

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2007～2009

課題番号：19360414

研究課題名（和文） 高速点火基礎実験(FIREX)用低密度プラスチックフォームの材料決定と球殻化

研究課題名（英文） Decision of Low Density Materials for Fast Ignition Realization Experiments(FIREX) and its Encapsulation

研究代表者

長井圭治 (NAGAI KEIJI)

東京工業大学・資源化学研究所・准教授

研究者番号：30280803

研究成果の概要（和文）：

レーザー核融合ターゲットの種々の仕様を満たす低密度材料を探索した。プラスチック材料の分子構造と合成時に用いる溶媒分子の相互作用の観点から、空隙構造の形成因子を明らかにすると共に、そのカプセル化をおこなった。フロログルシノールカルボン酸・ホルムアルデヒド重合体をカプセルの母材として用いてカプセル化することに成功すると共に、これまでよりも1桁空隙サイズが小さくなることを明らかとした。FIREX-I計画の進行に伴い、いくつかのターゲットデザインが変更されたが、それらに関しても一部の製造技術開発に成功した。

研究成果の概要（英文）：

Encapsulation of density materials has been achieved for the copolymer of phloroglucinol carboxylic acid and formaldehyde, which was chosen from fundamental experiments to discuss the relation between the nanostructure and the interaction between polymer and solvent. The nanostructure is 1-order finer than that of the previous cases. According to the modification of the specification of FIREX project, new materials developments have been succeeded partially.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	3,200,000	960,000	4,160,000
2008年度	2,900,000	870,000	3,770,000
2009年度	2,900,000	870,000	3,770,000
年度			
年度			
総計	9,000,000	2,700,000	11,700,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・核融合学

キーワード：FIREX 計画、エアロゲル、レーザー核融合、有機材料、極低密度

1. 研究開始当初の背景

本邦のレーザー核融合研究は大阪大学が最大の実験設備（激光 XII 号）を有して先導的立場をとり、その被照射ターゲットについても大阪大学で製造されている。高速点火方式レーザー核融合は大阪大学で考案されたもので、その実験的研究に不可欠な高密度圧縮用レーザーと加熱用レーザーを同期運転できる設備は、研究開始当初において世界的にみても激光 XII 号+ペタワットレーザーしか存在しなかった。加熱用のペタワットレーザーとコーンガイドターゲットの発明により、高速点火研究はブレイクスルーを起こし(2001 Nature, 2002 Nature)、それを受けて阪大レーザー研は、高速点火基礎実証実験計画(FIREX)を策定した。研究開始当初、その phase 1 への移行を視野に入れた LFEX レーザーが一部運転中であり、極端紫外光発生の研究に用いられていた。レーザー被照射ターゲットに関しては、乗松グループと核融合科学研究所は共同研究として、重水素冷却装置の開発を進めており、フォームカプセルへの重水素充填試験も行われつつあった。

しかし、フォームカプセル材料の最適化は研究代表者が中心に、運営費交付金のレベルでの地道な研究が行われているにすぎなかった(2002 JJAP, 2004 Fusion Sci. Technol. 2005 Macromol. Chem. Phys., 2005 Nucl. Fusion, 2006 JJAP, Fusion Sci. Technol.ほか)。米国でもターゲット製造のチームが研究を行っているが、国立点火施設(NIF)用のターゲット研究が主であり、ターゲットのスペックが大きく異なるので、その方法を FIREX 用のターゲットに適用できない部分が多い。さらに、米国で用いられているレゾルシノール・ホルマリン(RF)カプセルは母材の溶液の粘度調整が困難なために、阪大スペックの達成が不可能である。

2. 研究の目的

フォームカプセル化可能なことがわかっているのは、RF にフロログリシノールカルボン酸・ホルマリン(PF)を混合させた RF-PF 材料に限られていたので、これを手がかりに、これまでの予備的研究で、対象としてきた種々の高分子材料及びその誘導体に関して、低密度フォーム化をおこなう。そして、下限密度、形状制御性(バルクからナノのレベルまで)を明らかにすることを目的と

する。これらのなかから、スペックに合う可能性のあるものを選び、カプセル化させ、さらにそのフォームカプセルへアブレータ層をコートする方法を開発することを目的とした。

