

**AP系コンポジット推進薬の
燃焼表面近傍の反応層での
アルミニウム粒子の集塊と着火**

平成 25 年 9 月

高 橋 賢 一

目次

第 1 章	序論	11
1.1	研究の背景	11
1.2	既往の研究	16
1.3	研究の目的	19
1.4	研究の手法	20
第 2 章	燃焼実験で使用する推進薬と燃焼器	22
2.1	AP 系コンポジット推進薬	22
2.2	ストランドバーナー	27
2.3	集塊粒子回収器	29
第 3 章	燃焼表面上でのアルミニウム粒子の集塊と着火の観察	30
第 4 章	燃焼表面近傍の反応層内の温度分布	36
4.1	燃焼速度	36
4.2	燃焼表面温度	38
4.3	燃焼表面近傍の温度分布	40
第 5 章	着火したアルミニウム粒子の周辺の温度分布	47
5.1	着火したアルミニウム粒子のモデル	47
5.2	計算条件	49
5.3	計算環境	52
5.4	着火したアルミニウム粒子の周辺の温度分布	53
5.5	燃焼表面近傍の反応層内の温度分布と着火したアルミニウム粒子による温度変動	57
第 6 章	集塊したアルミニウム粒子の集塊粒径と集塊範囲	59
6.1	燃焼速度	59

6.2	アルミニウム粒子の集塊粒径	61
6.3	アルミニウム粒子の集塊範囲	66
第7章	考察	71
7.1	着火したアルミニウム粒子の燃焼表面近傍の反応層内の温度分布への影響	71
7.2	アルミニウム粒子の集塊と燃焼表面近傍の反応層内の温度分布との関係	75
第8章	結論	79
	謝辞	81
	参考文献	82
付録A	酸化剤とバインダーの組成比	93
付録B	AP系コンポジット推進薬の断熱火炎温度と反応生成物	94
付録C	AP/HTPBコンポジット推進薬との比較	96
付録D	極細熱電対の時定数	99
付録E	球の抵抗係数によるコンピュータ・シミュレーションの検証	102
付録F	着火したアルミニウム粒子の輝炎径	104
付録G	既往の研究からの燃焼速度とアルミニウム粒子の集塊粒径の理論計算	106

目次

1.1	固体推進薬の推力と燃焼時間	12
1.2	燃焼表面近傍の温度分布	13
1.3	燃焼しているアルミニウム粒子	15
2.1	AP系コンポジット推進薬 (1)	25
2.2	温度分布の計測原理	25
2.3	AP系コンポジット推進薬 (2)	26
2.4	ストランドバーナ (1)	27
2.5	ストランドバーナ (2)	28
2.6	集塊粒子回収器	29
3.1	集塊するアルミニウム粒子	31
3.2	着火したアルミニウム粒子 (1)	32
3.3	着火したアルミニウム粒子の拡大図	32
3.4	着火したアルミニウム粒子 (2)	33
3.5	アルミナの尾	34
3.6	着火直後のアルミニウム粒子のモデル	34
3.7	燃焼しているアルミニウム粒子のモデル	35
4.1	DSC, Al0	38
4.2	DSC, Al10	39
4.3	温度分布, Al0	40
4.4	温度分布, Al10 (1)	41
4.5	温度分布, Al10 (2)	41
4.6	温度分布, Al10 (3)	42
4.7	温度分布, Al10 (1), (2), (3)	43
4.8	温度勾配, Al0	43

4.9	温度勾配, Al10 (1)	44
4.10	温度勾配, Al10 (2)	44
4.11	温度勾配, Al10 (3)	45
5.1	コンピュータ・シミュレーションでの着火したアルミニウム粒子のモデル	48
5.2	計算領域	51
5.3	温度分布 (a), 燃焼表面から $x = 100 \mu\text{m}$	53
5.4	温度分布 (b), 燃焼表面から $x = 100 \mu\text{m}$	53
5.5	温度分布 (a), 燃焼表面から $x = 60 \mu\text{m}$	54
5.6	温度分布 (b), 燃焼表面から $x = 60 \mu\text{m}$	54
5.7	温度分布 (a), 燃焼表面から $x = 20 \mu\text{m}$	54
5.8	温度分布 (b), 燃焼表面から $x = 20 \mu\text{m}$	54
5.9	燃焼表面上の温度勾配の比較	55
5.10	温度分布, 0.1 MPa , $r = 1.0 \text{ mm s}^{-1}$, $Re = 8$	56
5.11	温度分布, 1.0 MPa , $r = 3.5 \text{ mm s}^{-1}$, $Re = 35$	56
5.12	温度分布, Al10 (1)	57
5.13	温度分布 (b), 燃焼表面から $x = 60 \mu\text{m}$	58
6.1	燃焼速度	60
6.2	アルミニウム粒子の集塊粒径, AN0	61
6.3	アルミニウム粒子の集塊粒径, AN5	62
6.4	アルミニウム粒子の集塊粒径, AN10	62
6.5	アルミニウム粒子の集塊粒径, Al20	63
6.6	アルミニウム粒子の集塊粒径の平均値, AN0, AN5, AN10	63
6.7	輝炎層から回収したアルミニウム粒子の集塊粒径, AN10	64
6.8	アルミニウム粒子の集塊粒径の平均値, AN0, AN5, AN10	64
6.9	アルミニウム粒子の集塊の機構のモデル	66
6.10	集塊前にアルミニウム粒子が分布していた領域	67
6.11	アルミニウム粒子の集塊範囲, AN0	68
6.12	アルミニウム粒子の集塊範囲, AN5	68
6.13	アルミニウム粒子の集塊範囲, AN10	69
6.14	アルミニウム粒子の集塊範囲, Al20	69
6.15	アルミニウム粒子の集塊範囲の平均値, AN0, AN5, AN10	70
7.1	燃焼表面近傍の温度分布 (1)	72
7.2	燃焼表面近傍の温度分布 (2)	73

7.3	燃焼表面近傍の反応層内の燃焼波構造	75
7.4	アルミニウム粒子の集塊と反応層内の温度分布	76
7.5	アルミニウム粒子の集塊範囲と反応層内の温度分布	77
7.6	アルミニウム粒子の集塊範囲と燃焼速度, AN0, AN5, AN10	78
A.1	バインダーの組成比を変化させたときの断熱火炎温度	93
B.1	アルミニウム粒子の組成比が変化したときの断熱火炎温度	95
B.2	燃焼生成物	95
E.1	球の抵抗係数	103
F.1	着火後のアルミニウム粒子の集塊粒径と輝炎径	104

表目次

1.1	AP系コンポジット推進薬の組成の例	12
2.1	AP系コンポジット推進薬の組成(1)	23
2.2	AP系コンポジット推進薬の組成比(1)	23
2.3	AP系コンポジット推進薬の組成(2)	24
2.4	AP系コンポジット推進薬の組成比(2)	24
2.5	燃焼実験の条件	28
4.1	燃焼速度	36
4.2	DSCの計測条件	38
4.3	温度勾配	45
4.4	燃焼表面に接近して出現した温度変動	45
5.1	計算条件	50
5.2	燃焼ガスの速度	50
5.3	メッシュ分割数と格子数	51
5.4	計算条件(1)	55
5.5	計算条件(2)	55
6.1	アルミニウム粒子の平均粒子間隔	67
7.1	反応層内の $\alpha_g \lambda_g \Delta T_{sg-a}$	78
B.1	理論計算のAP系コンポジット推進薬の組成	94
C.1	理論計算のAP系コンポジット推進薬の組成	96
C.2	断熱火炎温度	96
C.3	HTPBとOctの比較	97

C.4	反応生成物	97
D.1	AP 系コンポジット推進薬の組成	100
D.2	物性値と時定数	100
E.1	球の抵抗係数の計算条件 (1)	102
E.2	球の抵抗係数の計算条件 (2)	102
G.1	AP 系コンポジット推進薬の組成	106
G.2	AP 系コンポジット推進薬の燃焼速度の理論計算	107
G.3	アルミニウム粒子の集塊範囲と集塊粒径	107

記号・略号

α_g	コンポジット推進薬の組成によって決まる定数
δ_g	反応層の厚さ [μm]
λ_g	燃焼ガスの熱伝導率 [$\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}$]
λ_p	コンポジット推進薬の熱伝導率 [$\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}$]
μ_g	燃焼ガスの粘性係数 [Pa s]
ν_g	燃焼ガスの動粘性係数 [$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$]
ρ_g	燃焼ガスの密度 [kg m^{-3}]
ρ_p	コンポジット推進薬の密度 [kg m^{-3}]
ρ_{pt}	白金の密度 [kg m^{-3}]
τ_{tc}	極細熱電対の時定数 [ms]
a	集塊
f	輝炎
g	気相
o	初期状態
p	固相
s	燃焼表面
pt	白金
tc	極細熱電対
c_p	コンポジット推進薬の比熱 [$\text{J kg}^{-1} \text{K}^{-1}$]
c_{pt}	白金の比熱 [$\text{J kg}^{-1} \text{K}^{-1}$]
D	アルミニウム粒子の粒径 [μm]
D_a	アルミニウム粒子の集塊粒径 [μm]
D_b	熱源の粒径 [μm]
D_f	着火したアルミニウム粒子の輝炎径 [μm]
D_{tc}	極細熱電対の接点の直径 [μm]
I_{Al}	アルミニウム粒子の平均粒子間隔 [μm]

N	アルミニウム粒子の個数
Nu	ヌセルト数
P	圧力 [Pa]
Pr	プラントル数
Q_s	コンポジット推進薬の燃焼表面での発生熱量 [J kg^{-1}]
r	燃焼速度 [mm s^{-1}]
R_a	アルミニウム粒子の集塊範囲 [μm]
Re	レイノルズ数
T	燃焼ガスの温度 [K]
T_a	アルミニウム粒子の集塊が完了する温度 [K]
T_f	輝炎の温度 [K]
T_g	気相の温度 [K]
T_o	初期温度 [K]
T_s	燃焼表面の温度 [K]
U	燃焼ガスの速度 [m s^{-1}]
x	燃焼表面からの距離 [μm]
Al	アルミニウム
AN	硝酸アンモニウム, NH_4NO_3
AP	過塩素酸アンモニウム, NH_4ClO_4
CFD	Computational Fluid Dynamics, 数値流体力学
DSC	Differential Scanning Calorimetry, 示差走査熱量測定
HTPB	末端水酸基ポリブタジエン, $\text{C}_{7.075}\text{H}_{10.65}\text{O}_{0.223}\text{N}_{0.063}$
Oct	オクタデシルアルコール (ステアリルアルコール), $\text{C}_{18}\text{H}_{38}\text{O}$
Pt	白金
Rh	ロジウム
SEM	Scanning Electron Microscope, 走査型電子顕微鏡

第 1 章

序論

1.1 研究の背景

日本での固体ロケットの用途は、小型の観測用固体ロケット、中型固体ロケット、大型液体ロケットの補助ブースタと多様である。大型の液体ロケットの大掛かりな発射設備と比較して、固体ロケットの発射設備は小規模であり、小型・中型ロケットに固体ロケットを利用することにより利便性が向上し、日本では気象観測、科学実験、小型衛星の打ち上げなどに多く貢献している [1,2].

固体ロケットの性能を表すロケットモータの推力は、式 1.1 の関係式によって求めることができる [3].

$$F = I_{sp}\rho_p r A_b \quad (1.1)$$

F は推力, I_{sp} は固体推進薬の化学エネルギーと燃焼する圧力によって決まる比推力, ρ_p は固体推進薬の密度, r は燃焼速度, A_b は固体推進薬が燃焼している表面積である。推力を変化させるには, r または A_b を変化させることによって行われる。しかしながら, r を変化させられる範囲は限定されるので, 主に固体推進薬の内面燃焼方式や端面燃焼方式を利用することによって A_b を変化させ推力を調整している [3].

ロケットモータの燃焼時間は, 式 1.2 のように表せる [3].

$$t_b = \frac{l}{r} \quad (1.2)$$

t_b は燃焼時間, l は固体推進薬の燃焼方向の長さであり, t_b は l と r を変化させることによって調整できる。しかしながら, 何れの燃焼方式によっても l と r の変化には制限があり, 設計の自由度が限定されている。固体ロケットの用途に合わせてロケットモータを設計する際には燃焼速度と燃焼時間を調整するわけであるが, 図 1.1 のように, 現在, 実用

化されている固体推進薬には推力と燃焼時間との関係で達成できない領域がある。ロケットモータの設計の自由度を確保するために、この領域を広げる必要があり、燃焼速度を大幅に増減させることが必要となってくる [3,4].

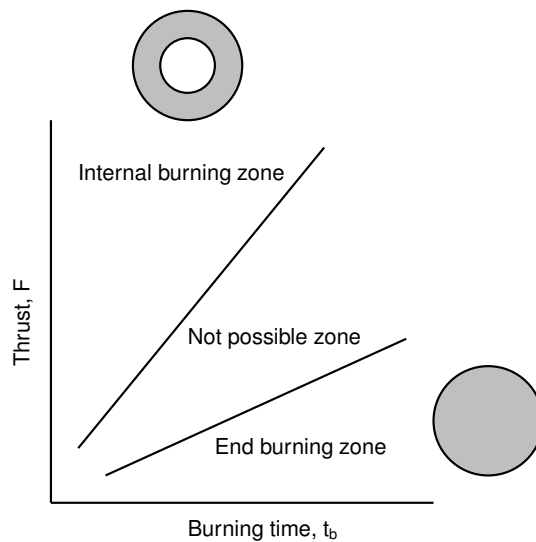


図 1.1 固体推進薬の推力と燃焼時間

固体ロケットのロケットモータの固体推進薬には、主にコンポジット推進薬が多く使用されている。コンポジット推進薬は結晶状の酸化剤、固体粒子の金属燃料、高分子樹脂のバインダー (燃料と結合剤を兼ねる) から構成される。コンポジット推進薬には、一般的に酸化剤に過塩素酸アンモニウム (AP)、金属燃料にアルミニウム粒子 (Al)、バインダーに末端水酸基ポリブタジエン (HTPB) という組成が多く使用されている [3,5-8]。酸化剤に過塩素酸アンモニウム (AP) を使用するコンポジット推進薬を総称して AP 系コンポジット推進薬と呼んでいる。AP 系コンポジット推進薬の組成の一例を表 1.1 に示す [9,10]。

表 1.1 AP 系コンポジット推進薬の組成の例

	組成	分子記号	組成比 (質量比)
酸化剤	過塩素酸アンモニウム	NH_4ClO_4	68
バインダー	末端水酸基ポリブタジエン	$\text{C}_{7.075}\text{H}_{10.65}\text{O}_{0.223}\text{N}_{0.063}$	14
金属燃料	アルミニウム粒子	Al	18

AP 系コンポジット推進薬の燃焼に関する研究では、燃焼速度を決定する物理及び化学的要因を求めるために、燃焼表面近傍の燃焼波構造の解明に関心が寄せられている。燃焼

波構造とは燃焼表面近傍の化学反応の機構と温度分布を総称する。AP系コンポジット推進薬は酸化剤と金属燃料の粒径を調整することにより燃焼速度を調整することができ、燃焼速度の調整とアルミニウム粒子の集塊を抑制するために、過塩素酸アンモニウムとアルミニウム粒子の粒径を複数混合して使用している。過塩素酸アンモニウムの粒径は大(平均粒径 $400\ \mu\text{m}$ 程度)・中(平均粒径 $200\ \mu\text{m}$ 程度)・小(平均粒径 $50\ \mu\text{m}$ 程度)、アルミニウム粒子の粒径は大・小(平均粒径 5 から $50\ \mu\text{m}$ 程度)というような組み合わせで、それぞれの粒径をロケットモータの使用目的に合わせて調整し混合し、燃焼速度を調整している [11]。粒径の組み合わせは実験または経験的に決定されており、理論的な説明には不明な部分が多く残されている。結晶状の酸化剤と固体粒子の金属燃料及び高分子樹脂のバインダーによる組成によって、固相及び気相において不均質な構造となり、酸化剤とバインダーは燃焼表面近傍で拡散火炎を形成するために燃焼波構造が不均質になり [3, 6]、さらに、集塊し不均一な粒径のアルミニウム粒子の燃焼が燃焼波構造を複雑にしているために解析を困難にしている。また、酸化剤とバインダーの拡散火炎は $3000\ \text{K}$ ほどの高温となるために物理的な計測も困難となる。

燃焼表面近傍の燃焼波構造を解明するために、燃焼表面近傍の温度分布の計測が試みられており、図 1.2 は AP 系コンポジット推進薬の燃焼表面近傍の平均的な温度分布を示したものである [3, 12]。

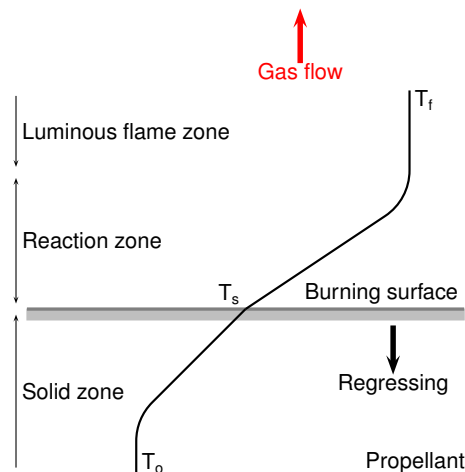


図 1.2 燃焼表面近傍の温度分布

図 1.2 のように燃焼表面近傍の温度分布は、固相で初期温度 T_0 から燃焼表面の燃焼表面温度 T_s まで上昇し、気相の反応層で燃焼表面温度から火炎温度 T_f まで上昇した後、輝炎層で火炎温度はほぼ一定となる。燃焼表面近傍の反応層の厚さは雰囲気圧力で変化し、 $0.1\ \text{MPa}$ の雰囲気では 100 から $200\ \mu\text{m}$ 程度で非常に薄い [13]、反応層から燃焼表面に入

