を行う。キャ ピラリーを撥水剤の液面につけると毛細管効果によって撥水剤が四角キャピラリー内部に 侵入する。キャピラリーのおよそ半分くらいのところまで液面が上ってきたところで液面 から離し、キャピラリー内の撥水剤を取り除く。ポリスチレン溶液を用いる場合、ノズル 集合部と撥水処理を行った箇所がノズル集合部と多少ずれていても問題はないが、オレイ ン酸銅溶液など種類によっては撥水処理の位置に敏感な溶液もある。撥水処理剤および処 理領域については今後さらなる最適化が必要である。 注射針は各相をキャピラリ内に流すためのハウジング部分を担う。金属針部分をカット し、穴がふさがらないようにやすりで研磨する。プラスチックキャップ部分はキャピラリ ーが通るための隙間を開ける。O相、W2相用には、四角キャピラリーをまたぐために前 後2か所に、W1相用には片側のみにそれぞれ 15mm×1.5mmの穴をカッターで切り取 る。組み立てに移る前に、各キャピラリが確実に入るような隙間になっているかを確認し ておくとよい。





I3.2 組み立て

組み立ては用意した部品をエポキシ樹脂によって繋げていく過程である。エポキシ接着 剤は①キャピラリの固定、②注射針の固定、③液漏れを防ぐための包埋、の3回に分けて 行う。

キャピラリの固定を行う前に、3つのキャピラリのアライメントを行う。四角キャピラ リの両端から、撥水処理を施した側から Injection tube を、反対側から Collection tube を挿 入し、撥水処理の境界で向かい合わせる。2つのキャピラリの距離は目標のエマルション や溶液の粘性によって変わるが、キャピラリ間の距離が離れると W1 相を小さくすること が難しくなる。Collection tube のノズルと反対側がスライドガラスから 3 mm 程度飛び出る ように位置を決める。エポキシ樹脂を少量とり、各キャピラリの位置が動かないように固 定する。エポキシ樹脂が固化する際に若干収縮することがあるため、正確なアライメント が必要な場合、紫外線硬化樹脂を用いて固定する。

エポキシ樹脂が固化し、キャピラリの位置が決定したら、注射針のプラスチック部分の 底にエポキシ樹脂を塗り、各箇所に取り付ける。このとき、エポキシ樹脂をつけすぎると 溶液が通る隙間を埋めてしまうことがあるので注意する。

注射針がある程度固定され、エポキシ樹脂の流動性が無くなってから注射針の周りを Fig.3 のようにエポキシ樹脂で包埋する。接続部に漏れが無くなるように押し込むような形 でエポキシ樹脂を塗布するが、前の過程と同様に溶液の通り道をふさがないように気を付ける。このまま、エポキシ樹脂が完全に固まるまで1日静置させる。



Fig.I.3 The embedding process by epoxy resin.

I.4 流体の流し方

エポキシ樹脂が固まったら、Emulsion outlet から水を送り込みすべてのハウジングから 水が出てくることを確認する。このとき、水漏れが見つかれば再びエポキシ樹脂で包埋す る。各相の溶液をシリンジポンプに設置し、気泡が間が入らずに先端から溶液が出るよう にしておく。水漏れがないことを確認したデバイスを設置し、Fig.4 のように Emulsion outlet から水を送り込む。W2 相のハウジングが水で満たされ針の先端から水が出てきた ら、W2 溶液のシリンジと空気が入らないように接続する。この後は W2 相がデバイスに 流れ込むことによって W1 相と O 相のハウジングから水が出てくるので、先ほどと同様に 空気が入らないようにシリンジと接続する。その後、Emulsion outlet に接続したシリンジ を取り外すと気泡が入らずに、デバイス中に各溶液を流すことができる。



Fig.I.4 The order to inject a each phase into a device.(image from Dr. Uchida) O 相の界面が徐々に下流に進み、Collection tube の手前でキャピラリに対し垂直な界面が できればドロップレットを生成できる。