3. 研究の方法

低密度フォーム製造は、1) 原料となる高分子溶液の調整(2006 JJAP)、2) 液滴製造装置によるサイズの制御されたエマルジョン形成(1998 Moscow J Phys, 2000 J. Polym. Sci.)、3) その密度整合を維持しつつゲル化(ただしこの間にエマルジョンにいつときの変形を与える必要がある)(1999 Fusion Technol. 2006 Fusion Sci. Technol, 2005 Macromol. Chem. Phys.)、4) 超臨界流体を用いるエアロゲル化(1998 Angew. Chem.)、5) アブレータのコーティングの5段階に大別される。フォーム材料の候補を示しながら研究計画・方法を述べるが、各々の材料について、以上の5段階、すべてに関して製造工程の最適化が必要である。

研究開始当初までにカプセル化に成功していた RF-PF の類似体、及び RF や PF と異なり可視域に吸収を持たないポリスチレンを骨格を有する高分子について、上の段階を検討した。

また、アブレータをコートして、クライオテスト及び、予備的レーザーショットに供給を行った。

4. 研究成果

これまでに最もカプセル形状の性能の優れているポリスチレンに架橋基を導入し、そのゲルに関して空隙構造のサイズを支配する因子を、プラスチックの分子と合成時に用いる溶媒分子の相互作用の観点から議論し、空隙構造の支配因子に関して一つの見通しを立てることができた。ポリスチレン骨格にオキシラン架橋基を有する高分子を新規に設計、合成し、オキシラン架橋基の割合を変えて、その場合に空隙のナノ構造がどのように影響されるか調べた。オキシラン架橋基が少ない場合に空隙の大きさが大きくなることがわかった。これは、架橋反応の後にも溶媒との親和性の高い場合には運動性を保持し、空隙サイズの増加に寄与してしまうことを示唆した。

次に、FIREX-I 用の材料に添加剤として使用しているフロログルシノールカルボン酸・ホルムアルデヒド重合体に着目し、そのゲルを様々な溶媒に交換し、溶媒の種類と空隙サイズの関係調べた。ここでは、溶媒の極性と高分子単位骨格分子の極性の類似した場合に、空隙サイズが大きくなることが明らかとなった。これらの知見に基づいて、低密度材料化の合成過程を再設計し、空隙構造を 10nm レベルまで小さくすると共にカプセルをにも成功した。

FIREX-I 計画の進行に伴い、いくつかのターゲットデザインが変更されたが、それらに関しても製造技術を開発した。そのうち本研究に直接関わる要素として、臭素を含んだアブレータカプセルの製造に一部成功した。

カプセル外表面の平滑化については、ゲル化時の触媒を変えることにより、10 nm の平滑性を持つ薄膜を形成させることを明らかとした。

さらにスピノフ研究として、この低密度材料の前駆体が、触媒反応の担体として有用なことも明らかにした。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (30 件)

1) Fuyumi Ito, Naotake Nakamura, Keiji Nagai*, Mitsuo Nakai, Takayoshi Norimatsu “Smooth Membrane Formation on Resorcinol - Formaldehyde Aerogel Ball Using a Basic Phase-Transfer Catalyst” *Fusion Sci. Technol.*, **55** (4), 465-471, (2009). (査読有)

2) A. Iwamoto*, T. Fujimura, M. Nakai, T. Norimatsu, K. Nagai, R. Maekawa, H. Sakagami, T. Mito, O. Motojima, H. Azechi and K. Mima “TEMPERATURE CONTROL IN A CRYOGENIC TARGET WITH A CONICAL LASER GUIDE FOR FUEL LAYERING” *Fusion Sci. Technol.*, **56** (1), 427-431, (2009). (査読有)

3) Keiji Nagai*, H. Yang, T. Norimatsu, H. Azechi, F. Belkada, Y. Fujimoto, T. Fujimura, K. Fujioka, S. Fujioka, H. Homma, F. Ito, A. Iwamoto, T. Jitsuno, Y. Kaneyasu, M. Nakai, N. Nemoto, H. Saika, T. Shimoyama, Y. Suzuki, K. Yamanaka, K. Mima “Fabrication of aerogel capsule, bromine-doped capsule, and modified gold cone in modified target for Fast Ignition Realization Experiment (FIREX) Project” *Nuclear Fusion*, **49** (9), 095028 (9 pages), (2009). (査読有)