る熱量が燃焼速度に大きく影響するので、燃焼速度が決まる要因を求める上で反応層内での燃焼波構造を詳細に解明することが重要である。しかしながら、燃焼表面は平坦ではなく、反応層は非常に薄く、反応層内の燃焼波構造の直接または間接的な物理的計測は非常に困難であり、燃焼波構造の全てを解明するには至っていない。このような状況の中で、極細熱電対（白金-白金 10% ロジウム、線径は 2.5 から 12.5 μm ）による燃焼表面近傍の温度分布の計測が有効な手段であるが [14]、アルミニウム粒子を添加した AP 系コンポジット推進薬では、反応層内で酸化剤とバインダーによって拡散火炎が形成され、アルミニウム粒子の着火と燃焼が起るために極細熱電対が容易に切断され、アルミニウム粒子を添加した AP 系コンポジット推進薬の燃焼表面近傍の温度分布に関する研究は非常に少ない。燃焼波構造の解明のために、近年、コンピュータ・シミュレーションによる研究も行われているが、化学反応が複雑なためにコンピュータ・シミュレーションの基本となるモデルの構築が難しく、まだ実用化には至っていない。

AP 系コンポジット推進薬に金属燃料としてアルミニウム粒子を添加することにより推進性能が向上し、燃焼の安定性が得られる。AP 系コンポジット推進薬の組成比の合計を 100 とすると、一般的にアルミニウム粒子の組成比は 10 から 20 であり、組成比を 15 としたときには比推力を 10% 増加させることができる [6]。AP 系コンポジット推進薬にアルミニウム粒子を添加したとき、アルミニウム粒子は着火性が良く、発熱量が大きく、高密度、低コストであるために金属燃料として利用されている。また、アルミニウム粒子の燃焼効率は最高で約 90% で、完全燃焼に至らなかったものはノズルやモータケース内に残留し、ロケットモータの損傷などの問題を起こす [3]。

AP 系コンポジット推進薬に添加されるアルミニウム粒子は推進薬の性能向上に大きく貢献しているので、AP 系コンポジット推進薬の燃焼に関する研究の中では、金属燃料のアルミニウム粒子に関する研究が多くを占める。アルミニウム粒子に関する研究では、コンポジット推進薬の燃焼ガスを模擬した雰囲気でのアルミニウム粒子の着火と燃焼実験が行われているが、実際にコンポジット推進薬が燃焼しているときの条件とは差異があるために詳細の解明には至っていない。近年、これらの燃焼実験をモデル化したコンピュータ・シミュレーションも行われているが、実験と一致した結果は得られていない。また、コンポジット推進薬が燃焼しているときのアルミニウム粒子の観察が行われているが、燃焼表面から離れた輝炎層内での研究が多く、燃焼表面近傍の反応層内でのアルミニウム粒子の集塊と着火の機構に関する研究は非常に少なく、十分に解明されていない。

AP 系コンポジット推進薬に添加されたアルミニウム粒子は燃焼表面上で集塊することが解っており、アルミニウム粒子の集塊粒径は 100 から 200 μm 程度まで成長し [11]、アルミニウム粒子の集塊は推進性能を低下させるとして問題となっている。集塊したアルミニウム粒子の粒径は元の粒径の 10 倍ほどになり、燃焼時間は粒径の約 1.8 乗に比例し [15]、着火遅れと燃焼時間が増大するので、ロケットモータ内での完全燃焼が困難とな

りアルミニウム粒子の燃焼効率が低下し、ロケットモータの推進性能も低下する。アルミニウム粒子に関する研究では、アルミニウム粒子の集塊と燃焼特性を理解し、ロケットモータ内で完全燃焼させ燃焼効率を上げることが研究の目的となっている。

アルミニウム粒子の大部分は燃焼表面上で集塊し、酸化剤とバインダーの拡散火炎により着火する。燃焼表面近傍で着火したアルミニウム粒子は燃焼しながら燃焼ガスと共に流されて行く。図 1.3 のようにアルミニウム粒子は気相で拡散燃焼し、蒸発したアルミニウムから成る雲に覆われ、雲の外周部に輝炎層を形成し、輝炎層で輝炎を発生する。集塊し着火したアルミニウム粒子の外周部の輝炎層までの輝炎径は集塊粒径の 2 から 4 倍ほどになる。また、輝炎層で最高温度となり、3000 から 4000 K となる [16,17]。集塊し着火したアルミニウム粒子の周辺の燃焼ガスは温度が急上昇し、化学反応が促進される。しかしながら、集塊したアルミニウム粒子は完全燃焼に至らず、不完全燃焼のまま燃焼ガスと共にノズルから外気へ排出される。

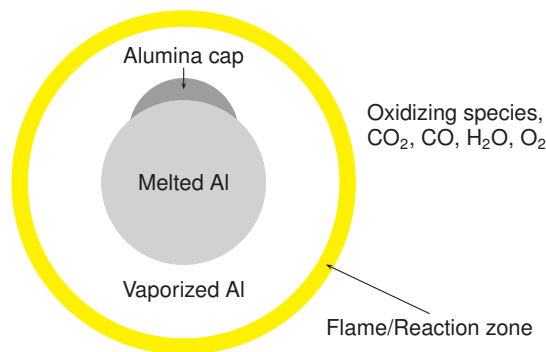


図 1.3 燃焼しているアルミニウム粒子

燃焼表面近傍の反応層付近で集塊し着火するアルミニウム粒子は、反応層内の温度分布に影響を与えるので、燃焼速度が変化する要因の一つと考えられる。AP 系コンポジット推進薬の燃焼表面近傍の反応層付近で集塊し着火するアルミニウム粒子の挙動を求めることは、AP 系コンポジット推進薬の反応層内の燃焼波構造の一部を解明する重要な研究課題となる [18–23]。

1.2 既往の研究

AP系コンポジット推進薬の燃焼に関する研究では解析的に燃焼速度を求めるために様々なモデルが提案されている。極細熱電対を使用して燃焼表面近傍の温度分布が計測されており、温度分布の解析から、燃焼表面近傍の熱平衡によって燃焼速度が決まり、気相から燃焼表面への熱流入量が燃焼速度を律速し、燃焼表面上の温度勾配が燃焼速度に大きな影響を与えることが報告されている。燃焼表面近傍の固相と気相での物性値を実験的に取得することによって燃焼速度を求めることができるが、AP系コンポジット推進薬では気相の物性値の取得が難しい。アルミニウム粒子を添加したAP系コンポジット推進薬の燃焼表面近傍の温度分布を計測した研究は非常に少なく、アルミニウム粒子の着火の有無などは計測または解析されていない [13, 24–30]。

過塩素酸アンモニウムには塩素 (Cl) が含まれ、燃焼生成物の中に強酸の塩化水素 (HCl) を含むので環境への影響が問題視され、塩化水素の排出を抑える様々な研究が行われている。過塩素酸アンモニウムに代わる塩素を含まない酸化剤の研究も盛んに行われており、有望視されている研究はあるが、どれも実用化には至っていない。塩素を削減するために過塩素酸アンモニウムの一部を、塩素を含まない硝酸アンモニウムに置換してAP系コンポジット推進薬を試作し、燃焼速度や燃焼波構造を解明しようとする研究も行われている。塩化水素の排出を抑制するためにマグナリウム (Mg/Al) を添加して塩素を固定化しようとする試みも行われている [11, 31–38]。

過塩素酸アンモニウムの粒径によって燃焼速度が変化することが解っており、過塩素酸アンモニウムの粒径が燃焼速度へ及ぼす影響が研究されている。また、精製方法や形状なども研究されている [10, 39–41]。

塩素を含まない過塩素酸アンモニウムに代わる高エネルギー物質の研究も行われている。高エネルギー物質はAP系コンポジット推進薬だけに限らず、多岐に渡って利用され、広域的な研究が行われている [42–47]。

2次元または3次元のAP系コンポジット推進薬の燃焼表面近傍のコンピュータ・シミュレーションが行われている。コンピュータ・シミュレーションのモデルはまだ不完全ながら、燃焼表面近傍の様子が報告されている。コンピュータ・シミュレーションでは燃焼表面近傍の温度分布、速度分布、燃焼波構造などが詳細に再現できるので、今後の発展に期待するところである [48, 49]。

AP系コンポジット推進薬に添加されるアルミニウム粒子に関する研究では、AP系コンポジット推進薬の燃焼ガスを模擬した雰囲気の中で、単一アルミニウム粒子の燃焼実験が多く行われている。単一アルミニウム粒子の燃焼実験では着火から燃焼の様子が観察され、アルミニウム粒子の燃焼の機構を明らかにしている。高速度ビデオカメラや高速

シャッターのカメラを使用して着火し燃焼するアルミニウム粒子の挙動を観察し、PLIF法や電磁波を計測することによって温度分布やアルミナなどの燃焼生成物の分布などの計測を行なっている。アルミニウム粒子の燃焼時間については多く報告されており、粒径との関係を明らかにし、粒径の2乗または1.5から1.8乗の関係にあるとしている。AP系コンポジット推進薬の燃焼ガスの中で実際に着火し燃焼する場合とは異なるが、これらの研究によって燃焼ガスの中で着火し燃焼するアルミニウム粒子の挙動を推測することは可能となる [15–17, 50–75]。

アルミニウム粒子を添加したAP系コンポジット推進薬が燃焼しているときに、燃焼表面と輝炎層において、高速度ビデオカメラや高速シャッターのカメラを使用して着火し燃焼するアルミニウム粒子の挙動を観察し、アルミニウム粒子の集塊と着火と燃焼の様子が報告されている。輝炎層内の集塊したアルミニウム粒子を回収することによって、アルミニウム粒子の燃焼効率、AP系コンポジット推進薬の燃焼効率への影響なども報告されている。集塊したアルミニウム粒子を回収するとき、燃焼表面からの距離を変化させ、集塊粒径の変化も報告されている。アルミニウム粒子を添加したAP系コンポジット推進薬で極細熱電対によって燃焼表面の温度と、光ファイバーを使用して気相からの熱輻射を計測し、燃焼表面近傍の燃焼波構造を解析し、アルミニウム粒子の影響を報告している。しかしながら、これらの研究の多くが輝炎層内に関するもので、燃焼表面近傍でのアルミニウム粒子の集塊と着火が定性的に説明されているが、燃焼表面近傍の反応層内でのアルミニウム粒子の集塊と着火の機構は明らかにされていない [76–90]。

ナノ粒径のアルミニウム粒子の固体ロケットへの利用が試みられており、燃焼実験による燃焼速度などが報告されている。ナノ粒径のアルミニウム粒子をマイクロ粒径よりも少量だけAP系コンポジット推進薬に添加すると大幅に燃焼速度は増加し、今後の利用が期待される。ナノ粒径のアルミニウム粒子はマイクロ粒径とは異なった挙動を示すことから、ナノ粒径の単一アルミニウム粒子による着火と燃焼実験も行われている。雰囲気圧力を変化させると、ナノ粒径とマイクロ粒径のアルミニウム粒子の燃焼形態が変化し、ナノ粒径では拡散燃焼しないと報告されている。ナノ粒径のアルミニウム粒子は表面がコーティングされており、皮膜の種類の違いによる着火と燃焼の様子なども報告されている。ナノ粒径とマイクロ粒径を混合したときの着火と燃焼の様子が観察され、燃焼時間等が計測されている。ナノ粒径のアルミニウム粒子は集塊はしないが凝集し、凝集した大きさはマイクロサイズにもなり、凝集の機構も研究されている [91–99]。

2次元または3次元のコンピュータ・シミュレーションによって、着火し燃焼するアルミニウム粒子の周辺の温度分布、燃焼生成物の分布などに関する研究が行われている。コンピュータ・シミュレーションによる解析ではアルミニウム粒子の燃焼の機構が詳細に解るが、燃焼実験と完全に一致するモデルはほとんど無い。燃焼表面近傍でのアルミニウム粒子の集塊と着火と燃焼をコンピュータ・シミュレーションしようとする試みも行われて

いる。アルミニウム粒子が燃焼しているときに現れるアルミナ・キャップ (アルミナの塊) のコンピュータ・シミュレーションも行われ、燃焼が進行すると大きさが変化する様子が報告されている [100–112].

ナノ粒径のアルミニウム粒子と氷を利用した固体ロケットを開発し、打ち上げ実験に成功している。環境に対して低負荷な固体推進薬として今後が期待されるが、燃焼効率が約 70 % と低く、今後の開発により燃焼効率を上げ比推力を上げていきたいとしている [113, 114].

以上のように、AP 系コンポジット推進薬とアルミニウム粒子に関する研究は多く行われているが、AP 系コンポジット推進薬に添加されたアルミニウム粒子に関する研究では、燃焼表面近傍の反応層内での集塊と着火の機構に関してほとんど研究が行われていない。AP 系コンポジット推進薬の性能向上のために、アルミニウム粒子の集塊と着火と、燃焼表面近傍の反応層との関係を明らかにすることが重要である。

1.3 研究の目的

本研究の目的は、アルミニウム粒子を添加した AP 系コンポジット推進薬で、燃焼表面近傍の反応層内でアルミニウム粒子が着火したときに反応層内の温度分布へ与える影響を求め、アルミニウム粒子が燃焼表面近傍の反応層内で集塊するときの機構と反応層内の温度分布との関係を求めることである。

1.4 研究の手法

アルミニウム粒子を添加した AP 系コンポジット推進薬で、燃焼表面近傍の反応層内でアルミニウム粒子が着火したときに反応層内の温度分布へ与える影響を求め、アルミニウム粒子が燃焼表面近傍の反応層内で集塊するときの機構と反応層内の温度分布との関係を求めるために、以下のように研究を進めた。

白黒高速度ビデオカメラと実体顕微鏡を使用して燃焼表面近傍のアルミニウム粒子を撮影した。アルミニウム粒子の集塊と着火の様子を観察するために、輝度を調整し、溶融したアルミニウムと蒸発したアルミニウムを分離するためにネガフィルムを利用した減光フィルターを使用した。このようにして、燃焼表面近傍でアルミニウム粒子の集塊と着火を詳細に観察することができた。燃焼表面近傍でのアルミニウム粒子の着火の有無を確認し、コンピュータ・シミュレーションのモデルの基礎となる着火直後の様子、アルミニウム粒子の集塊の機構のモデルの基礎となる集塊の様子を観察した。

アルミニウム粒子を添加した AP 系コンポジット推進薬の燃焼表面近傍の反応層内の直接計測は非常に困難であるが、本研究では極細熱電対の線径を大きくし、AP 系コンポジット推進薬の組成を調整し、燃焼速度を減少させ反応層を拡大することによって反応層内の温度分布の計測に成功した。酸化剤とバインダーによる拡散火炎と着火したアルミニウム粒子により極細熱電対が切断され、多数の計測を行うのは困難であるが、解析に必要な計測結果の取得に成功した。計測した温度分布には着火したアルミニウム粒子による温度変動が出現し、従来の研究では計測されていなかった反応層内でのアルミニウム粒子の着火を捉えることができた。燃焼表面近傍の反応層内の温度分布でアルミニウム粒子による温度変動を解析し、着火したアルミニウム粒子の反応層内の温度分布への影響を求めた。

アルミニウム粒子が着火したときに、燃焼表面近傍の反応層内の温度分布に与える影響を明らかにするために、着火したアルミニウム粒子の周辺の温度分布を詳細に知ることが必要である。しかしながら、着火したアルミニウム粒子の周辺の温度分布を実験的に取得することは困難であるので、コンピュータ・シミュレーションを利用して着火したアルミニウム粒子の周辺の温度分布を求めた。燃焼表面近傍の燃焼波構造が複雑で詳細は不明な部分が多く、コンピュータ・シミュレーションのためのモデルには実用的なものはほとんど無く、詳細を忠実にコンピュータ・シミュレーションするのは困難である。本研究では、着火したアルミニウム粒子が高温の熱源となり、熱源の粒子から燃焼ガスへの熱伝導と熱伝達による温度分布に注目した。モデルを単純化して、単一高温ガスによって燃焼表面近傍の燃焼ガスを模擬し、その中で着火したアルミニウム粒子を模擬した高温の熱源とした球形の粒子の周辺の温度分布をコンピュータ・シミュレーションで求め、粒子の周辺

の温度分布を解析した。解析結果から着火したアルミニウム粒子が燃焼表面近傍の反応層内の温度分布に与える影響を求めた。

燃焼表面近傍の反応層内でのアルミニウム粒子の集塊の機構を求めるために、アルミニウム粒子を添加した AP 系コンポジット推進薬の燃焼表面近傍の反応層内を白黒高速度ビデオカメラにより撮影し、集塊したアルミニウム粒子の集塊粒径を計測した。ここでも、AP 系コンポジット推進薬の組成を調整し、燃焼速度を減少させ反応層を拡大することによってアルミニウム粒子を鮮明に捉えることに成功した。動画で計測したアルミニウム粒子の集塊粒径を検証するために、集塊したアルミニウム粒子を輝炎層内で回収し、集塊粒径を計測し、動画から計測した集塊粒径との比較を行った。燃焼速度の変化の影響を求めるために、雰囲気圧力を一定としたときに、酸化剤の組成比を変化させ燃焼速度を変化させて燃焼実験を行い、アルミニウム粒子の集塊粒径を計測した。アルミニウム粒子の集塊の機構のモデルを提案し、AP 系コンポジット推進薬内で一定間隔で分布していたアルミニウム粒子が集塊したときに、その分布領域の代表長さを集塊範囲として、集塊範囲と反応層内の温度分布との関係を求めた。

以上のようにして、本研究では、アルミニウム粒子を添加した AP 系コンポジット推進薬で、燃焼表面近傍の反応層内で集塊し着火するアルミニウム粒子と反応層内の温度分布との関係を求めた [18–23]。

第 2 章

燃焼実験で使用する推進薬と燃焼器

2.1 AP 系コンポジット推進薬

一般的な AP 系コンポジット推進薬は酸化剤に過塩素酸アンモニウム (AP), バインダー (燃料兼結合剤) に末端水酸基ポリブタジエン (HTPB), 金属燃料にアルミニウム粒子 (Al) という組成である。本研究では, 燃焼表面近傍の反応層内の温度分布と反応層内でのアルミニウム粒子の着火と集塊を観察または計測するので, 反応層を拡大させ計測精度を向上させるために, 燃焼速度を減少させる必要がある [3]。このような理由において, 本研究の AP 系コンポジット推進薬の組成は, 一般的な AP 系コンポジット推進薬の組成を一部変更して, 酸化剤に過塩素酸アンモニウム (AP) と硝酸アンモニウム (AN), バインダーにオクタデシルアルコール (ステアリルアルコール, Oct), 金属燃料にアルミニウム粒子 (Al) とした。燃焼表面近傍での観察と計測を可能とするため, 燃焼表面で熔融し, 燃焼速度を減少させ, 炭素の発生を低減させるために, バインダーに Oct を選定した。また, 酸化剤の AP と AN の組成比を変化させることによって燃焼速度を調整することができ, AN を増加させることによって燃焼速度を減少させることができる [37, 38]。一般的な AP/HTPB コンポジット推進薬と本研究の AP/AN/Oct コンポジット推進薬の断熱火炎温度と燃焼生成物はほぼ同等であり, 本研究の AP 系コンポジット推進薬で一般的な AP/HTPB コンポジット推進薬を模擬することは可能である (付録 C)。

AP 系コンポジット推進薬の組成は表 2.1 から 2.4 のように用意した。組成比と粒径は, それぞれの観察と計測に合わせて決定した。組成比の略号は, AN の組成比が 10 のときに “AN10” のようにし, 同じようにアルミニウム粒子の組成比が 10 のときには “Al10” とした。以降, AP 系コンポジット推進薬の組成比は, AN の組成比が 10, アルミニウム粒子の組成比が 10 のときには, “AN10 Al10” のように表記する。

燃焼表面近傍の温度分布を計測するときに, 着火したアルミニウム粒子を捉えられるように, また, 極細熱電対の切断を減じることができるようアルミニウム粒子の粒径と組成

比を決定した。燃焼表面近傍の温度分布の計測のための AP 系コンポジット推進薬の組成を表 2.1 と 2.2 に示す。

表 2.1 AP 系コンポジット推進薬の組成 (1)

組成		略号	分子記号	平均粒径 [μm]
酸化剤	過塩素酸アンモニウム	AP	NH_4ClO_4	40
	硝酸アンモニウム	AN	NH_4NO_3	200
バインダー	オクタデシルアルコール	Oct	$\text{C}_{18}\text{H}_{38}\text{O}$	–
金属燃料	アルミニウム粒子	Al	Al	20

平均粒径はメーカー計測値である。

AP : Japan Carlit Co., Ltd.