Appendix.II Wilzbach 法における充填容器形状の効果

II.1 トリチウム雰囲気中でのβ線の照射

4.2.1 で述べたように Wilzbach 法はトリチウムが放出する β 線が有機物の被放射化物に照射されることによって、結合が切断され雰囲気中のトリチウムと反応を起こすものである。 反応の数は生成するラジカルの数とそのラジカルと反応するトリチウムの密度に比例する と考えられる[1]。生成するラジカルの数は β 線の総エネルギー E_{total} に比例する。また、ト リウムの密度 $\rho_{tritium}$ は雰囲気中の圧力に相当する。よって単位時間当たりの反応数 R は次 のように表される。

 $\mathbf{R} \propto E_{total} \times \rho_{tritium} \tag{II.1}$

エネルギーの総量 E_{total} を見積もるためには雰囲気中での β 線の減衰を考慮する必要がある。1 atm 中での T_2 gas での β 線を考える。 β 線の放出された位置から距離 x m での β 線の エネルギーE(x) keV は次のように書ける[2]。

$$E(x) = E_0 \exp(-4.425\rho x)$$
 (II.2)

ここで E₀ は初期のエネルギーであり、トリチウムの場合平均のエネルギーは 5.7 keV となる。 ρは気体の密度を表し単位は mol/m³ である。エネルギー量の合計は位置 x での空間当た りのβ線の発生率 f(x)を用いて次のように書ける。

$$E_{total} = \int_0^\infty f(x) * E(x) \, dx \tag{II.3}$$

この式からトリチウムに照射されるエネルギーは面密度 px に依存することが分かる。すな わち、高圧で小さな空間に充填した場合と低圧で大きな空間に充填した場合でも同様のエ ネルギーが得られることが期待できる。

実際に最大飛程の β 線が照射されるようにトリチウムを充填するためには多量のトリチ ウムが必要となるため、トリチウムを充填する空間はこの飛程よりも短いことが多い[3][4]。 また、体積の大きい空間に充填したとしても被放射化物の周りに β 線を遮蔽するような物 体がある場合、実際に照射される β 線のエネルギーの総量は遮蔽物との距離によって決定 すると考えられる。

latmのトリチウム雰囲気中でのpは

$$\rho = \frac{1}{22.4 \times 10^{-3}} = 4.46 \times 10 \ [\text{mol}/m^3] \tag{II.4}$$

となる。このときの 1/e 飛程 x1/e は次のように計算できる。

$$x_{1/e} = \frac{1}{4.425 \times 4.46 \times 10} = 5.1 \times 10^{-3} m \tag{II.5}$$

よって 1atm 中の β線の 1/e 飛程は約5 mm 程度であることが分かる。

II.2 キャピラリーを利用したトリチウム暴露実験

この容器形状の効果を確かめる為次のような実験を行った。

Fig.II.1 に実験の概要を示す。両端が開放している長さ 10 mm 程度直径 0.7 mm および 1.4 mm のガラスキャピラリーにそれぞれ直径 500 μm、厚さ 7 μm のポリスチレンカプセルを 5 つずつ管内に挿入した。このキャピラリー4 章で紫外線照射に用いた ICF34 中に設置し、トリチウム充填を行った。容器内にトリチウムを 4.8×10⁴ Pa 充填し、2 時間後暴露を行った。 暴露後のシェルのうち 4 つずつを液体シンチレーターカクテル(Perkin Elmer : Ultima Gold) に溶解し、目視でポリスチレンカプセルの溶解を確認してから一週間ほど静置した。このシ ンチレーションカクテルをシンチレーションカウンタ(Beckman : LS-6500)でトリチウム量のカウントを行った。



Fig.II.1 容器形状効果の観測実験系

Fig.II.2 に各サンプルの放射能を示す。サンプル 1-4 は直径 0.7 mm のキャピラリーに挿入 したもの、サンプル 5-8 は直径 1.4 mm のキャピラリーに挿入したものを示す。この結果か ら、直径 0.7 mm、1.4 mm のキャピラリーに挿入したサンプルではそれぞれ平均 2.9×10²、 1.5×10³ Bq の放射能が得られた。直径 1.4 mm のキャピラリーに挿入したサンプルが約 5 倍 程トリチウム添加量が多いことが分かった。