4) Hiroshi AZECHI, Mitsuo NAKAI*, Hirofumi HOMMA, Tomoyuki JOHZAKI, Mayuko KOGA, Kunioki MIMA, Noriaki MIYANAGA, Masakatsu MURAKAMI, Hideo NAGATOMO, Keiji NAGAI, Tatsufumi NAKAMURA, Katsunobu NISHIHARA, Hiroaki NISHIMURA, Takayoshi NORIMATSU, Youichi SAKAWA, Keisuke SHIGEMORI, Hiroyuki SHIRAGA, Akifumi IWAMOTO, Toshiyuki MITO, Hitoshi SAKAGAMI, Osamu MOTOJIMA, Ryosuke KODAMA, Kazuo A. TANAKA and Atsushi SUNAHARA “Advanced target design for the FIREX-I project” *Plasma Fusion Res.*, **4**, S1001 (2 pages), (2009). (査読有)

5) Akifumi Iwamoto, Takeshi Fujimura, Mitsuo Nakai, Takayoshi Norimatsu, Keiji Nagai, Ryuji Maekawa and Hitoshi Sakagami “Proposal on Temperature Control Procedure of the Cryogenic Target for the FIREX Project” *Plasma Fusion Res.*, **4**, S1007 (2 pages), (2009). (査読有)

6) Takeshi Fujimura*, Mitsuo Nakai, Akifumi Iwamoto, Keiji Nagai, Hirofumi Homma, Ken-ichi Tanabe and Takayoshi Norimatsu “Manufacturing of leak check of shell targets for FIREX-I project” *Plasma Fusion Res.*, **4**, S1010 (2 pages), (2009). (査読有)

7) Fuyumi Ito, Naotake Nakamura, Takayoshi Norimatsu, and Keiji Nagai* “Tin-Doped Resorcinol-Formaldehyde Aerogel with Decanano-Cell Structure” *Plasma Fusion Res.*, **4**, S1011 (2 pages), (2009). (査読有)

8) Han Yang, Keiji Nagai*, Toshiyuki Abe, Hirofumi Homma, Takayoshi Norimatsu, Ramasamy Ramaraj “Enhanced Catalytic Activity of Gold Nanoparticles Doped in a Mesoporous Organic Gel based on Polymeric Phloroglucinol Carboxylic Acid -Formaldehyde” *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **1** (9), 1860-1864, (2009). (査読有)

9) H. Azechi, K. Mima, Y. Fujimoto, S. Fujioka, H. Homma, M. Isobe, A. Iwamoto, T. Jitsuno, T. Johzaki, R. Kodama, M. Koga, K. Kondo, J. Kawanaka, T. Mito, N. Miyanaga, O. Motojima, M. Murakami, H. Nagatomo, K. Nagai, M. Nakai, H. Nakamura, T. Nakamura, T. Nakazato, Y. Nakao, K. Nishihara, H. Nishimura, T. Norimatsu, T. Ozaki, H.

Sakagami, Y. Sakawa, N. Sarukura, K. Shigemori, T. Shimizu, H. Shiraga, A. Sunahara, T. Taguchi, K.A. Tanaka, and K. Tsubakimoto "Plasma physics and laser development for the Fast-Ignition Realization Experiment (FIREX) Project" *Nuclear Fusion*, **49** (10), 104024 (6 pages), (2009). (査読有)

10) 乗松孝好, 長井圭治, 岩本晃史, 中井光男, 河仲準二, 中田芳樹 "高速点火核融合研究の進展—高速点火実証ターゲット, ペタワットレーザー-LFEX—" *プラズマ・核融合学会誌*, **85** (11), 755-761, (2009)

11) 藤村猛*, 中井光男, 岩本晃史, 乗松孝好, 長井圭治, 本間啓史, ヤンハン, 坂上仁志, 三間園興 "レーザー核融合高速点火実証実験用クライオターゲットの開発—燃料充填状況の可視化技術—" *低温工学*, **43** (3), 108-112, (2008) (査読有)