AN : Wako Co., Ltd.

Oct : Kanto Chemical Co., Ltd.

Al : Kojundo Chemical Laboratory Co., Ltd.

表 2.2 AP 系コンポジット推進薬の組成比 (1)

略号	組成比 (質量比)				
	AP	AN	Oct	Al	
				Al0	Al10
AN10	80	10	10	0	10

アルミニウム粒子の集塊の機構を調べるためにアルミニウム粒子の組成比を変化させ、酸化剤の組成比を調整することによって燃焼速度を調整した。アルミニウム粒子の集塊を白黒高速度ビデオカメラで捉えられるようにアルミニウム粒子の粒径を決定した。燃焼表面近傍でのアルミニウム粒子の集塊と着火を観察するためと、アルミニウム粒子の集塊粒径を計測するための AP 系コンポジット推進薬の組成は表 2.3 と 2.4 の通りである。

表 2.3 AP系コンポジット推進薬の組成 (2)

組成		略号	分子記号	平均粒径 [μm]
酸化剤	過塩素酸アンモニウム	AP	NH_4ClO_4	50
	硝酸アンモニウム	AN	NH_4NO_3	100
バインダー	オクタデシルアルコール	Oct	$\text{C}_{18}\text{H}_{38}\text{O}$	–
金属燃料	アルミニウム粒子	Al	Al	30

平均粒径はメーカー計測値である。

AP : Japan Carlit Co., Ltd.

AN : Wako Co., Ltd.

Oct : Kanto Chemical Co., Ltd.

Al : Kojundo Chemical Laboratory Co., Ltd.

表 2.4 AP系コンポジット推進薬の組成比 (2)

略号	組成比 (質量比)						
	AP	AN	Oct	Al			
				Al0	Al5	Al10	Al20
AN0	90	0	10	0	5	10	20
AN5	85	5	10	0	5	10	20
AN10	80	10	10	0	5	10	20

酸化剤とバインダーの合計を 100 として、アルミニウム粒子を外割で添加した。酸化剤とバインダーの組成比は、組成比を変化させたときに、理論計算において最も断熱炎温度が高くなる組成比を選択した (付録 A)。また、酸化剤の AP と AN の組成比の合計が 90 となるように、AN の組成比を変化させ、燃焼速度を変化させた。これらの材料をオクタデシルアルコールが溶融する低温で加熱しながら 10 分間攪拌し、ステンレス製の型を使用して円筒形または半円筒形に定圧圧縮成型 (1 分間, 10 MPa) し、側面は端面燃焼を行うようにビニール樹脂系接着剤により被覆した。低温加熱しているときにオクタデシルアルコールは溶融し結合剤の役目を果たし、結晶状または固体粒子のまま AP 系コンポジット推進薬の中に残るのは過塩素酸アンモニウム、硝酸アンモニウム、アルミニウム粒子となる。AP 系コンポジット推進薬の材料は全て同じロットから製造し、材料を十分に混合し同じ密度になるように製造した。AP 系コンポジット推進薬の密度は 1610 kg m^{-3} (Al0) から 1730 kg m^{-3} (Al20) となり、主にアルミニウム粒子の組成比によって密度は変化した。

燃焼表面近傍の反応層内の温度分布の計測を行うために極細熱電対を AP 系コンポジット推進薬の中心に埋め込んだ [18, 19, 115]. 極細熱電対には白金-白金 10 % ロジウム, 線径 $12.5 \mu\text{m}$ を使用し, アルミニウム粒子を添加した AP 系コンポジット推進薬であることを考慮して, 既往の研究より線径が大きく, 切断され難い線径を選択した [14, 116]. 本研究の温度分布の計測で, 極細熱電対の時定数は十分に小さいことを確認している (付録 D). 予め二つ割りに AP 系コンポジット推進薬を製造しておき, 極細熱電対を挟みこんで, ビニール樹脂系接着剤により接着した. 燃焼表面近傍の温度分布を計測するために使用した AP 系コンポジット推進薬を図 2.1 に示す.

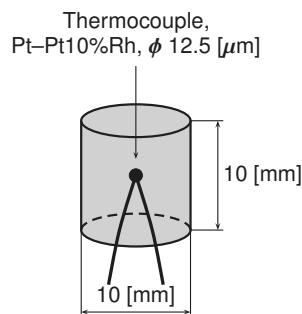


図 2.1 AP 系コンポジット推進薬 (1)

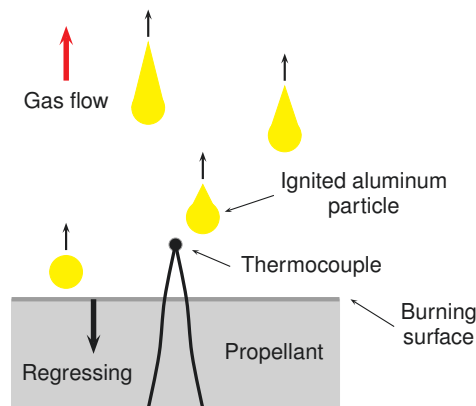


図 2.2 温度分布の計測原理

図 2.2 に極細熱電対による燃焼表面近傍の温度分布の計測原理を示す. AP 系コンポジット推進薬の燃焼が進むと, 燃焼表面は後退し, 極細熱電対が気相中に突出する. 燃焼表面が後退すると同時に, 極細熱電対の接点は燃焼表面から離れ, 燃焼表面近傍の温度分布が計測される [14]. また, 極細熱電対の付近を着火したアルミニウム粒子が通過すると, 温度分布に温度変動が出現する. 極細熱電対が着火したアルミニウム粒子または酸化

剤とバインダーの拡散火炎に接触すると高温のために熱電対は切断される。温度分布は着火したアルミニウム粒子または酸化剤とバインダーの拡散火炎に熱電対が接触し切断されるまで計測される。着火したアルミニウム粒子または酸化剤とバインダーの拡散火炎の温度は 3000 K を超え、極細熱電対の計測限界温度は 2000 K である。

AP 系コンポジット推進薬の燃焼速度を計測し、燃焼表面近傍でのアルミニウム粒子の集塊と着火の観察と集塊粒径を計測するために使用した AP 系コンポジット推進薬を図 2.3 に示す。半円筒形の AP 系コンポジット推進薬は燃焼表面近傍のアルミニウム粒子を撮影するために製造した。半円筒形とすることで燃焼表面近傍に現れるアルミニウム粒子の数が減少し適度になり、アルミニウム粒子を鮮明に撮影することが可能となる。



図 2.3 AP 系コンポジット推進薬 (2)

2.2 ストランドバーナー

固体推進薬の燃焼実験用の燃焼器をストランドバーナーと呼んでいる [3]. ストランドバーナーはステンレス製で、空気以外の気体に置換でき、計測および観察用の装置を備えている。本研究では、AP系コンポジット推進薬の燃焼実験において既にも実績 [115, 117–120] のある装置を使用した。

図 2.4 と 2.5 は本研究で使用したストランドバーナーである。燃焼速度と温度分布の計測を行うために図 2.4 の縦置き型のストランドバーナーを使用し、燃焼表面近傍のアルミニウム粒子を撮影するために図 2.5 の横置き型のストランドバーナーを使用した。実体顕微鏡と白黒高速ビデオカメラを設置するために図 2.5 のストランドバーナーは横置き型となっている。観測窓からビデオカメラまたは白黒高速ビデオカメラを使用して、AP系コンポジット推進薬の燃焼またはアルミニウム粒子の集塊と着火の様子を撮影した。AP系コンポジット推進薬の着火には線径 0.26 mm のニクロム線を使用し、AP系コンポジット推進薬の端面を加熱して着火した。燃焼実験はそれぞれの AP系コンポジット推進薬の組成において 3 から 5 回行った。

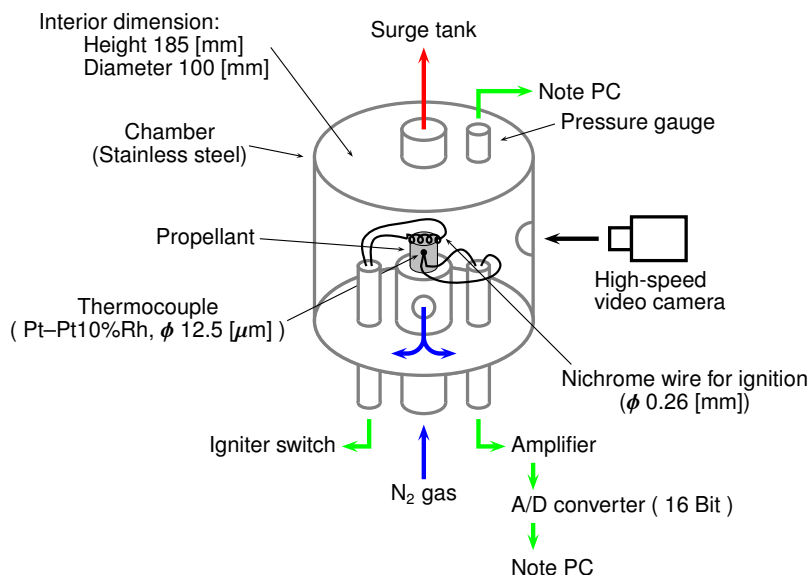


図 2.4 ストランドバーナー (1)

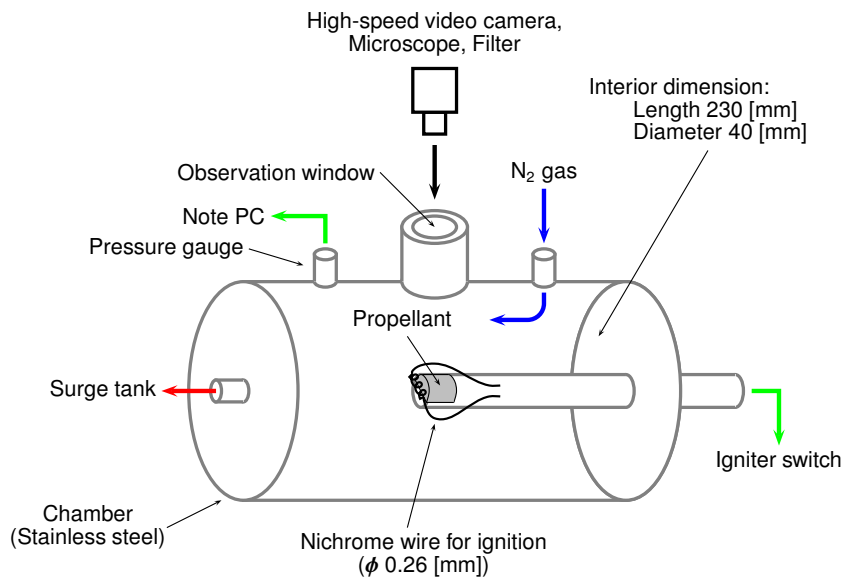


図 2.5 ストランドバーナ (2)

図 2.5 のストランドバーナーで燃焼表面近傍を観察するときには、40 倍の実体顕微鏡を介して白黒高速度ビデオカメラによって撮影し、アルミニウム粒子を鮮明に捉えるためにネガフィルムを利用した減光フィルターを観測窓に設置し輝度を調整して撮影を行った。

極細熱電対による温度分布の計測には、日本ナショナルインスツルメンツ社の LabVIEW と同社の 16 bit A/D コンバーターを使用して計測を行った。

表 2.5 に燃焼実験の条件を示す。

表 2.5 燃焼実験の条件

雰囲気ガス	窒素
温度	293 K (20 °C)
雰囲気圧力	0.1 MPa

2.3 集塊粒子回収器

AP系コンポジット推進薬の輝炎層内で集塊したアルミニウム粒子を回収するために、図2.6に示す集塊粒子回収器を使用した。集塊粒子回収器をストランドバーナー内に設置して集塊したアルミニウム粒子の回収を行った。

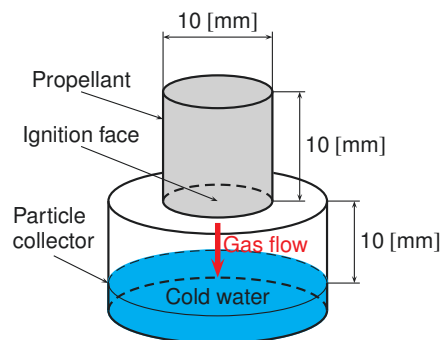


図 2.6 集塊粒子回収器

図2.6の集塊粒子回収器で輝炎層内の集塊したアルミニウム粒子を回収した。輝炎層内の集塊したアルミニウム粒子は冷却水に落下し回収することができる。AP系コンポジット推進薬の着火時の燃焼表面と冷却水面との距離は10 mmとした。AP系コンポジット推進薬が燃焼しているときに、AP系コンポジット推進薬の輝炎が水面に当たり、同時に輝炎の中の集塊したアルミニウム粒子が水中に落下し回収することができる。

冷却水の量は、落下した燃焼しているアルミニウム粒子を瞬時に冷却するのに十分であり、冷却水とアルミニウム粒子の化学反応は起こらないとした。回収された集塊したアルミニウム粒子を自然乾燥させ、走査型電子顕微鏡 (SEM) によって粒子を撮影し、撮影した画像から集塊粒径を計測した。

第 3 章

燃焼表面上でのアルミニウム粒子の 集塊と着火の観察

実体顕微鏡と白黒高速度ビデオカメラを使用して，AP 系コンポジット推進薬の燃焼表面近傍のアルミニウム粒子を撮影した．撮影条件は，フレーム・レートが 8065 から 8113 fps，露光時間が 70 から 86 μ s である．本章での図は撮影した動画からのキャプチャ画像である．なお，本章で使用した AP 系コンポジット推進薬の組成比は表 2.4 の，

AN5 Al10, AN10 Al20

Al の平均粒径: 30 μ m

である．

図 3.1 でアルミニウム粒子が集塊する様子が観察できる．図 3.1 の中に経過時間を示し，(1), (2), (3), (4), (5), (6) の順に集塊が進行する．

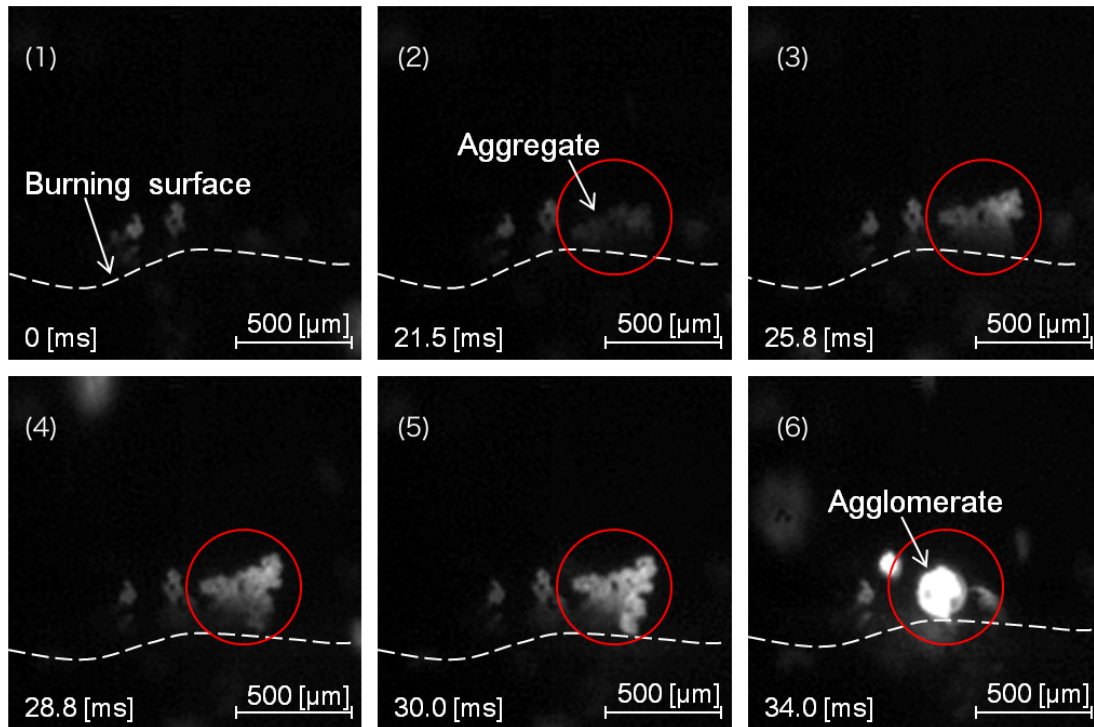
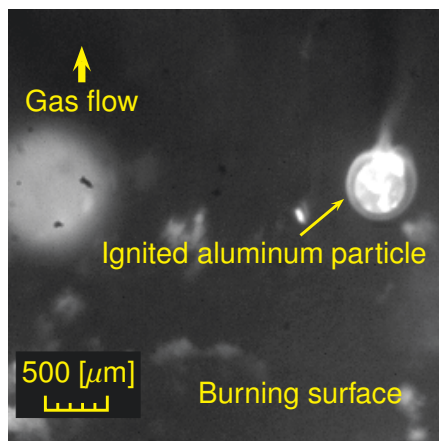