Fig.II.2 容器形状効果の観測実験系

今、両キャピラリーの両端は開放されているため、いずれのキャピラリーにも同じ圧力の トリチウムが充填されている。0.5 atm のトリチウム雰囲気中の 1/e は約 10 mm 程度で、キ ャピラリー径に対し十分長いと考えると、キャピラリー内部のトリチウムがポリスチレン カプセルに β線を照射したと考えられる。サンプルに β線を照射しうるトリチウムの体積 を有効体積 Veff として Fig.II.3 のように定義する。この体積は結局断面積と β線の飛程で計 算できるため、直径 1.4 mm と 0.7 mm の Veff の比は Veff, φ 0.7 = 1.4²/0.7² = 4 となる。 このシンプルなモデルは実験結果の約 5 倍を説明できると考えられる。これより、Wilzbach 法などのトリチウムの β線による反応は、被放射化物の周囲の形状が大きく影響している ことが分かった。



Fig.II.3 容器形状効果の観測実験系

II.3 まとめ

本節では Wilzbach 法における充填容器形状の効果について考察した。直径の異なるキャ ピラリーを用いサンプルの放射能の違いを測定した。その結果、比放射化物の周囲の形状が トリチウム添加量に影響をあてることを明らかにした。

Reference

- [1] E.A. Evans, Tritium and its compounds, 2nd ed., Butterworths, 1974.
- P.C. Souers, Hydrogen properties for fusion energy, University of California Press, 1986. http://ci.nii.ac.jp/ncid/BA01375035.
- [3] T. NORIMATSU, M. TAKAGI, Y. IZAWA, C. YAMANAKA, Development of Deuterium-Tritium Loading Vessel for Laser Fusion Target, J. Nucl. Sci. Technol. 23 (1986) 650–657. doi:10.1080/18811248.1986.9735033.
- [4] M. Takagi, T. Norimatsu, T. Yamanaka, S. Nakai, Fabrication of deuterated-tritiated polystyrene shells for laser fusion experiments by means of an isotope exchange reaction, J. Vac. Sci. Technol. A Vacuum, Surfaces, Film. 10 (1992) 239–242. doi:10.1116/1.578142.
Appendix.III Fill-tube 付ターゲットの作製

III.1 ガス充填ターゲット

核融合実験においては、燃料容器中に固体燃料層を形成するデザインが採用されている が、燃料層形成には 20 K を下回るような極低温下での作業が必要となる。極低温状態での 燃料層形成などのプロセスを省き、中性子や X 線による計測を行うために、カプセル中に DD ガスや DT ガスなどの燃料ガスやトレーサーガスを充填したガス充填ターゲットを用い た基礎実験が行われている[1]。

ターゲットにガスを充填するには、燃料容器を高圧のガス雰囲気下に置きガスの拡散に よって内部に充填する手法と、Fill-tube と呼ばれる毛細管を燃料内部に差し込み燃料を注入 する手法が用いられる。また、通常の高出力レーザーを用いた実験では、ターゲットチェン バーにターゲットを設置してから、実際にレーザーが照射されるまで 30 分-60 分ほどかか るため、その間ガスを保持することが求められる。

拡散による燃料充填はレーザー核融合黎明期にガラスマイクロバルーン(GMB)ターゲットにて用いられてきた[2]。ガラス製の薄膜シェルを高圧の水素雰囲気下で加熱し、ガラスの拡散係数を上昇させガス内部に充填する。その後、室温まで戻すことによりガラスのガスバリア性を向上させ内部のガスを保持する。また、ロチェスター大学では、高圧ガスをプラスチックカプセルに充填後、極低温まで冷却し燃料層を形成する[3]。この際には冷却に伴って燃料容器のガスバリア性が向上する。