12) HAN YANG, KEIJI NAGAI*, MITSUO NAKAI, AND TAKAYOSHI NORIMATSU "Thin shell aerogel fabrication for FIREX-I targets using high viscosity (phloroglucinol carboxylic acid)/formaldehyde solution" *Laser Particle Beam*, **26** (3), 449 -453, (2008). (査読有)

13) T. Watari*, M. Nakai, H. Azechi, T. Sakaiya, H. Shiraga, K. Shigemori, S. Fujioka, K. Otani, K. Nagai, A. Sunahara, H. Nagatomo, and K. Mima "Rayleigh-Taylor instability growth on low-density foam target" *Phys. Plasmas*, **15** (9), 092109 (6 pages), (2008). (査読有)

14) Kentaro Yamanaka*, Keiji Nagai, Nobukatsu Nemoto, Kaori Nomura, Tomonori Shimoyama, Kei Tanji, Tomoya Tanji, Mitsuo Nakai, Takayoshi Norimatsu "Foam structure of xerogel prepared via ring-opening reaction between epoxy groups attached on the side chain of polystyrene" *Fusion Sci. Technol.*, **51** (4), 665-672, (2007). (査読有)

15) Takeshi Fujimura*, Takayoshi Norimatsu, Mitsuo Nakai, Keiji Nagai, Akifumi Iwamoto, and Kunioki Mima "Laser Machining of RF Foam by Second Harmonics of Nd:YAG Laser" *Fusion Sci. Technol.*, **51** (4), 677-681, (2007). (査読有)

16) A. Iwamoto*, R. Maekawa, T. Mito, H. Sakagami, O. Motojima, M. Nakai, K.

Nagai, T. Fujimura, T. Norimatsu, H. Azechi, K. Mima "Preliminary Results of Fuel Layering on the Cryogenic Target for FIREX project" *Fusion Sci. Technol.*, **51** (4), 753-757, (2007). (査読有)

17) D. Batani*, R. Dezulian, R. Redaelli, R. Benocci, H. Stabile, F. Canova, T. Desai, G. Lucchini, E. Krousky, K. Masek, M. Pfeifer, J. Skala, R. Dudzak, B. Rus, J. Ullschmied, V. Malka, J. Faure, M. Koenig, J. Limpouch, W. Nazarov, D. Pepler, K. Nagai, T. Norimatsu and H. Nishimura "Recent experiments on the hydrodynamics of laser-produced plasmas conducted at the PALS laboratory" *Laser Particl. Beams*, **25** (1), 127 - 141, (2007). (査読有)

18) K. Mima*, K.A. Tanaka, R. Kodama, T. Johzaki, H. Nagatomo, H. Shiraga, N. Miyanaga, M. Murakami, H. Azechi, M. Nakai, T. Norimatsu, K. Nagai, T. Taguchi and H. Sakagami "Recent results and future prospects of laser fusion research at ILE, Osaka" *Eur. J. Phys. D*, **44** (2), 259-264, (2007). (査読有)

19) 長井圭治 "展望 レーザー核融合燃料を支えるカプセルとエアロゲル" (表紙) *高分子 KOBUNSHI High Polymers, Japan*, **56** (11), 884-888, (2007). (査読有)

ほか

[学会発表] (20件)

1) Keiji NAGAI Tomokazu Iyoda, XiangWei Zhao, ZhongZe Gu, Akifumi Iwamoto, Han Yang, and Takayoshi Norimatsu, "Encapsulation of low density plastic foam materials for the fast ignition targets and their mass production using microfluid devices" on March 24, 5th IAEA Technical Meeting on Physics and Technology of Inertial Fusion Energy, IAEA Headquarters Vienna, Mar.24-Mar.26, 2010

2) Keiji NAGAI, Han Yang, Fuyumi Ito, "Encapsulation of sub-millimeter-sized organoerogel with high concentricity", 11th Pacific polymer conference, Carens, Dec 6-Dec.11, 2009