図 3.1 集塊するアルミニウム粒子

図 3.1 の (2) から (5) で加熱され白熱しているアルミニウム粒子が観察でき、アルミニウム粒子が凝集し、集塊しようとしている。固相から現れるアルミニウム粒子と燃焼表面上のアルミニウム粒子が凝集している。アルミニウム粒子が凝集している範囲は $400 \mu\text{m}$ ほどになり、燃焼表面上の広い範囲で凝集が行われている。図 3.1 の (5) では上端の一部が熔融し始め、アルミニウム粒子が熔融しながら集塊している。図 3.1 の (6) では凝集したアルミニウム粒子の全体が熔融し球状化し集塊が完了して、この直後に着火し、同時に燃焼表面を離脱する。このように燃焼表面上で熔融しながら周囲のアルミニウム粒子を取り込み球状化し集塊している。図 3.1 の (6) で集塊したアルミニウム粒子の集塊粒径は $200 \mu\text{m}$ ほどになる。図 3.1 の (1) から (6) の中で、白熱したアルミニウム粒子以外に輝炎などが見られないことから、酸化剤とバインダーの拡散火炎が形成される前または輝炎層に入る前であり、反応層内でも燃焼表面に近い比較的に低温の領域であることがわかる。アルミニウム粒子は燃焼表面上の反応層内で集塊し着火して、着火と同時に燃焼表面から離脱し燃焼ガスに流されて行く。

ここでの観察によって、第 4 章のアルミニウム粒子の反応層内での着火の裏付け、また、第 6 章の集塊のモデルの基礎とした。

図 3.2 と 3.4 で集塊し着火したアルミニウム粒子の様子が観察できる。図 3.3 は図 3.2 の着火したアルミニウム粒子の拡大図である。



Time = 0 ms

図 3.2 着火したアルミニウム粒子 (1)

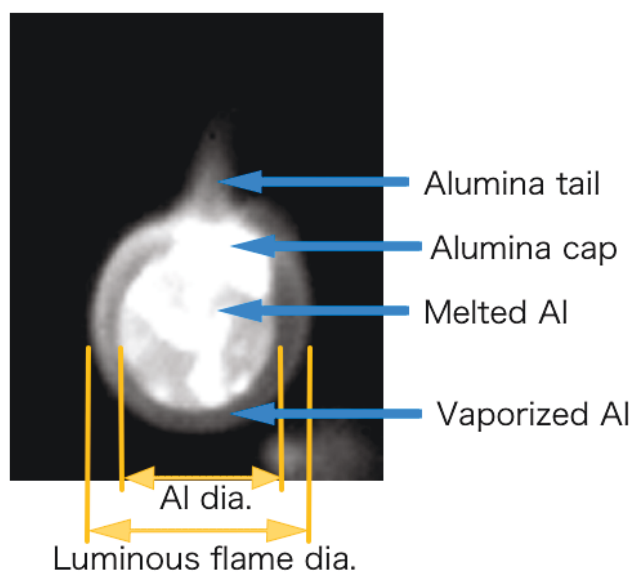
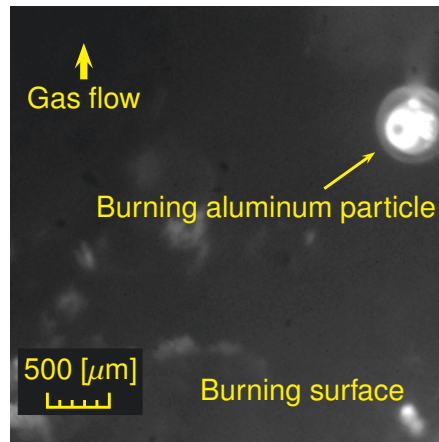


図 3.3 着火したアルミニウム粒子の拡大図



Time = +17.2 ms

図 3.4 着火したアルミニウム粒子 (2)

図 3.2 は着火直後であり中心に溶融し白熱したアルミニウム粒子が観察でき、周囲は蒸発したアルミニウムの雲に覆われ、雲はまだ薄く、着火直後の輝炎はアルミニウム粒子に接近して形成されている。図 3.2 の溶融し白熱したアルミニウム粒子の集塊粒径は $400\ \mu\text{m}$ で、周囲の蒸発したアルミニウムの雲の外周の輝炎までの輝炎径は $570\ \mu\text{m}$ となり、輝炎径は集塊粒径の 1.4 倍となる。図 3.4 では燃焼表面から離脱して燃焼が進行しており、周囲の雲は厚くなり、明るさを増した溶融し白熱したアルミニウム粒子が観察できる。図 3.4 の溶融し白熱したアルミニウム粒子の集塊粒径は $410\ \mu\text{m}$ で、輝炎までの輝炎径は $620\ \mu\text{m}$ となり、輝炎径は集塊粒径の 1.5 倍となる。アルミニウム粒子が着火直後から燃焼が進行すると、輝炎径が徐々に増加する。撮影した動画から着火したアルミニウム粒子の集塊粒径と輝炎径を計測した結果、輝炎径は集塊粒径の 1.5 から 2.0 倍付近となった (付録 F)。

図 3.5 では燃焼するアルミニウム粒子の後流にアルミナによる尾が観察できる [6]。

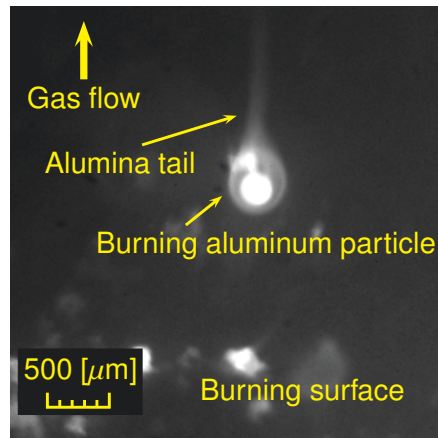


図 3.5 アルミナの尾

燃焼するアルミニウム粒子の燃焼生成物であるアルミナは輝炎層から燃焼ガスの中へ放出され、熔融し白熱しながら後流に尾を形成する。尾の温度は輝炎層の温度より低くなる [6]。この尾は細長く下流に続いている。また、アルミナの尾を動画で観察すると、アルミナの尾は細長く下流へ続き、輝炎径に対して尾の変動は非常に小さく、アルミニウム粒子の後流の変動はほとんど無いと考えられる。既往の研究では、アルミニウム粒子の周囲の流れはストークス流れに近いとされており、非常に小さなレイノルズ数のときの球の後流に近い状態と考えられ [121, 122]、上記の観察に一致する。

以上の観察と既往の研究 [6, 67] から、図 3.6 と 3.7 に着火直後と燃焼しているアルミニウム粒子のモデルを示す。

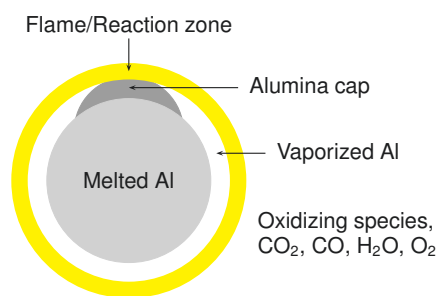


図 3.6 着火直後のアルミニウム粒子のモデル

図 3.6 は着火直後のアルミニウム粒子のモデルである。中心に熔融したアルミニウム粒子があり、周囲には蒸発したアルミニウムの雲、その外周部に輝炎層が同心円状に形成される。着火直後では、輝炎層は熔融したアルミニウム粒子に接近して形成される。アルミニウム粒子の輝炎径は集塊粒径の 1.5 倍ほどである (付録 F)。輝炎層で輝炎を発生

し、最高温度の 3000 から 4000 K となる。溶融したアルミニウム粒子の表面にアルミナ・キャップ (アルミナの塊) が付着する。

このモデルによって、第5章のモデルの基礎とした。

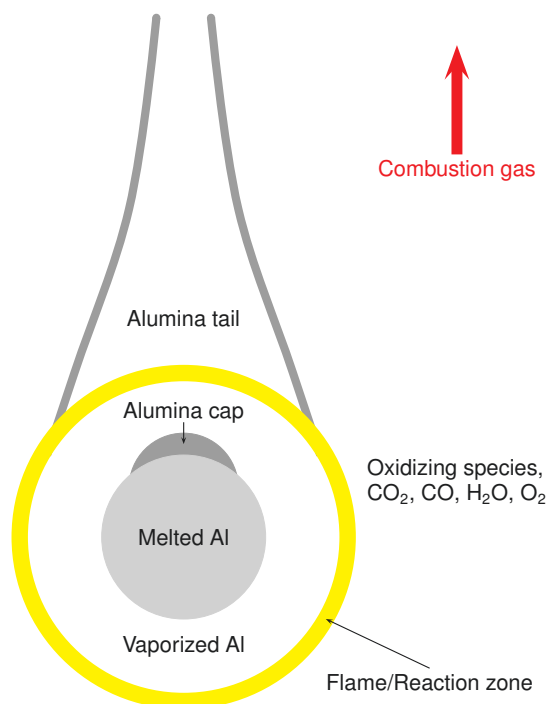


図 3.7 燃焼しているアルミニウム粒子のモデル

図 3.7 は燃焼が進行したアルミニウム粒子のモデルである。中心に溶融したアルミニウム粒子があり、粒子の周囲には蒸発したアルミニウムの雲、雲の外周部に輝炎層が形成され、下流側にアルミナの尾を引くようになる。アルミニウム粒子の燃焼が進行すると、蒸発したアルミニウムの雲の厚さが増加し、輝炎径が増加する。輝炎径は溶融したアルミニウム粒子の 2 から 4 倍となる。

第 4 章

燃焼表面近傍の反応層内の温度分布

4.1 燃焼速度

本研究では，ストランドバーナーの観測窓より AP 系コンポジット推進薬の燃焼の様子を撮影し，動画から AP 系コンポジット推進薬の燃焼時間を計測して，AP 系コンポジット推進薬の全長と燃焼時間から，燃焼速度 = (全長) / (燃焼時間) として燃焼速度を計算した。

AP 系コンポジット推進薬のそれぞれの組成の燃焼速度を表 4.1 に示す。なお，本章で使用した AP 系コンポジット推進薬の組成比は表 2.2 の，

AN10 A10, AN10 A110

Al の平均粒径: 20 μm

である。

表 4.1 燃焼速度

燃焼速度 [mm s^{-1}]	
A10	0.66
	0.66
	0.68
	平均値 : 0.67
A110	0.86
	0.98
	0.98
	平均値 : 0.94

アルミニウム粒子を添加すると燃焼速度は 40 % 増加した。燃焼速度のばらつきはアルミニウム粒子が無添加のとき (A10) には 3 %，アルミニウム粒子を添加したとき (A110) に

は14%となった。AP系コンポジット推進薬では、酸化剤とバインダーが燃焼表面近傍で拡散火炎を形成するために、燃焼表面近傍の燃焼波構造が不均質になり、アルミニウム粒子を添加することによって燃焼波構造の不均質さは増大する。燃焼表面近傍の燃焼波構造は燃焼速度に影響を与えると考えられ、表4.1の燃焼速度のばらつきは酸化剤とバインダーの拡散火炎による燃焼波構造の不均質さとアルミニウム粒子を添加した影響と考えられる [3].

4.2 燃焼表面温度

AP系コンボジット推進薬の燃焼表面では発熱的分解反応が起きており、熱分析を行い発熱温度を求めて燃焼表面温度を推定する。本研究では、示差走査熱量測定(DSC)による熱分析から燃焼表面温度を推定する。示差走査熱量測定は熱分析の一つの手法であり、試料を緩やかに昇温させ熱量と温度を時系列で計測し、試料の吸熱・発熱反応などを調べることができる。表4.2に計測条件、図4.1と4.2に計測結果を示す。

表4.2 DSCの計測条件

試料	AN10 A10, AN10 A110
アルミニウム粒子の平均粒径	20 μm
試料量	0.7 mg
雰囲気ガス	窒素
加熱速度	10 K min^{-1}

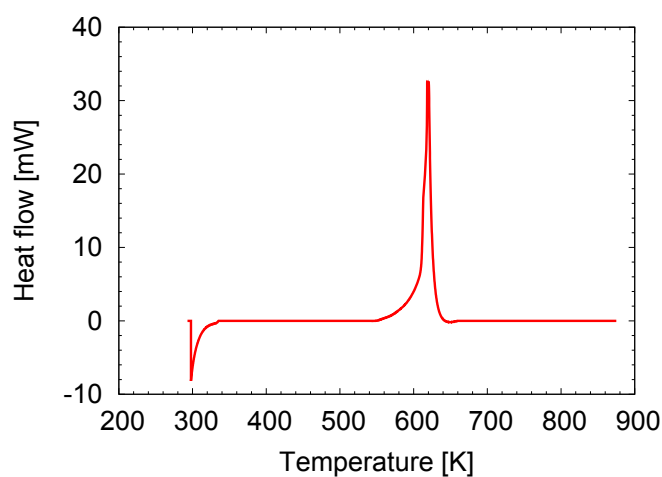


図4.1 DSC, A10

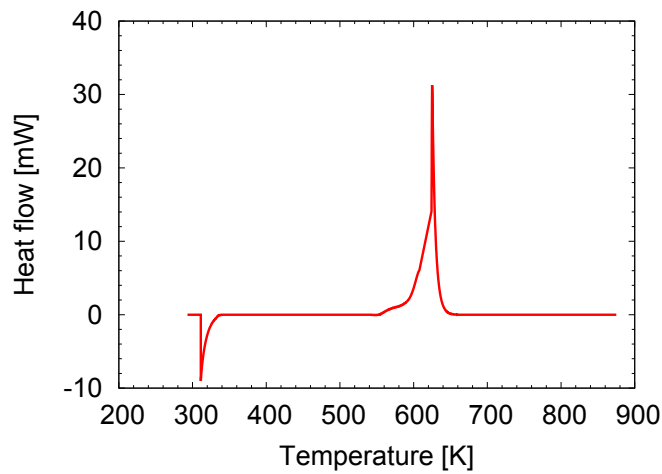


図 4.2 DSC, A110

AP系コンポジット推進薬の燃焼表面では酸化剤とバインダーの分解反応が起き発熱しており、試料の温度を上昇させて燃焼表面に近い条件にしたときに、図4.1と4.2の発熱ピーク付近で分解反応が起こっており、発熱ピーク温度が、燃焼表面温度に近いと考えられる。図4.1と4.2で、発熱ピーク温度は620 K付近であり、アルミニウム粒子の無添加・添加に関わらず発熱ピーク温度と発熱量がほぼ一致した。アルミニウムの溶融温度は930 Kであり、発熱ピーク温度の620 Kより高く、アルミニウム粒子は酸化剤とバインダーの分解反応には関わらないと考えられ、発熱ピーク温度と発熱量はほぼ一致したと考えられる。したがって、AP系コンポジット推進薬の燃焼表面でも燃焼表面温度と発熱量は、アルミニウム粒子の無添加・添加に関わらず一定とすることができ、燃焼表面温度は620 K付近と推定することができる。

4.3 燃焼表面近傍の温度分布

図 4.3 から 4.6 に燃焼表面近傍の温度分布を示す。燃焼表面は、固相から気相への温度勾配の変化と DSC の結果より決定し、 $x = 0$ は燃焼表面を示す [13, 123, 124]。同じ組成でありながら異なった温度分布を計測したのは、AP 系コンポジット推進薬の燃焼表面近傍では酸化剤とバインダーが拡散火炎を形成し、拡散火炎の発生の仕方によって燃焼表面近傍の温度分布が変化し燃焼波構造が不均質になるためであり、アルミニウム粒子を添加することによって不均質さは増加する。温度分布の計測結果では、酸化剤とバインダーの拡散火炎、着火したアルミニウム粒子による温度変動と考えられる変動より高周波の成分は除去した。

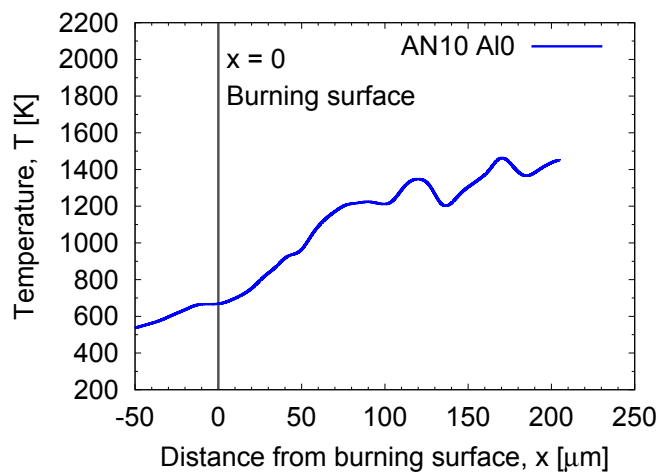


図 4.3 温度分布, AlO

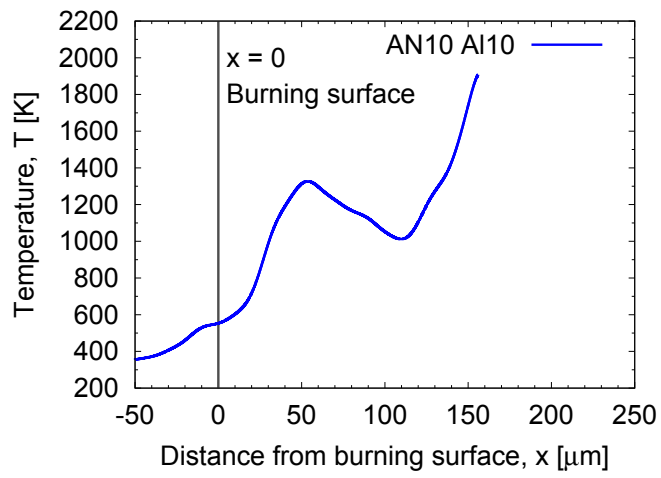


図 4.4 温度分布, Al10 (1)