Fill-tube を用いた場合、燃料中に直接ガスを導入することができるため、透過性の低いガ スの使用や肉厚の燃料容器を用いた実験でもガス充填実験を行うことができる。また、基本 的にはターゲットが設置されてからショット時刻まで連続的にガスを供給したり、ショッ トが行われる直前にガスを充填することができ、燃料容器のガスバリア性に対する制約を 緩和することができる。LLNL では Fill-tube 付の燃料容器が採用され、ガス充填や固体燃料 形成ターゲットに用いられている[4][5]。但し、Fill-tube を通じてガスを供給する際には、ガ スのバッファタンクは基本的にターゲットチャンバーの外側に設けられるため、燃料容器 に充填する量に比べ多量のガスが必要となることに注意が必要である。また、Fill-tube 自身 およびその接着部は対称な爆縮に対し擾乱を与えるため、レーザー照射時の影響を考慮し ておく必要がある[6]。

本節では直径 500 µm、厚さ 7 µm のポリスチレンカプセルにガスを導入するための Filltube ターゲットの作製について記した。ポリスチレンの水素に対する透過率(permeability)は 7.2×10⁻¹⁵ [mol*m/m²/s/Pa]と大きいために、7 µm のポリスチレンカプセル中に充填されてい る水素ガスは数秒間程度しか保持できない。このため、阪大レーザー研などでは室温でのプ ラスチックカプセルのガスバリア性を向上させるために、ポリマーの外部にアルミニウム などの金属コートを施したターゲットの開発が行われてきた[7]。しかし、コーティングの クオリティによって透過性のばらつきが大きく、ショット時の正確なガス圧が分からなか った。Fill-tube 付のターゲットの作製には①Filll-tube 用導入孔の作製、②Fill-tube の準備、 ③Fill-tube の組み立て法が必要である。これらについての詳細を述べる。

III.2 作製方法

III.2.1 Fill-tube 用導入孔の作製

エマルション法で作製されたポリスチレンカプセルは、溶媒の乾燥後には非常に精度の 高い仕上がりとなり、穴は見られない。その後の行程で、大気中で内容する純水の除去を行 うが、膜厚が薄い場合などには内外圧差によって形状が崩れることがある。純水除去過程で の圧力差をなくすため、フェムト秒レーザーを用いて微小な穴($\phi < 5 \mu m$)をカプセルに設け る工程が行われていた。この過程において Fill-tube を導入するために通常よりも大きな 20 μm 程度の穴を作製した。

カプセルはフェムト秒レーザーをショットする際に動かないように、水で湿らせたベン コットで固定した。1000 Hz のフェムト秒レーザーに対しメカニカルシャッターを 2.5 ms 間 だけあけ、2 パルスが照射されるようにした。ベストフォーカスで照射すると微小な導入孔 しか作製できないため、表面のフォーカス点から z 軸方向に 30 µm ほど下の位置にフォー カスした。この条件で、対物レンズを×5 および×20、レーザーエネルギーを 3 mW と 8 mW の組み合わせで 4 つの条件で照射したものを Fig.III.1 に示す。倍率 5 倍の対物レンズを用い ると、導入孔が縦長になっている様子が見られた。一方 20 倍の対物レンズではきれいな円 形の導入孔が作製できることが分かった。また、3 mW では導入孔の直径は~10 µm 程度と 目標よりも小さかったが、エネルギーを 8 mW にすることで直径 20 µm の導入孔を作製す ることができた。



Fig.III.1 フェムト秒レーザーによる Fill-tube 導入孔の作製

III.2.2 Fill-tube の作製

Fill-tube は爆縮への影響を最小限にするためできるだけ小さい方が好まれるが、Fill-tube の径が小さすぎると、コンダクタンスが悪くなることによるガス充填への影響が考えられ

る。また、Fill-tube はガス導入の他にターゲットの支持の役割も持つため、機械的強度の低 減は好ましくない。本研究では Fill-tube の先端が外径 20 μm 程度、内径 10 μm 程度を目標 とした。

外径 1.3 mm のガラスキャピラリーをキャピラリープラー(Narishige : PC-10)に設置し、キ ャピラリーを引いた。ヒーターを 2 段引きモードでヒーター出力を 1st:75.1、2nd:70.1、 ヒ ーター移動量を上部:1.5 mm、下部:3.0 mm に設定することで先端の細い Fill-tube を作製する ことができた(Fig.III.2)。先端が閉じてしまった場合はクラフトナイフで先端を落とすこと で先端が確実に開放した状態にして用いた。