3) Keiji NAGAI "Overview of the low-density materials for capsule fabrication" on Nov 17, 2nd Japan-China bilateral workshop on Target materials, ILE, Osaka, Nov 16-Nov. 19, 2008

4) Keiji NAGAI "Low-density materials and their capsule fabrication for laser plasma production" on Nov 5, 3rd Symposium on Integrated Integrated Molecular/Materials Molecular/Materials Engineering (ISIMME 2008), Xian, Nov 5–Nov.8, 2008

5) Keiji NAGAI, Takayoshi NORIMATSU, Mitsuo NAKAI, Hang YANG, Kentaro YAMANAKA, Takeshi FUJIMURA, Liqin GE, Nobukatsu NEMOTO, Tomonori SHIMOYAMA, Akifumi IWAMOTO, Toshiyuki MITO, Hiroyuki SHIRAGA, Hiroshi AZECHI, Kunioki MIMA, "Low density aerogel capsule for FIREX(Fast Ignition Realization EXperiments) project-control of nanostructure-" on Oct 28, 2nd European Target Fabrication Workshop, Oxford, UK, Oct 27–Oct.28, 2008

6) Keiji NAGAI "Encapsulation of Low Density Plastic Foam Materials for Fast Ignition Realization Experiments (FIREX)-Control of Microstructure and Density-"_IF/PF-17, 22nd IAEA Fusion Energy Conference, Geneva, Switzerland, Oct 13–Oct.18, 2008

7) ヤンハン、長井圭治・中井光男・乗松孝好: "エアロゲルカプセルのナノ構造制御とレーザー核融合ターゲットへの応用" 第57回高分子討論会。(20080926). 大阪市立大学

8) 楊ハン・長井圭治・中井光男・乗松孝好、疇地宏、三間罔興: "Thin shell aerogel fabrication for FIREX-I target using high viscosity (phloroglucinol carboxylic acid)/formaldehyde solution" 第7回核融合エネルギー連合講演会。(20080621). 青森市男女共同参画プラザ

9) Keiji NAGAI, Takayoshi NORIMATSU, Mitsuo NAKAI, Hang YANG, Kentaro YAMANAKA, Takeshi FUJIMURA, Liqin GE, Nobukatsu NEMOTO, Tomonori SHIMOYAMA, Akifumi IWAMOTO, Toshiyuki MITO, Hiroyuki SHIRAGA, Hiroshi AZECHI, Kunioki MIMA "Low density aerogel capsule for FIREX(Fast Ignition Realization EXperiments) project-control of nanostructure-" on May 13, 15th Target Fabrication Specialists Meeting, Lake Tahoe, California, 2008

10) 楊ハン・長井圭治・中井光男・乗松孝好: "2,4,6-トリヒドロキシ安息香酸/ホルムアルデヒド樹脂低密度エアロゲルシエルの製作" 日本化学会。(20080327). 立教大学

11) 長井圭治, 乗松孝好, 中井光男, 楊ハン, 山中健太郎, 藤村猛, 葛麗芹, 根本修克, 下山智徳, 岩本晃史, 三戸利行, 白神宏之, 疇地宏, 三間罔興: "高速点火原理実証実験(FIREX)用燃料保持プラスチックの研究(3)" プラズマ・核融合学会。(20071128). イーグレ姫路

12) NORIMATSU Takayoshi, NAGAI Keiji, YANG Han, YAMANAKA Kentaro, FUJIMURA Takashi, NEMOTO Nobukatsu, NAKAI Mitsuo, IWAMOTO Akifumi, SHIRAGA Hiroyuki, AZECHI Hiroshi, and MIMA Kunioki "Current status of LFEX laser and Target fabrication for FIREX-I project" on Oct 17, the 3rd Moscow Workshop on Targets and Applications, Lebedev Physical Institute, Moscow, Russia Oct.15–19, 2007

13) NAGAI Keiji, YANG Han, YAMANAKA Kentaro, FUJIMURA Takashi, NEMOTO Nobukatsu, NAKAI Mitsuo, NORIMATSU Takayoshi, IWAMOTO Akifumi, SHIRAGA Hiroyuki, AZECHI Hiroshi, and MIMA Kunioki "Control of Nanostructure and Thickness of Foam Capsule for FIREX-I using Phase-Transfer Catalyst and Tailored Polymers" Sept 14, 5th International Conference on Inertial Fusion and its Applications (IFSA 2007), Kobe Convention center, Kobe, Hyogo, 2007