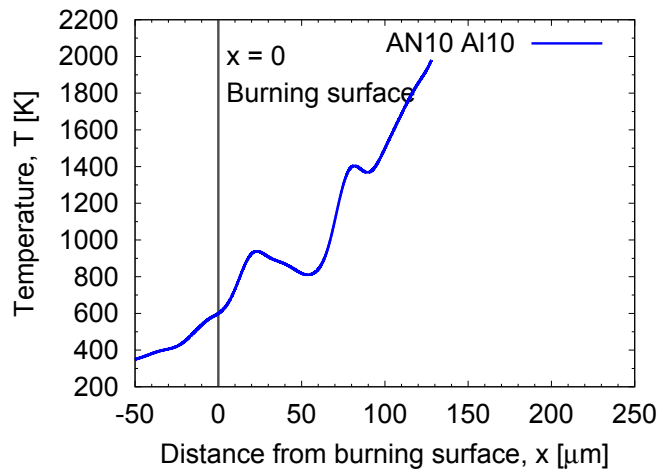


図 4.5 温度分布, Al10 (2)

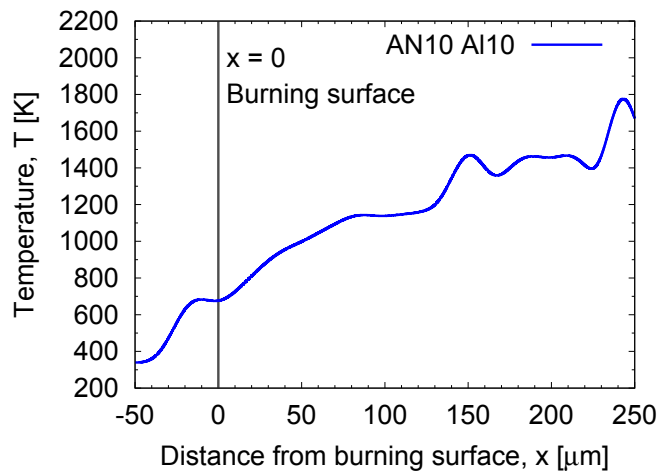


図 4.6 温度分布, Al10 (3)

図 4.3 はアルミニウム粒子が無添加の場合で、温度が緩やかに上昇し、 $x = 150 \mu\text{m}$ 付近での温度変動は酸化剤とバインダーの拡散火炎の影響と考えられる。これに対して、アルミニウム粒子を添加したときの図 4.4 と 4.5 では、着火したアルミニウム粒子による温度上昇を伴う温度変動が出現し、図 4.4 では $x = 60 \mu\text{m}$ 付近、図 4.5 では $x = 20 \mu\text{m}$ と $100 \mu\text{m}$ 付近に温度変動が出現している。反応層内でのアルミニウム粒子の着火は、第 3 章の観察で確認されている。温度変動の波長や振幅に大小の差異があるが、これは極細熱電対の付近を通過した着火したアルミニウム粒子までの距離と粒径が影響していると考えられる。図 4.4 と 4.5 で、着火したアルミニウム粒子による温度変動は燃焼表面から近い距離に出現し、上流側に他の温度変動が見られないことから、アルミニウム粒子は温度変動の付近で着火し、着火と同時に温度変動が出現したと考えられる。着火したアルミニウム粒子による温度変動は燃焼表面に接近して着火が早く、図 4.4 と 4.5 の変動の波長は 20 から $100 \mu\text{m}$ ほどであるので、この温度変動の原因となったアルミニウム粒子の粒径は比較的の小粒径と推測される。また、着火したアルミニウム粒子による温度変動の燃焼表面からの距離とピーク温度によって温度勾配が変化している。アルミニウム粒子を添加したときの図 4.6 は極細熱電対から遠方で着火したアルミニウム粒子が通過したと考えられ、アルミニウム粒子による温度変動は小さく、温度分布はアルミニウム粒子が無添加の場合に近い。図 4.4 と 4.5 では温度分布の終端付近で温度が 2000 K まで急上昇しており、別の着火したアルミニウム粒子に接触したと考えられる。図 4.4 の温度変動の前後では急激に温度が増減しているが、着火したアルミニウム粒子が付近に無い場合には図 4.6 のような温度分布になっており、図 4.6 のような温度分布に着火したアルミニウム粒子による温度変動が現れると図 4.4 のような温度分布となる。

図 4.4 から 4.6 を重ねて、図 4.7 に示す。着火したアルミニウム粒子による温度変動は

不規則に起こり，反応層内の温度分布が大きく変化し，反応層内の燃焼波構造が不均質になる原因の一つとなっている。

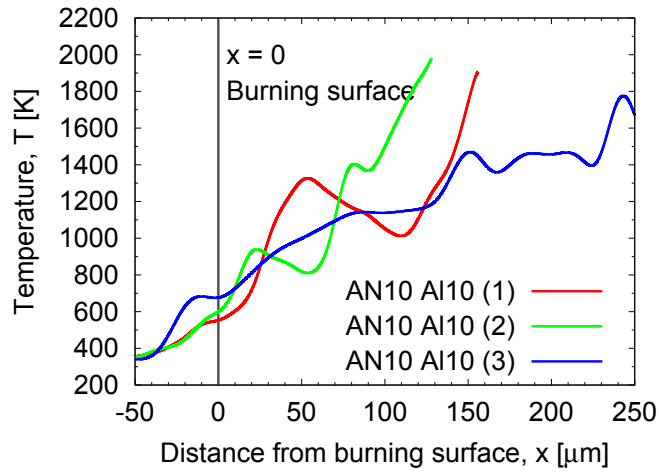


図 4.7 温度分布，Al10 (1), (2), (3)

図 4.8 から 4.11 は $x = 0$ から温度分布の終端までの温度勾配の平均値を一次近似して求めた。表 4.3 に温度勾配の比較を示す。

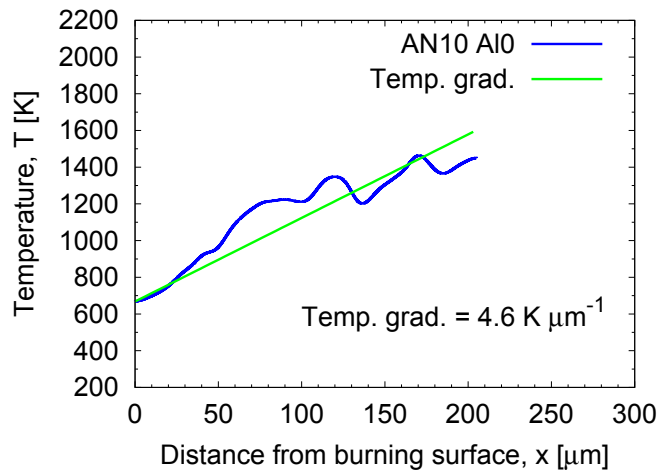


図 4.8 温度勾配，Al10

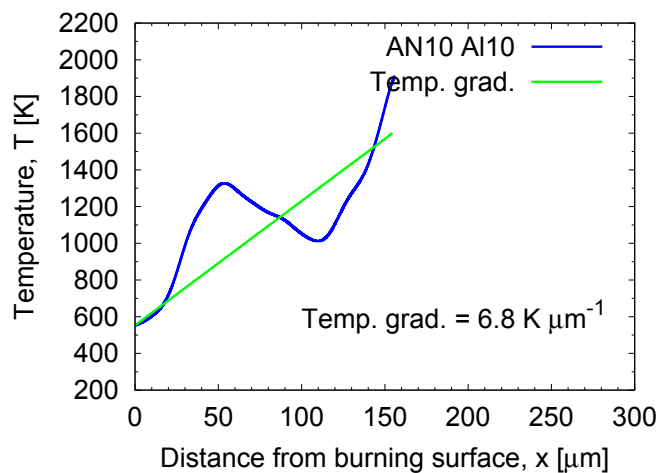


図 4.9 温度勾配, Al10 (1)

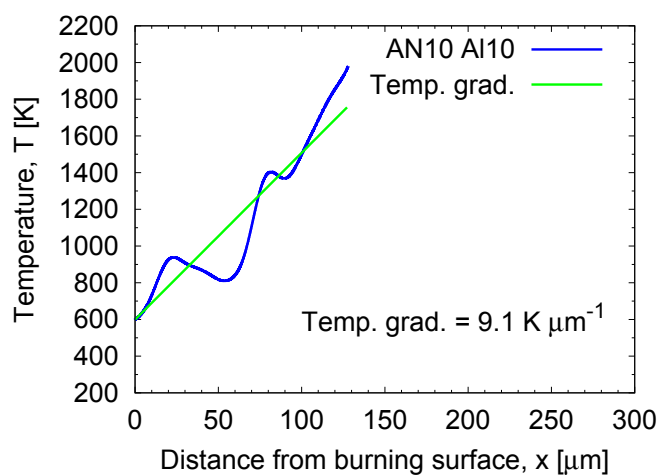


図 4.10 温度勾配, Al10 (2)

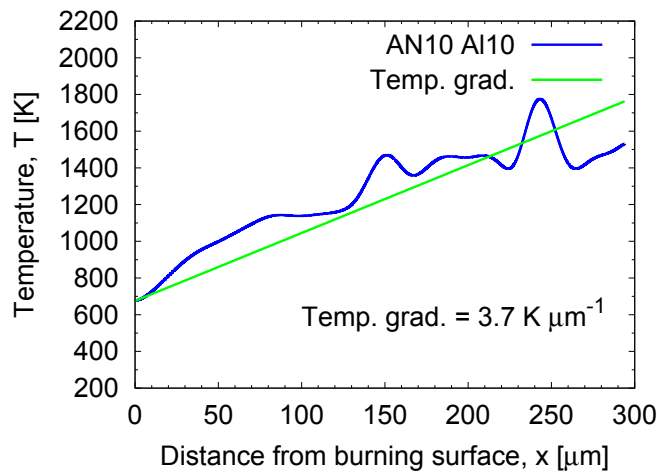


図 4.11 温度勾配, Al10 (3)

表 4.3 温度勾配

温度勾配 [$\text{K } \mu\text{m}^{-1}$]	
Al0	4.6
Al10 (1)	6.8
Al10 (2)	9.1
Al10 (3)	3.7

アルミニウム粒子を添加した Al10 (1) と (2) では、アルミニウム粒子が無添加の Al0 と比較して温度勾配が増加している。Al10 (1) と (2) では燃焼表面に接近して温度変動が出現しており、温度上昇が早く、温度勾配が増加している。また、2000 K 付近で別の着火したアルミニウム粒子に接触し、温度分布の終端付近の温度の急上昇によっても温度勾配が上昇している。Al10 (3) の場合にはアルミニウム粒子が無添加の Al0 の温度勾配に近くなっている。

表 4.4 は温度分布の中で燃焼表面に接近して出現した着火したアルミニウム粒子による温度変動の燃焼表面からの距離とピーク温度を示す。

表 4.4 燃焼表面に接近して出現した温度変動

燃焼表面からの距離 [μm]	ピーク温度 [K]	
Al10 (1)	60	1330
Al10 (2)	20	940

着火したアルミニウム粒子による温度変動が燃焼表面に接近して出現することによって燃焼表面上の気相側の温度勾配が変化するので、表 4.3 の温度勾配と合わせて、燃焼表面に接近して着火したアルミニウム粒子による温度変動の影響を比較する。着火したアルミニウム粒子による温度変動が燃焼表面に接近するほど温度勾配が増加している。着火したアルミニウム粒子による温度変動の燃焼表面からの距離は、温度変動の周辺の温度分布にも影響を与え、燃焼表面に接近するほど温度変動の周辺の温度が上昇し、温度勾配は増加する。

第 5 章

着火したアルミニウム粒子の周辺の温度分布

5.1 着火したアルミニウム粒子のモデル

アルミニウム粒子は周辺の酸化剤と拡散火炎を伴った気相燃焼を起こす。溶融したアルミニウム粒子からアルミニウムが蒸発し、アルミニウム粒子の周囲は蒸発したアルミニウムの雲に覆われ、外周部の輝炎層で拡散火炎を生じる [6]。着火直後のアルミニウム粒子では、蒸発したアルミニウムの雲は薄く、輝炎層が溶融したアルミニウム粒子に接近して形成される。アルミニウム粒子の燃焼が進行すると、蒸発したアルミニウムの雲の厚さが増加する [6]。AP 系コンポジット推進薬の燃焼ガスの中でアルミニウム粒子が着火するときには、 CO 、 CO_2 、 H_2O 、 O_2 などの酸化剤が存在する。これらの酸化剤の中でのアルミニウム粒子の燃焼実験が行われ、実験結果によると、燃焼するアルミニウム粒子の輝炎径は、中心で溶融するアルミニウム粒子の粒径の 2 から 4 倍ほどになる [16, 67, 102]。燃焼表面上にてアルミニウム粒子は集塊することが知られており、集塊したときの輝炎径は元の粒径の 10 倍ほどになることもある [18]。また、輝炎層での温度は 3000 から 4000 K ほどまで達し、温度はアルミニウム粒子の周囲の酸化剤の種類と割合によって変化する [16, 17]。

本研究では、燃焼表面近傍の反応層内でアルミニウム粒子が着火したときに輝炎層までを粒子と考え、これを熱源として燃焼ガスの中での粒子の周辺の温度分布をコンピュータ・シミュレーションにより求めた。粒子の表面が高温になっており、動作流体を介して、粒子の周辺の温度分布が変化する。燃焼表面や粒子からの熱放射の影響は考慮していない。図 5.1 に、コンピュータ・シミュレーションでの着火したアルミニウム粒子のモデルを示す。第 3 章の図 3.6 のように、燃焼表面近傍でアルミニウム粒子は着火直後であるとし、輝炎層はアルミニウム粒子の表面に接近して形成され、輝炎層の温度は着火直後で

あるので既往の研究報告の最低温度とする。このモデルは第3章で観察された結果を基礎としている。

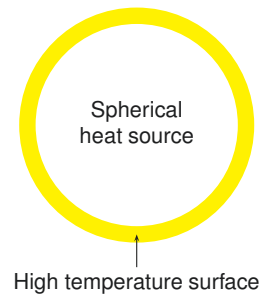


図 5.1 コンピュータ・シミュレーションでの着火したアルミニウム粒子のモデル

5.2 計算条件

燃焼表面近傍で着火したアルミニウム粒子の周辺には、アルミニウム粒子を熱源とする温度分布が形成される。本研究ではアルミニウム粒子の着火とほぼ同時に温度分布が形成されるとした。アルミニウム粒子の周辺に温度分布が形成されるまでの時間は非常に短く、燃焼表面の直近での現象とし、周辺の燃焼ガス流に対してアルミニウム粒子はほぼ静止している状態とした。本研究では、燃焼表面近傍での燃焼ガスと着火したアルミニウム粒子のモデルを単純化し、着火したアルミニウム粒子の周辺の温度分布を求めた。燃焼ガスを単一高温ガスとし、着火したアルミニウム粒子を球体で表面が高温の熱源として、熱源の粒子から熱伝導と熱伝達によって粒子の周辺のガスの温度が変化し、粒子が燃焼表面から一定の距離にあるときのコンピュータ・シミュレーションを行った [125–127]。

燃焼表面近傍でのアルミニウム粒子の集塊と着火の観察から、着火直後のアルミニウム粒子の輝炎径は集塊粒径の1.5倍ほどとなる(付録F)。燃焼表面近傍の温度分布で計測された温度変動の原因となるアルミニウム粒子は燃焼表面に接近して着火しており、比較的に小粒径と考えられる。コンピュータ・シミュレーションでの粒径は輝炎層までを含むものとし、着火直後で蒸発したアルミニウムの雲は非常に薄く、輝炎径はアルミニウム粒子の粒径の1.5倍とし、燃焼実験で添加したアルミニウム粒子の平均粒径の $20\ \mu\text{m}$ の1.5倍の $30\ \mu\text{m}$ とした(付録F)。アルミニウム粒子の表面温度は着火直後では比較的に低温と考えられ、燃焼時の下限温度とし、既往の研究結果より $3000\ \text{K}$ とした [16,17]。初期条件と流入条件には、燃焼実験の温度分布からの燃焼表面温度と理論計算からのガスの速度を与えた。動作流体は燃焼ガスの成分の一つで、燃焼ガスの平均分子量に近い窒素(N_2)とした。アルミニウム粒子の燃焼モデルでは周囲を輝炎層で被われていると考えており、輝炎層では酸化剤や燃焼生成物が流入または流出しており、輝炎層の表面での摩擦は小さいと考え、粒子の表面の境界条件は滑り条件とした。コンピュータ・シミュレーションでは化学反応と燃焼生成物は考慮していない。表5.1に計算条件を示す。

表 5.1 計算条件

粒子の粒径, D_b	$20 \times 1.5 = 30 \mu\text{m}$
粒子の表面温度	3000 K
初期条件・流入条件	0.1 MPa 14 m s^{-1} 600 K
動作流体	窒素
初期時間間隔	$1 \times 10^{-15} \text{ s}$
計算時間	$5 \times 10^{-4} \text{ s}$
時間間隔調整法	runTimeModifiable
時間間隔調整条件	maxCo = 0.2