Fig.III.2 キャピラリープラーによる Fill-tube の作製

III.2.3 Fill-tube 付カプセルの組み立て

ターゲットの組み立てには Fill-tube 導入孔に正確に Fill-tube を挿入することと、接着剤で Fill-tube の先端をふさいでしまわないことが必要である。

スライドガラス上に Fill-tube 導入孔が Fill-tube に垂直になるように PVA 水溶液を用いて 固定した。Fill-tube をマニュピレーターを用いて導入孔に挿入した。接着剤は UV 効果樹脂 (Threebond: TB3042)を用いた。接着剤を直接導入孔に塗布すると導入孔でない部分や Filltube 先端を塞いでしまう可能性が高い。そこで、一旦 Fill-tube の先端から 100-200 µm 上部 にキャピラリーを用いて塗布し、Fill tube を上下させることで導入孔部分に接着剤を直径 30 µm ほど塗布することができた。この際、Fill tube 先端はできるだけ内部に入り込まないこ とが望ましい(< 100 µm)。この状態で、紫外線を照射し接着剤を固定した。完成したターゲ ット写真を Fig.III.3 に示す。

ターゲット組み立て後、干渉縞計測によって充填性能の確認試験を行った。カプセルの箇 所に He-Ne レーザーで作製した干渉縞が、SF₆ガスの充填及び排気によって変化するかを測 定することで確認を行った。



Fig.III.3 完成した Fill-tube 付直径 500 µm ターゲット(左)と Filll-tube 部分拡大図(右)

III.3 Fill-tube 付カプセルの使用実績

Fill-tube 付のターゲットは大型レーザー実験に導入された。CH ポリスチレン製のカプセルを用いて作製した Fill tube 付ターゲットに D₂ガスを 5 atm 充填し、GEKKO XII の 12 ビームを用いてショットを行った結果、10⁷-10⁸ の中性子イールドが測定された。カプセルには重水素が含まれていないため、中性子は充填したガスから発生したものである。これによって安定してガスを充填したターゲットのショットを行うことが可能となった。

III.4 液体充填ターゲットへの応用

Fill-tube 付ターゲットは液体を充填した応用も考えられる。近年、流体不安定性を低減す るために高速点火実験において中実燃料の導入が行われている。これらの中実燃料には重 水素化ポリスチレンやオレイン酸銅といった常温で固体のビーズが用いられている。しか し、中性子計測とトレーサーによる X 線計測を同時に行うためには重水素化材料中に均一 にトレーサーが分布している必要がある。Fill-tube 付ターゲットを応用することによって液 体を充填することでこの条件を達成することが期待されている。

液体は、重水素化物質である、化学的な安定性、様々な物質への高い溶解度等の条件から 重水(D₂O)が候補として挙げられる。重水に塩化銅などのトレーサーを含む塩を溶解するこ とで均一にトレーサーを分布させることが可能である。また、容易にトレーサー量を調整で きるという利点も有する。これらの燃料液体を保持するための容器には他の中実燃料と同 等の直径 200 µm が必要となる。この条件を満たすカプセルは2章で述べたように作製可能 である。実際に大型レーザー実験への導入が進められ、塩化銅を溶解した重水を充填したタ ーゲットのテストショットが実施され、中性子信号とX線信号の同時計測に成功している。

また、トリチウムを添加した中実燃料も求められる。しかし、4 章で述べたように紫外線 を利用した手法では数 μm 程度の領域にしかトリチウムを導入できない。この問題の解決に も燃料液体充填ターゲットの仕様が期待される。1%程度トリチウムを含む D₂O+DTO 混合 溶液を用いることで燃料中に均一にトリチウムを分布させることが可能である。この手法の実現には燃料中のトリチウム-重水素比の測定手法の検討や、大気中のH₂Oとの交換などの保管手法の確立、ショット時の放射線影響などが挙げられる。