14) Keiji Nagai, Han Yang, Takeshi Fujimura, Mitsuo Nakai, Takayoshi Norimatsu, Akifumi Iwamoto, Hiroshi Azechi, Kunioki Mima "Encapsulation of Low Density Materials for the First Stage of Fast Ignition Realization Experiment (FIREX-I)" No 7 on July 30, 2007 China-Japan Bilateral Workshop on Target Materials, HuangShan Media Hotel, HuangShan, Anhui Jul.28–Aug.1, 2007

15) H. Yang, K. Nagai, M. Nakai, and T. Norimatsu: "The investigation on the mechanism of phloroglucinolcarboxylicacid/formaldehyde gelation process and obvious density increase before and after extraction drying" 2007 China-Japan Bilateral Workshop on Target Materials Jul. 28–Aug. 1, 2007. (20070730). HuangShan Media Hotel, HuangShan, Anhui, China

16) Keiji NAGAI, Mitsuo Nakai, Takayoshi Norimatsu, Akifumi Iwamoto, Toshiyuki Mito, Hiroshi Azechi, Kunioki Mima

"Encapsulation of Low Density Materials for the First Stage of Fast Ignition Realization Experiment (FIREX-I) -Control of Microstructure and Gelation Process using a Phase-Transfer Catalyst and Tailored Polymers-" OC-02 on June 19, 2007, 22nd Symposium on Fusion Engineering (22nd SOFE), Albuquerque Convention Center, Albuquerque, New Mexico Jun.17-Jun.21, 2007

17) 楊 ハン・長井圭治・中井光男・乗松孝好: "レゾルシノール/ホルムアルデヒドと2,4,6-トリヒドロキシ安息香酸/ホルムアルデヒド混合アエロゲルの製作" 第56回高分子学会年次大会. (20070530). 京都国際会館

18) 山中健太郎・長井圭治・中井光男・乗松孝好、根本修克・野村香織・下山智徳: "ポリスチレン側鎖のエポキシ基間の開環反応によるゲルとそのキセロゲルのフォーム構造" 第56回高分子学会年次大会. (20070530). 京都国際会館

19) 下山智徳、野村香織、根本修克、山中健太郎、長井圭治、乗松孝好: "レーザー核融合ターゲット材料創成のための架橋性ポリスチレン誘導体の合成" 第56回高分子学会年次大会. (20070530). 京都国際会館

20) 服部正明、根本修克、長井圭治、乗松孝好: "親水性基を有する新規ポリスチレン誘導体の合成" 第56回高分子学会年次大会. (20070529). 京都国際会館

[図書] (計1件)

1) 長井圭治 "ナノテクノロジーが支える核融合ターゲット" カラー図解プラズマエネルギーのすべて, プラズマ・核融合学会編, 日本実業出版社 5章 慣性力で押さえ込む, (98 ページ) (2007).

[その他]

ホームページ等

http://www.res.titech.ac.jp/~hikari/project/firex_target_materials.html

6. 研究組織

(1) 研究代表者

長井 圭治 (NAGAI KEIJI)

東京工業大学・資源化学研究所・准教授

研究者番号: 30280803

(2) 研究分担者

根本 修克 (NEMOTO NOBUKATSU)

日本大学・工学部・准教授

研究者番号: 30237812

岩本 晃史 (IWAMOTO AKIFUMI)

自然科学研究機構・核融合科学研究所・助教

研究者番号: 00260050

中井 光男 (NAKAI MITSUO)

大阪大学・レーザーエネルギー学研究センタ

ー・准教授

研究者番号: 70201663

乗松 孝好 (NORIMATSU TAKAYOSHI)

大阪大学・レーザーエネルギー学研究センタ

ー・教授

研究者番号: 50135753

(3) 連携研究者

本間 啓史 (HOMMA HIROFUMI)

大阪大学・レーザーエネルギー学研究センタ

ー・助教

研究者番号: 90402801