ここで、燃焼表面近傍の燃焼ガスの速度は質量保存則から式 5.1 のようになる。

$$U = r \frac{\rho_p}{\rho_g} \quad (5.1)$$

表 5.2 に示す通り、第 4 章の実験結果と理論計算から、燃焼表面近傍の燃焼ガスの速度が得られ、計算条件のガスの速度とした。

表 5.2 燃焼ガスの速度

燃焼速度 $r [\text{mm s}^{-1}]$	固相の密度 $\rho_p [\text{kg m}^{-3}]$	気相の密度 $\rho_g [\text{kg m}^{-3}]$	燃焼ガスの速度 $U [\text{m s}^{-1}]$
0.9	1748	0.1122	14.0

図 5.2 に計算領域を示す。粒子の燃焼表面からの距離は、第 4 章の燃焼実験の温度分布に出現した着火したアルミニウム粒子による温度変動の位置から決定した。表 5.3 にメッシュ分割数と格子数を示す。

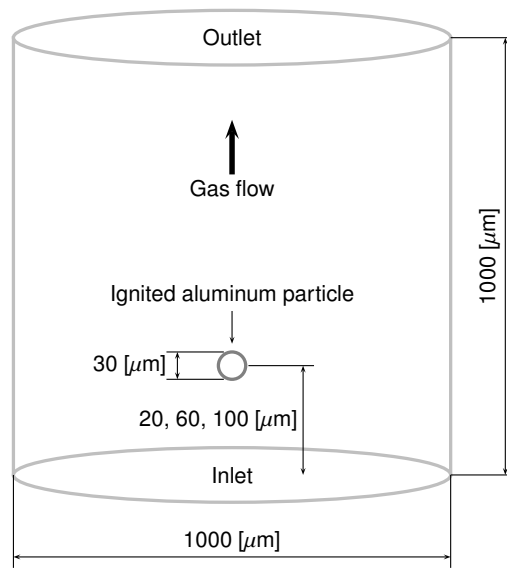


図 5.2 計算領域

表 5.3 メッシュ分割数と格子数

Inlet	520
Particle surface	620
Outlet	173
Total cells	105399

5.3 計算環境

コンピュータ・シミュレーションでは CFD ツールである OpenFOAM^{*1}を使用し、これに含まれる熱流体ソルバの“reactingFoam”を使用した。これはオープンソース・ソフトウェアであり、有償ソフトウェアに迫るまたは優る性能を持ち、近年、注目されている CFD ツールである。流体工学および熱工学の分野で利用され、近年、OpenFOAM を利用した研究が多く報告されている。

有限体積法による流体解析を行ない、PISO 法と SIMPLE 法を組み合わせた PIMPLE 法によるソルバーを使用している。熱解析には PaSR モデルを使用している。OpenFOAM に実装されるソルバーには大学などで研究開発されたものが多く、reactingFoam はスウェーデンの Chalmers University of Technology の Golovitchev ら [128] によって開発された。

また、メッシュ生成には SALOME^{*2}を使用した。本研究では NETGEN アルゴリズムによる 3次元四面体の非構造メッシュによりメッシュを生成した。NETGEN アルゴリズムにはメッシュの最適化を行うプロセスも含まれる。

コンピュータ・シミュレーションを行う上で、計算領域の広さとメッシュの間隔は、複数の試験的なメッシュを用意し、これらのコンピュータ・シミュレーションの結果を比較検討し、計算結果へのメッシュによる影響が無いことを確認している。その他、コンピュータ・シミュレーションに関するパラメータは、複数の試験的なシミュレーションを行った結果、最適な値を選択した。また、流体ソルバーは、既往の研究でも行われている同様な手法により [106]、球体の風洞実験の結果との比較を行ない、計算結果の妥当性を確認した (付録 E)。

*1 Open source CFD toolbox, OpenCFD Ltd., UK.

*2 Open source software for pre- and post-processing, Open CASCADE, France.

5.4 着火したアルミニウム粒子の周辺の温度分布

図 5.3, 5.5, 5.7 に粒子の中心を通る平面の温度分布を示す。下部の灰色の部分が燃焼表面である。図の中でガスは下部の燃焼表面から垂直に上部へ向かって流れている。図 5.4, 5.6, 5.8 は粒子の側面を通るガス流の方向の温度分布であり、粒子の中心から粒径 (D_b) の 0.5 から 3 倍離れたガス流方向の温度分布を示している。粒子の燃焼表面からの距離を $x = 100, 60, 20 \mu\text{m}$ と変化させたときのコンピュータ・シミュレーションの結果を示す。

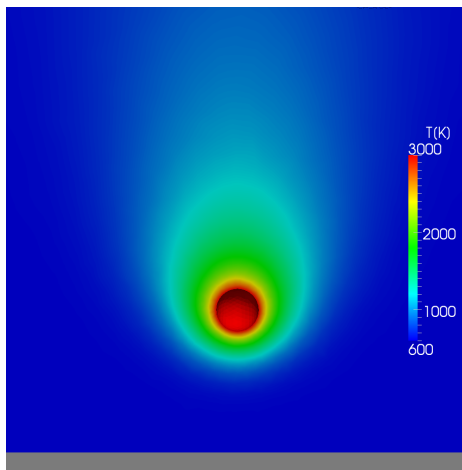


図 5.3 温度分布 (a), 燃焼表面から $x = 100 \mu\text{m}$

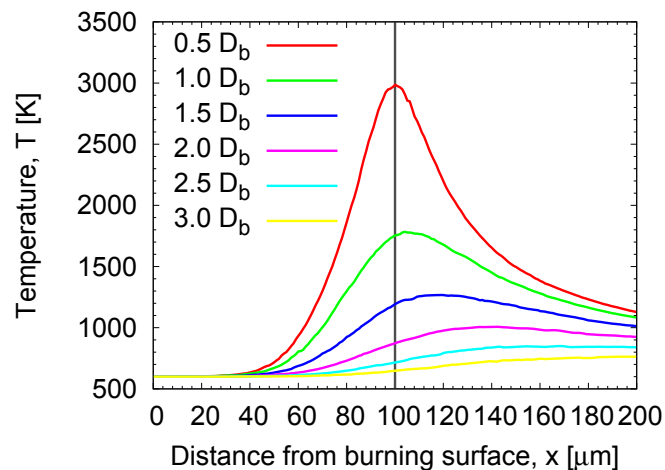


図 5.4 温度分布 (b), 燃焼表面から $x = 100 \mu\text{m}$

図 5.3 のように粒子の周辺には高温領域が形成される。2000 から 3000 K ほどの高温領域が流線形に広がっている。高温領域は粒子の上流から下流に広がり、粒子の下流で高温領域が増加している。高温領域は 0.01 ms ほどで形成され、粒子の周辺のガスの流れに比較して温度の伝播は非常に早く、着火と同時に粒子の周辺の温度が急上昇しており、粒子の周辺のガスを介して主に熱伝導によって温度が上昇していると考えられる。また、粒子の周辺の高温領域で形状の変化や変動は、粒子の粒径に対して非常に小さい。レイノルズ数は 8 で非常に小さく、粒子の周辺はストークス流れに近い状態となっており、速度の変動は非常に小さく、温度の変動も小さくなったと考えられる。

図 5.4 のように粒子の側面の温度分布は、粒子に接近するほどピーク温度が上昇し、粒子から離れると温度分布は平坦になる。また、下流側は上流側より広く高温に保たれることがわかる。第 4 章の燃焼実験で計測された温度分布に出現した着火したアルミニウム粒子による温度変動は、粒子の周辺の高温領域の一部を計測し、極細熱電対の付近に着火したアルミニウム粒子が出現し、非常に短い滞留時間で温度分布に痕跡を残したと考えら

れる。

図 5.5 と 5.7 は粒子を燃焼表面に接近させた場合であり，図 5.3 との比較を行う。図 5.6 と 5.8 は粒子の側面の温度分布である。

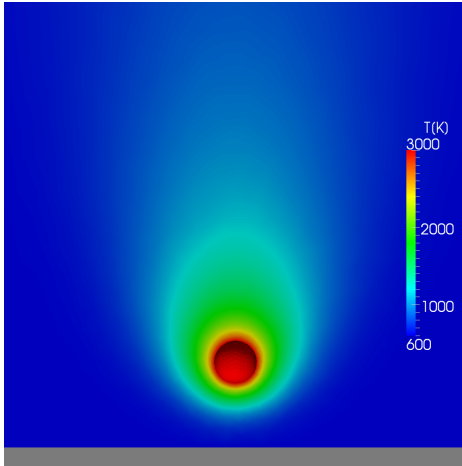


図 5.5 温度分布 (a)，燃焼表面から $x = 60 \mu\text{m}$

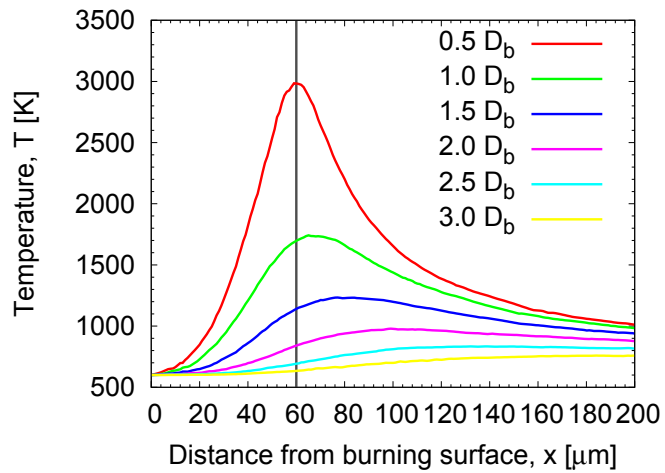


図 5.6 温度分布 (b)，燃焼表面から $x = 60 \mu\text{m}$

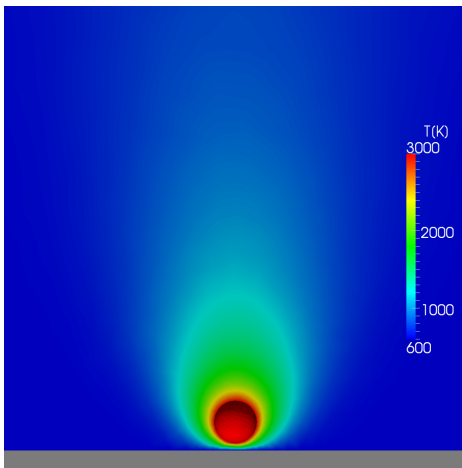


図 5.7 温度分布 (a)，燃焼表面から $x = 20 \mu\text{m}$

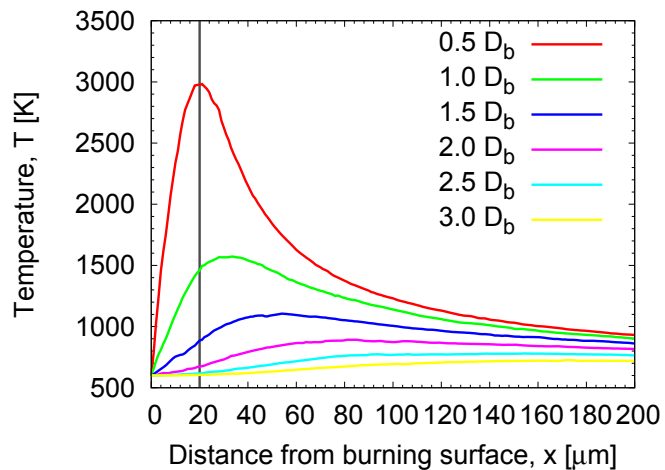


図 5.8 温度分布 (b)，燃焼表面から $x = 20 \mu\text{m}$

粒子を燃焼表面に接近させると，上流の高温領域が減少し，側面と下流の高温領域も減少する。ガスは上流から下流にかけて，粒子の周辺の高温領域に沿って，温度が上昇しながら流れるので，上流の高温領域が減少すると下流の高温領域も減少する。

図 5.6 と 5.8 のように，粒子が燃焼表面に接近するほど，燃焼表面上の温度勾配が増加する。また，粒子が燃焼表面に接近すると，粒子の上流の温度勾配が増加する。

図 5.9 に粒子の中心から $0.5 D_b$ 離れたところの温度分布の比較を示す。

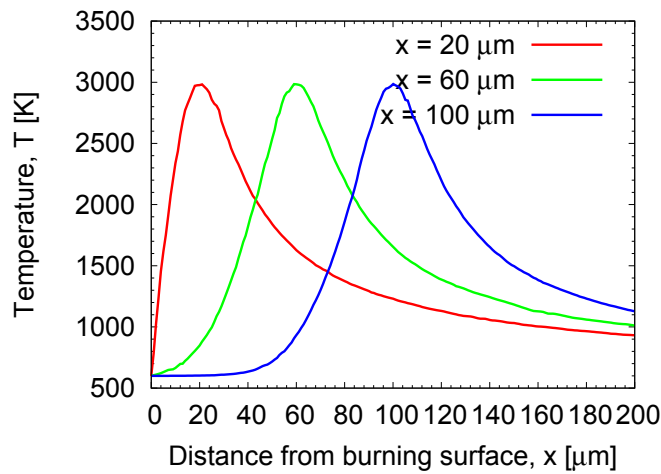


図 5.9 燃焼表面上の温度勾配の比較

粒子が燃焼表面に接近するほど，燃焼表面上の温度勾配が増加している．第4章の燃焼実験の温度分布と同様な傾向である．粒子の燃焼表面からの距離が $x = 100 \mu\text{m}$ の場合には，反応層内の温度は上昇するが，粒子が燃焼表面から離れているので燃焼表面上の温度勾配は増加しない．

図 5.10 と 5.11 に燃焼速度の違いによる高温領域の比較を示す．同じ組成の AP 系コンポジット推進薬で，雰囲気圧力を 1 MPa まで上昇させることにより燃焼速度を増加させ，その実験結果からコンピュータ・シミュレーションした結果である．燃焼表面からの粒子の距離は $x = 100 \mu\text{m}$ とした．表 5.4 と 5.5 に計算条件を示す．

表 5.4 計算条件 (1)

粒子の粒径, D_b	$20 \times 1.5 = 30 \mu\text{m}$
粒子の表面温度	3000 K
初期条件・流入条件	0.1 MPa 14 m s^{-1} 600 K
動作流体	窒素
レイノルズ数	8

表 5.5 計算条件 (2)

粒子の粒径, D_b	$20 \times 1.5 = 30 \mu\text{m}$
粒子の表面温度	3000 K
初期条件・流入条件	1 MPa 6 m s^{-1} 600 K
動作流体	窒素
レイノルズ数	35

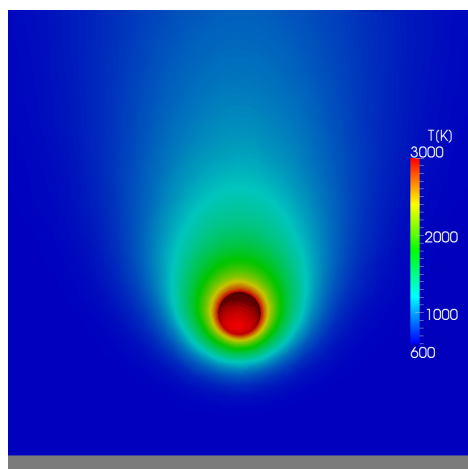


図 5.10 温度分布, 0.1 MPa, $r = 1.0 \text{ mm s}^{-1}$,
 $Re = 8$

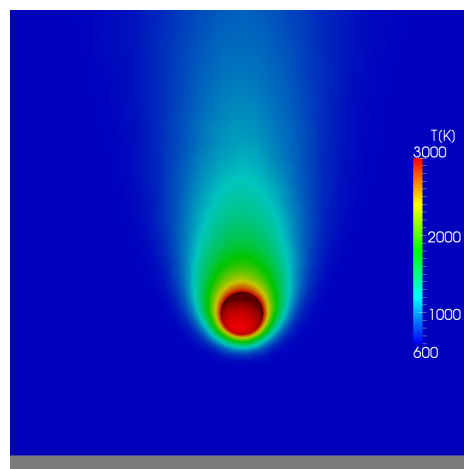


図 5.11 温度分布, 1.0 MPa, $r = 3.5 \text{ mm s}^{-1}$,
 $Re = 35$

雰囲気圧力が上昇し燃焼速度が増加すると、粒子の周辺の高温領域は減少し、高温領域は主に下流側に集中するようになる。図 5.10 の場合のレイノルズ数は 8 で、図 5.11 の場合は 35 である。レイノルズ数の変化によって、粒子の周辺のガス流の変化が高温領域に影響を与えており、レイノルズ数が大きくなるほど高温領域が減少することを示している。

コンピュータ・シミュレーションの結果から、燃焼表面近傍の反応層内で高温の熱源である粒子の周辺で形成される高温領域は粒径の 3 から 4 倍の範囲で広がり、粒子の周辺のガスの温度を急上昇させる。粒子が燃焼表面に接近するほど、燃焼表面上の温度勾配は増加する。また、燃焼速度が増加した場合にはレイノルズ数が増加し、粒子の周辺の高温領域は減少する。

5.5 燃焼表面近傍の反応層内の温度分布と着火したアルミニウム粒子による温度変動

図 5.12 は第 4 章の燃焼実験で得られた燃焼表面近傍の反応層内の温度分布である。図 5.12 のように燃焼表面近傍の反応層内の温度分布の $x = 60 \mu\text{m}$ 付近に出現した着火したアルミニウム粒子による温度変動は、波長が $100 \mu\text{m}$ 、ピーク温度が 1300 K ほどである。