III.5 まとめ

ポリスチレンターゲットにガスを充填したターゲットショットを可能とするため、Fill tube 付ターゲットの作製方法を開発した。フェムト秒レーザーでポリスチレンシェルに直 径 20 µm の導入孔を作製し、外径 20 µm 程度のガラスキャピラリーを取り付けることで Filltube 付ターゲットを作製した。このターゲットを大型レーザー実験に導入し、D₂ ガスを充 填したターゲットから充填ガス由来の中性子の信号を確認した。これによって安定してガ スを充填したターゲットショットを行うことが可能となった。液体充填ターゲットなどの 応用についても有用であることが期待される。

Reference

- [1] H. Chen, T. Ma, R. Nora, M.A. Barrios, H.A. Scott, M.B. Schneider, L. Berzak Hopkins, D.T. Casey, B.A. Hammel, L.C. Jarrott, O.L. Landen, P.K. Patel, M.J. Rosenberg, B.K. Spears, On krypton-doped capsule implosion experiments at the National Ignition Facility, Phys. Plasmas. 24 (2017). doi:10.1063/1.4993049.
- [2] T. Norimatsu, H. Tajima, M. Takagi, S. Nakai, C. Yamanaka, Fabrication of large-diameter, highaspect-ratio glass microballoon targets for laser fusion research, J. Vac. Sci. Technol. A Vacuum, Surfaces, Film. 6 (1988) 2552–2555. doi:10.1116/1.575545.
- D.R. Harding, D.D. Meyerhofer, S.J. Loucks, L.D. Lund, R. Janezic, L.M. Elasky, T.H.
 Hinterman, D.H. Edgell, W. Seka, M.D. Wittman, R.Q. Gram, D. Jacobs-Perkins, R. Early, T.
 Duffy, M.J. Bonino, Forming cryogenic targets for direct-drive experiments, Phys. Plasmas. 13 (2006). doi:10.1063/1.2192468.
- T. Parham, B. Kozioziemski, D. Atkinson, P. Baisden, L. Bertolini, K. Boehm, A. Chernov, K.
 Coffee, F. Coffield, R. Dylla-Spears, O. Edwards, J. Fair, M. Fedorov, J. Fry, C. Gibson, B. Haid,
 D. Holunga, T. Kohut, T. Lewis, T. Malsbury, E. Mapoles, J. Sate, Cryogenic Target System for
 Hydrogen Layering, Fusion Sci. Technol. 69 (2016) 407–419. doi:10.13182/FST15-162.
- [5] D.R. Harding, J. Ulreich, M.D. Wittman, R. Chapman, C. Taylor, R. Taylor, J.C. Lambropoulos, R.Q. Gram, M.J. Bonino, D.W. Turner, J. Ulreich, M.D. Wittman, R. Chapman, C. Taylor, R. Taylor, Requirements and Capabilities for Fielding Cryogenic DT-Containing Fill-Tube Targets for Direct-Drive Experiments on OMEGA Requirements and Capabilities for Fielding Cryogenic DT-Containing Fill-Tube Targets for Direct-Drive Experiments on OMEGA, Fusion Sci. Technol. 0 (2017) 1–11. doi:10.1080/15361055.2017.1374812.
- [6] C.R. Weber, D.T. Casey, D.S. Clark, B.A. Hammel, A. MacPhee, J. Milovich, D. Martinez, H.F.

Robey, V.A. Smalyuk, M. Stadermann, P. Amendt, S. Bhandarkar, B. Chang, C. Choate, J. Crippen, S.J. Felker, J.E. Field, S.W. Haan, S. Johnson, J.J. Kroll, O.L. Landen, M. Marinak, M. Mcinnis, A. Nikroo, N. Rice, S.M. Sepke, Improving ICF implosion performance with alternative capsule supports, Phys. Plasmas. 24 (2017). doi:10.1063/1.4977536.

 J.S. Jaquez, E.L. Alfonso, A. Nikroo, A.L. Greenwood, Aluminum coatings as a deuterium permeation barrier on foam shells and the dependence on foam surface finish, Fusion Sci. Technol. 51 (2007) 688–692.