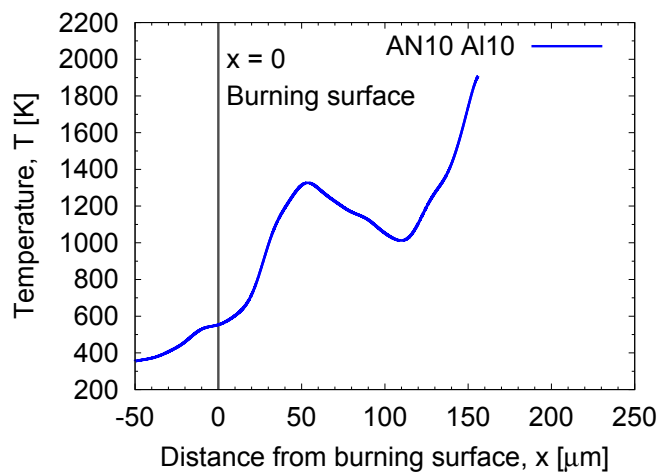
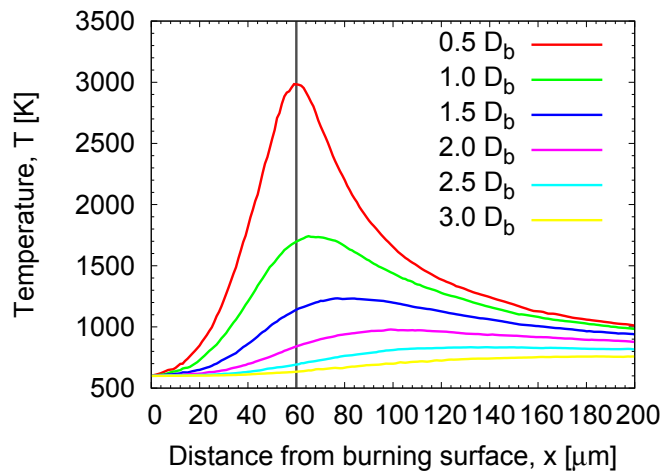


図 5.12 温度分布, Al10 (1)

図 5.12 の温度変動は、コンピュータ・シミュレーションによる図 5.13 の温度分布の中で、粒子の中心から 1.0 から $1.5 D_b$ 離れた温度分布に近い波長とピーク温度となっている。

図 5.13 温度分布 (b), 燃焼表面から $x = 60 \mu\text{m}$

燃焼表面近傍の反応層内の温度分布に出現した着火したアルミニウム粒子による温度変動は、極細熱電対の付近を通過するアルミニウム粒子の粒径と極細熱電対からの距離によって温度変動の波長とピーク温度が変化すると考えられる。コンピュータ・シミュレーションによる着火したアルミニウム粒子の周辺の温度分布と、燃焼表面近傍の反応層内の温度分布に出現した着火したアルミニウム粒子による温度変動とは近い形状をしている。

第 6 章

集塊したアルミニウム粒子の集塊粒径と集塊範囲

6.1 燃焼速度

雰囲気圧力を一定としたときに、酸化剤の AP と AN の組成比を変化させることによって燃焼速度を変化させ、アルミニウム粒子の組成比も変化させた。

図 6.1 に AN とアルミニウム粒子の組成比を変化させたときの燃焼速度を示す。なお、本章で使用した AP 系コンポジット推進薬の組成比は表 2.4 の、

AN0 Al5, AN0 Al10, AN0 Al20

AN5 Al5, AN5 Al10, AN5 Al20

AN10 Al5, AN10 Al10, AN10 Al20

Al の平均粒径: 30 μm

である。

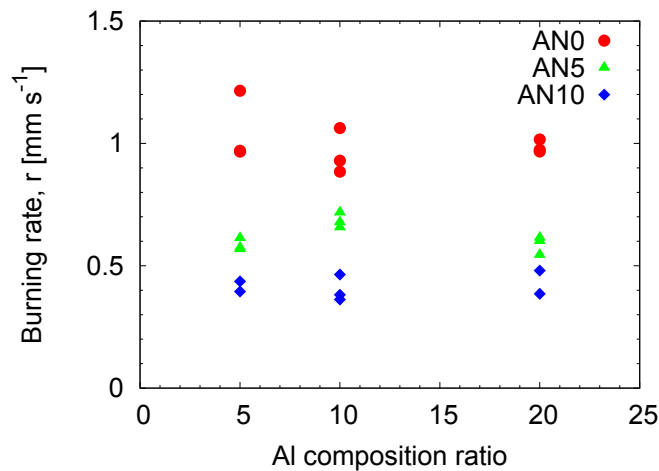


図 6.1 燃焼速度

図 6.1 のように、酸化剤の AP と AN の組成比を変化させ燃焼速度を変化させたときに、AN を増加させると、燃焼速度は 1.0 から 0.4 mm s^{-1} まで減少し、それぞれの AN の組成比による燃焼速度の平均値は AN0 のときに 1.0 mm s^{-1} 、AN5 のときに 0.6 mm s^{-1} 、AN10 のときに 0.4 mm s^{-1} となった。AN を増加させると燃焼速度は減少するが、アルミニウム粒子の組成比を変化させても燃焼速度の変化は小さく、本章の AP 系コンポジット推進薬の組成と粒径では、アルミニウム粒子の組成比の変化が燃焼速度に与える影響は小さい。燃焼速度のばらつきは、酸化剤とバインダーの拡散火炎による燃焼波構造の不均質さの影響を受けていると考えられる。燃焼速度は燃焼表面近傍の熱平衡によって決定されるが [3, 12]、本章で使用した平均粒径が $30 \mu\text{m}$ のアルミニウム粒子は組成比を変化させても燃焼表面近傍の熱平衡に与える影響は小さく、燃焼速度の変化が小さくなったと考えられる。

6.2 アルミニウム粒子の集塊粒径

AP系コンポジット推進薬の燃焼中に、燃焼表面近傍の反応層内で集塊しているアルミニウム粒子を白黒高速カメラで撮影し、動画から集塊粒径を計測した。撮影条件はフレーム・レートが8113 fps、露光時間が70 μs である。このときの動画の解像度は14 μm である。集塊したアルミニウム粒子の集塊粒径は数100 μm となるので解像度は十分に小さいと考えられる。それぞれの組成のAP系コンポジット推進薬で動画から焦点が合い輪郭が鮮明になっている50個のアルミニウム粒子の集塊粒径を計測した。図6.2から6.4にANの組成比を変化させ、燃焼速度を変化させたときのアルミニウム粒子の集塊粒径を示す。それぞれの図の中でアルミニウム粒子の組成比も変化させている。“Initial Al”はAP系コンポジット推進薬に添加する前の元のアルミニウム粒子の粒度分布であり、図中の破線は平均値を示す。

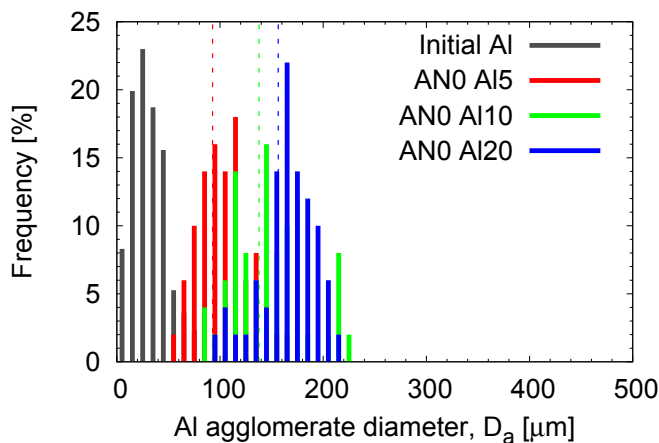


図6.2 アルミニウム粒子の集塊粒径, AN0

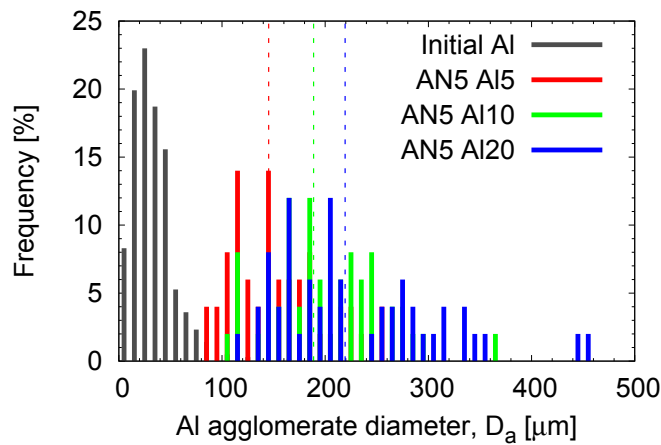


図 6.3 アルミニウム粒子の集塊粒径, AN5

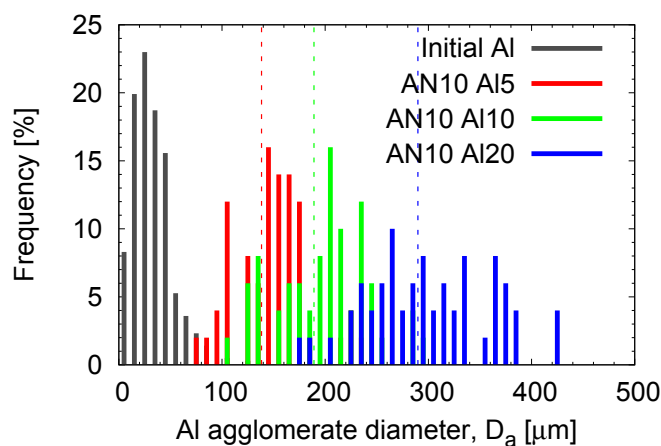


図 6.4 アルミニウム粒子の集塊粒径, AN10

アルミニウム粒子の集塊粒径は 50 から 400 μm となり，AN を増加させ燃焼速度が減少すると集塊粒径は増加し，アルミニウム粒子の増加によっても集塊粒径は増加している．集塊粒径のばらつきは，アルミニウム粒子の元の粒度分布と酸化剤とバインダーの拡散火炎による燃焼波構造の不均質さの影響を受けていると考えられる．全ての AP 系コンポジット推進薬の組成で，添加前の元のアルミニウム粒子の粒径と比較して集塊粒径が増加しており，AP 系コンポジット推進薬に添加したアルミニウム粒子が集塊していることが確認できる．AN を増加させ燃焼速度が減少すると，アルミニウム粒子の集塊粒径の分布が広がる傾向になっており，燃焼速度が減少したときには集塊粒径の不均一さが増加する．

図 6.5 に AN の組成比を変化させたときの Al2O₃ の集塊粒径, 図 6.6 に, 図 6.2 から 6.4 の集塊粒径の平均値を示す.

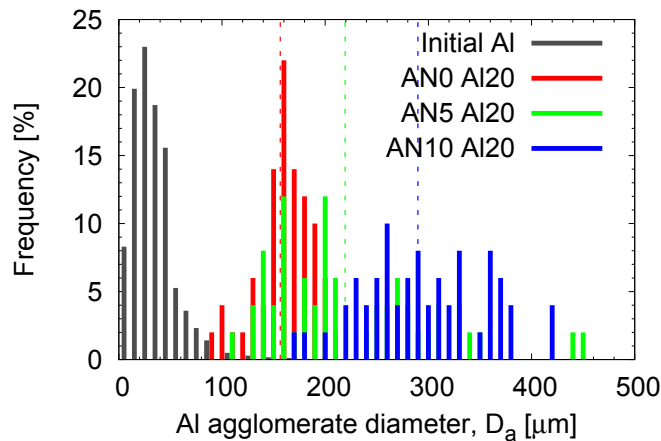


図 6.5 アルミニウム粒子の集塊粒径, Al2O₃

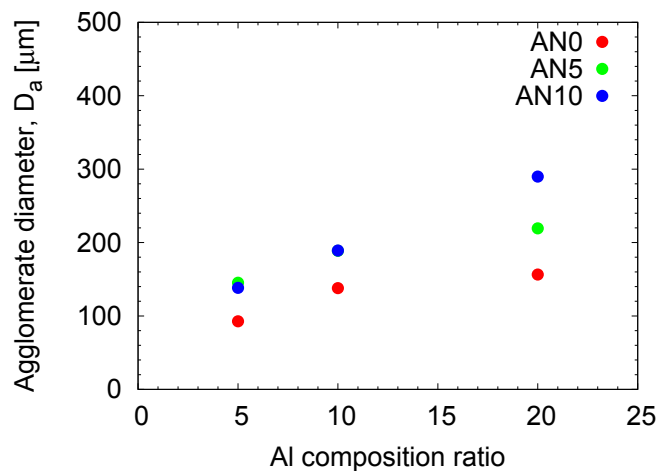


図 6.6 アルミニウム粒子の集塊粒径の平均値, AN0, AN5, AN10

アルミニウム粒子は燃焼表面上で凝集し, アルミニウム粒子の溶融温度の 930 K を超える温度層に接触し集塊が始まる. アルミニウム粒子が全て溶融し, 反応層内の酸化剤とバインダーによる拡散火炎付近のアルミニウム粒子の着火温度の 2300 K を超える温度層に接触すると着火する [6]. アルミニウム粒子の集塊の機構には燃焼表面近傍の反応層内の温度分布が影響しており, AN の組成比を変化させると燃焼速度が変化し, 燃焼表面近傍の反応層内の温度分布が変化することによって, アルミニウム粒子の集塊粒径が変化すると考えられる. アルミニウム粒子の組成比が増加したときには, 燃焼表面上のアルミニウ

ム粒子が増加するので集塊粒径も増加する。

図 6.7 に集塊粒子回収器を使用して、輝炎層から回収したアルミニウム粒子の集塊粒径を示す。

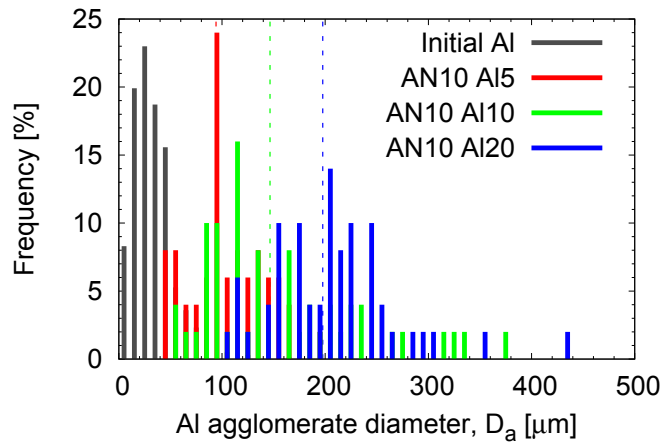


図 6.7 輝炎層から回収したアルミニウム粒子の集塊粒径, AN10

図 6.7 は図 6.4 よりやや集塊粒径が小さくなっているが、分布範囲の大部分は重なっている。このことから、動画から計測したアルミニウム粒子の集塊粒径は、解像度等の影響は小さく、精度良く計測できていることが確認できる。

図 6.8 は図 6.6 に図 6.7 の集塊粒径の平均値を追加した図である。“movie”は動画でのアルミニウム粒子の集塊粒径，“collect”は輝炎層から回収したアルミニウム粒子の集塊粒径を計測したことを示す。

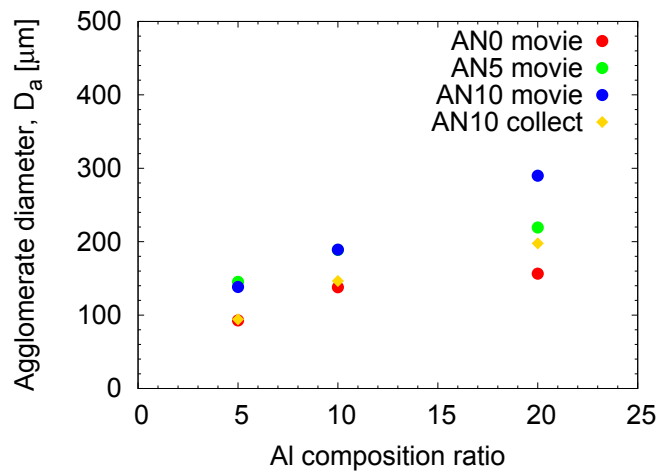


図 6.8 アルミニウム粒子の集塊粒径の平均値, AN0, AN5, AN10

アルミニウム粒子の集塊粒径は反応層内と輝炎層内では、増加傾向は一致するが、反応層内で計測したアルミニウム粒子の集塊粒径に比べて、輝炎層内で回収したアルミニウム粒子の集塊粒径は40から100 μm ほど減少している。3000 K を超える高温の輝炎層内で集塊したアルミニウム粒子の燃焼が進行したために粒径が減少したと考えられる。距離10 mm ほどの輝炎層内においてもアルミニウム粒子の燃焼が進行し集塊粒径が減少していることから、反応層内での集塊を観察することが重要であることが解る。

6.3 アルミニウム粒子の集塊範囲

アルミニウム粒子の集塊の機構を解明するために、ここで代表長さである集塊範囲を定義する。集塊範囲とは、アルミニウム粒子が AP 系コンポジット推進薬の燃焼表面近傍で集塊前に分布していた領域を示す代表長さである。図 6.9 は AP 系コンポジット推進薬が燃焼しているときに、燃焼表面の後退と共にアルミニウム粒子が集塊する機構をモデル化したものである。このモデルは第3章で観察された結果を基礎としている。

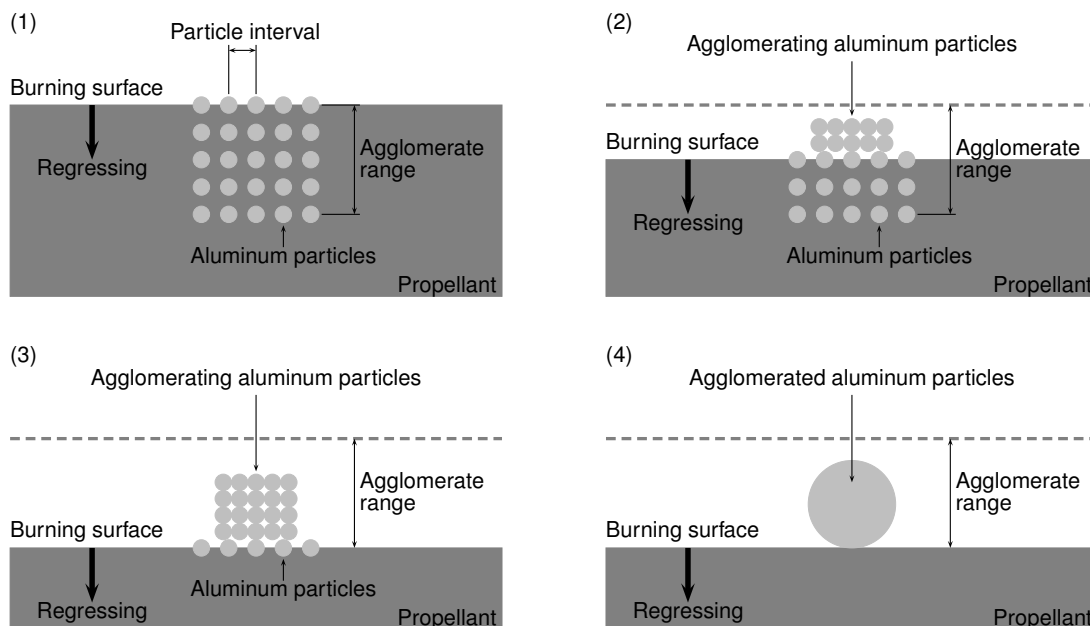


図 6.9 アルミニウム粒子の集塊の機構のモデル

図 6.9 では集塊する前にアルミニウム粒子が分布していた領域を立方体と仮定した。(1), (2), (3), (4) の順で、燃焼表面の後退と同時に、アルミニウム粒子が燃焼表面上で凝集し、溶融しながら集塊が行われる。(4) のように、アルミニウム粒子の全体が溶融し、燃焼表面上で球状の液滴になって集塊が完成する。第3章で観察されたように、燃焼表面の後退と同時に、固相から燃焼表面上に出現するアルミニウム粒子と燃焼表面上のアルミニウム粒子が凝集を行うので、集塊前にアルミニウム粒子が分布していた領域は立方体と仮定できる。

集塊前にアルミニウム粒子は平均粒子間隔で AP 系コンポジット推進薬内の燃焼表面近傍に分布していたとし、アルミニウム粒子の平均粒子間隔は AP 系コンポジット推進薬の組成と粒径から単純立方格子として理論的に計算した。表 6.1 にそれぞれの組成の AP 系コンポジット推進薬でのアルミニウム粒子の平均粒子間隔を示す。

表 6.1 アルミニウム粒子の平均粒子間隔

	アルミニウム粒子の平均粒子間隔, I_{Al} [μm]		
	Al5	Al10	Al20
AN0	77.2	61.9	50.1
AN5	77.4	62.0	50.2
AN10	77.5	62.2	50.3

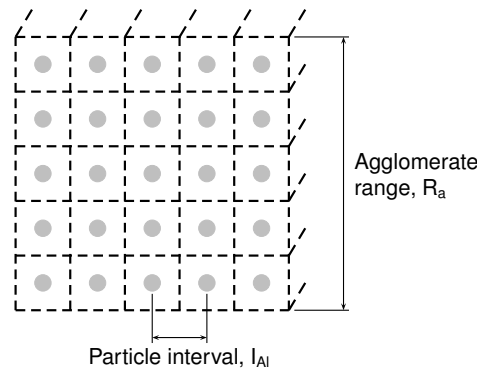


図 6.10 集塊前にアルミニウム粒子が分布していた領域

集塊範囲 R_a を求めるには、次の様に計算した。アルミニウム粒子の集塊粒径から、集塊したアルミニウム粒子に含まれる元の粒径のアルミニウム粒子の個数 N を求める。集塊したアルミニウム粒子と集塊前のアルミニウム粒子の体積比から個数を求め、集塊前のアルミニウム粒子の粒径は元の平均粒径の $30 \mu\text{m}$ とした。図 6.10 のように、ここで求めた個数のアルミニウム粒子が平均粒子間隔 I_{Al} で分布していたとして、式 6.1 のように、その分布領域の全体積を求め、その体積の 3 乗根を集塊範囲とした。集塊範囲は立方体の 1 辺の長さであり、アルミニウム粒子が分布する領域の平均的な代表長さとなる。

$$R_a = (N \times I_{Al}^3)^{1/3} \quad (6.1)$$

図 6.11 から 6.13 に AN の組成比を変化させたときのアルミニウム粒子の集塊範囲を示す。図中の破線は平均値である。

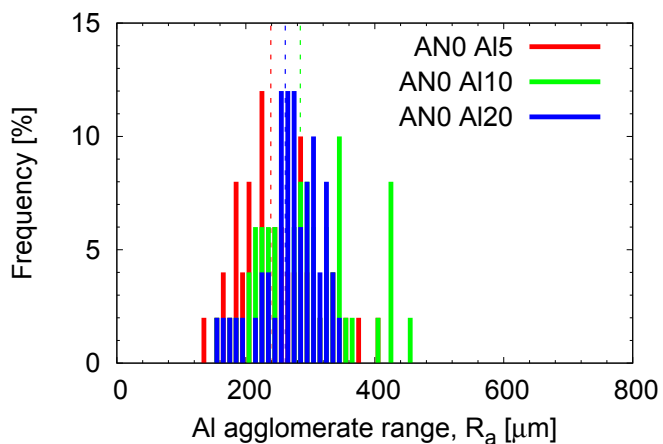


図 6.11 アルミニウム粒子の集塊範囲, AN0

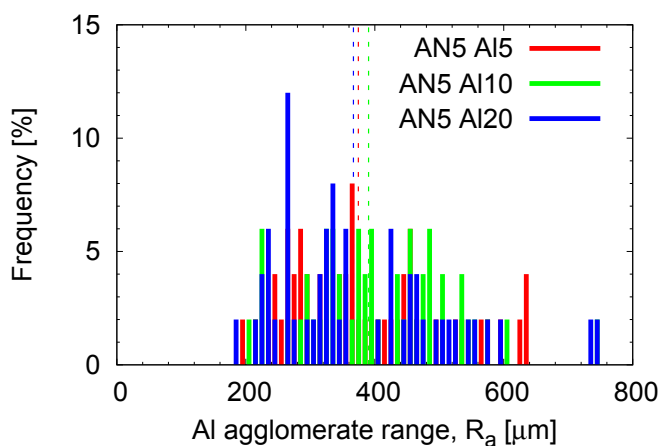


図 6.12 アルミニウム粒子の集塊範囲, AN5

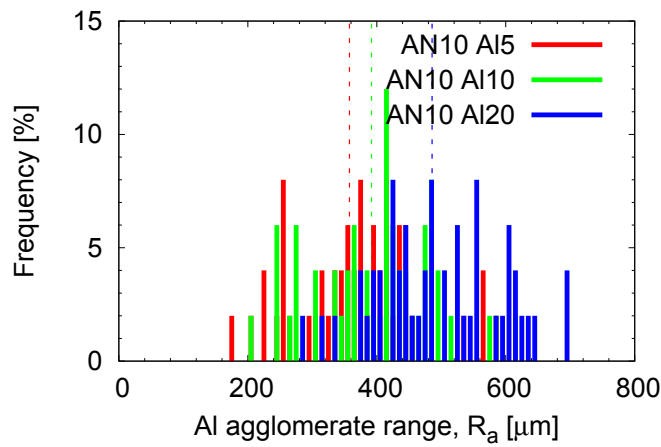


図 6.13 アルミニウム粒子の集塊範囲, AN10

アルミニウム粒子の組成比に関わらず、集塊範囲はほぼ重なった。AN を増加させ燃焼速度が減少すると、集塊範囲は増加している。集塊範囲のばらつきは、酸化剤とバインダーの拡散火炎による燃焼波構造の不均質さの影響を受けていると考えられる。

図 6.14 に AN の組成比を変化させたときの AI20 の集塊範囲、図 6.15 は図 6.11 から 6.13 の平均値である。

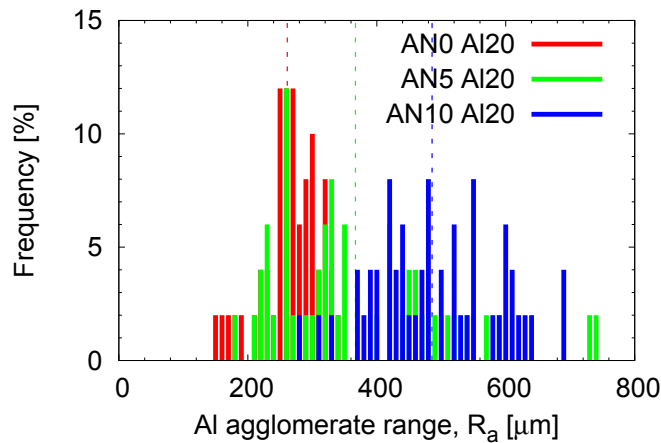


図 6.14 アルミニウム粒子の集塊範囲, AI20

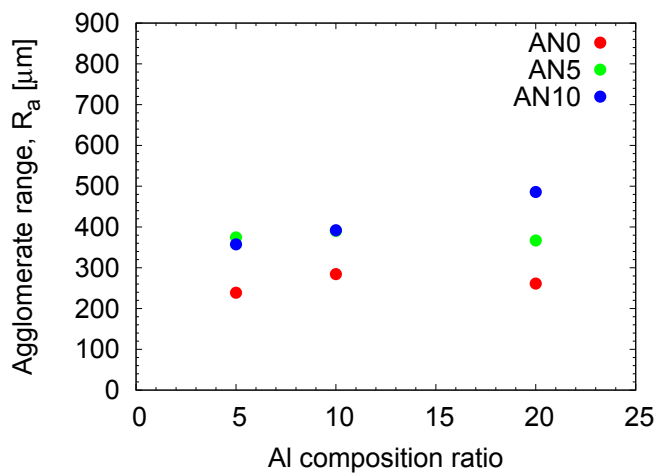


図 6.15 アルミニウム粒子の集塊範囲の平均値, AN0, AN5, AN10

本研究では、アルミニウム粒子の組成比の変化に対して集塊範囲はほぼ一定となり、集塊範囲は燃焼速度の影響を受けている。ANの組成比を変化させ燃焼速度が変化したときには、燃焼表面近傍の反応層内の温度分布も変化し、集塊範囲は反応層内の温度分布の影響を受けており、集塊範囲を決める主要因は反応層内の温度分布と考えられる。

第 7 章

考察

7.1 着火したアルミニウム粒子の燃焼表面近傍の反応層内の温度分布への影響

AP 系コンポジット推進薬にアルミニウム粒子を添加したときに、燃焼表面近傍の温度分布に着火したアルミニウム粒子による温度変動が出現した。着火したアルミニウム粒子による温度変動により、燃焼表面近傍の反応層内の温度が上昇し、反応層内の温度勾配が増加した。着火したアルミニウム粒子による温度変動が燃焼表面に接近して出現するほど、反応層内の温度勾配は増加した。

着火したアルミニウム粒子を球体の高温の熱源としてコンピュータ・シミュレーションしたときに、粒子の周辺の温度分布から、粒子の周辺には流線形の高温領域がガスを介して主に熱伝導によって瞬時に形成され、高温領域は粒径の 3 から 4 倍になった。粒子の側面を通る温度分布は、燃焼実験で計測した温度分布に出現した着火したアルミニウム粒子による温度変動と近い形状をしており、AP 系コンポジット推進薬の燃焼ガス流の中で着火したアルミニウム粒子によって高温領域が同様に形成されていると考えられる。粒子が燃焼表面に接近して高温領域を形成すると周辺の温度が上昇することによって温度勾配が増加しており、燃焼実験による温度分布と同様な傾向となった。

着火したアルミニウム粒子の周辺には燃焼ガスを介して主に熱伝導によって流線形の高温領域が形成され、アルミニウム粒子の輝炎径の 3 から 4 倍の大きさとなり、アルミニウム粒子の周辺の燃焼ガスの温度を上昇させる。燃焼表面近傍の反応層内でアルミニウム粒子が着火すると、アルミニウム粒子の周辺の燃焼ガスの温度が上昇し、反応層内の温度が上昇することにより温度勾配も増加する。燃焼表面に接近してアルミニウム粒子が着火することにより、反応層内の温度勾配はさらに増加する。

ここで、燃焼表面近傍の反応層内の温度勾配の変化が燃焼速度へ与える影響を検証する。図 7.1 は AP 系コンポジット推進薬の燃焼表面近傍の平均的な温度分布を示してい

る [3, 12].

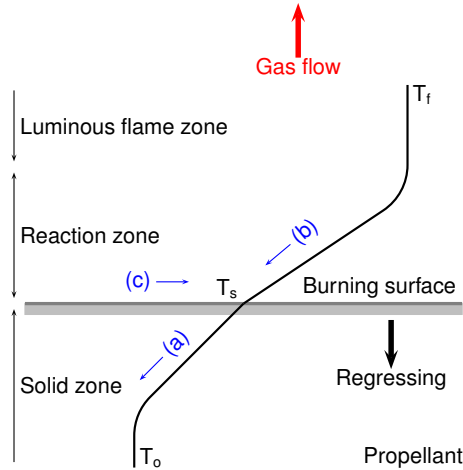


図 7.1 燃焼表面近傍の温度分布 (1)

燃焼表面近傍の反応層内の温度分布の影響を解析するために、燃焼表面近傍の熱平衡から燃焼速度の式を導出する [3, 12].

固相でのエネルギー式は次のように表せる。ここで、 T は温度、 x は燃焼表面からの距離である。

$$\lambda_p(d^2T/dx^2)_{sp} - \rho_p r c_p(dT/dx) = 0 \quad (7.1)$$

固相での境界条件は次のようになる。

$$\begin{aligned} T &= T_0 & \text{at } x &= -\infty \\ T &= T_s & \text{at } x &= 0 \end{aligned}$$

定常で燃焼しているときに r は定数であり、 λ_p 、 ρ_p 、 c_p も定数とできるので、燃焼表面より固相内への熱移動量は次ようになる。

$$\lambda_p(dT/dx)_{sp} = \rho_p r c_p(T_s - T_0) \quad (7.2)$$

図 7.1 で燃焼表面近傍での熱量は次のようになる。

- (a) 燃焼表面から固相への熱移動量 $\rho_p r c_p(T_s - T_0)$
- (b) 気相から燃焼表面への熱移動量 $\lambda_g(dT/dx)_{sg}$
- (c) 燃焼表面での発生熱量 $\rho_p r Q_s$

(a), (b), (c) から燃焼表面近傍における熱平衡は次のように表せる。

$$\rho_p r c_p (T_s - T_o) = \lambda_g (dT/dx)_{sg} + \rho_p r Q_s \quad (7.3)$$

式 7.3 より燃焼速度 r は次のようになる。

$$r = \frac{\lambda_g (dT/dx)_{sg}}{\rho_p c_p (T_s - T_o - Q_s/c_p)} \quad (7.4)$$

式 7.4 から燃焼速度は燃焼表面近傍での熱平衡により決定されることが解る。

アルミニウム粒子を添加した AP 系コンポジット推進薬では、 $(dT/dx)_{sg}$ と比較して λ_g , ρ_p , c_p の変化は非常に小さく、ほぼ定数とすることができ、初期条件が一定であるとき T_o も定数となる [3, 12]. DSC と温度分布の結果より T_s , Q_s もほぼ定数とすることができ、燃焼速度 r は燃焼表面上の気相側の温度勾配 $(dT/dx)_{sg}$ によって変化することが解る。図 7.2 の破線のように、燃焼表面近傍の反応層内の温度が上昇し、燃焼表面上の温度勾配が増加することにより、燃焼表面への熱の流入量が増加し、さらに、輝炎層の温度も上昇することによって燃焼速度が増加する。

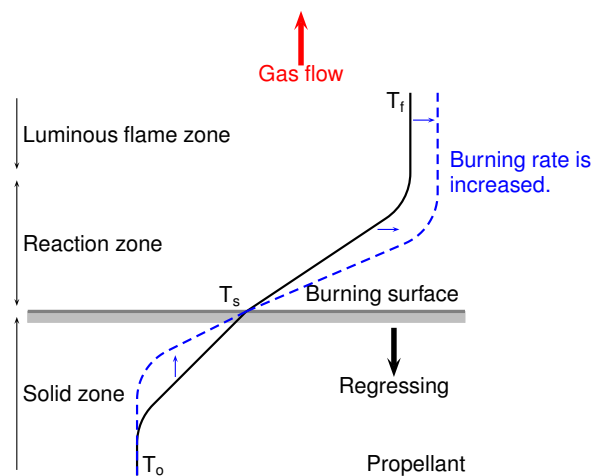


図 7.2 燃焼表面近傍の温度分布 (2)

燃焼表面近傍の反応層内で着火したアルミニウム粒子は反応層内での滞留時間は非常に短いですが、燃焼ガスを介して主に熱伝導によって瞬時にアルミニウム粒子の周辺の反応層内の燃焼ガスの温度を上昇させ、燃焼表面近傍の温度勾配を増加させる。さらに、アルミニウム粒子は輝炎層まで燃焼し続け、輝炎層の温度も上昇させる。

アルミニウム粒子を添加した AP 系コンポジット推進薬では、アルミニウム粒子が燃焼表面近傍の反応層内で着火することにより、反応層内の温度が上昇し温度勾配も増加し、

燃焼速度が増加する。また、燃焼表面の直近で着火するアルミニウム粒子が多く出現するほど反応層内の温度勾配は増加し燃焼速度は増加すると考えられる。

このように、燃焼表面近傍の反応層内でアルミニウム粒子が着火すると、それは燃焼速度が変化する要因の一つとなる。

7.2 アルミニウム粒子の集塊と燃焼表面近傍の反応層内の温度分布との関係

雰囲気圧力を一定としたときに、酸化剤の AP と AN の組成比を変化させ燃焼速度を変化させて、燃焼表面近傍の反応層内でアルミニウム粒子の集塊粒径を計測した。AN を増加させたときに燃焼速度は減少し、アルミニウム粒子の集塊粒径と集塊範囲は増加した。

燃焼速度が変化したときには燃焼表面近傍の反応層内の温度分布も変化するので [3]、アルミニウム粒子の集塊の機構には燃焼表面近傍の反応層内の温度分布が影響していると考えられ、アルミニウム粒子が着火に至るまでの反応層内の温度分布との関係を求める。

図 7.3 のように、AP 系コンポジット推進薬の燃焼表面近傍の反応層は、I 層の酸化剤とバインダーの分解ガスの拡散と混合が行われる無反応領域と、II 層の酸化剤とバインダーの化学反応が行われる発熱反応領域に分けることができる [3]。I 層では II 層からの熱伝導によって温度が上昇し、II 層では酸化剤とバインダーの拡散火炎が形成され火炎温度まで上昇する。

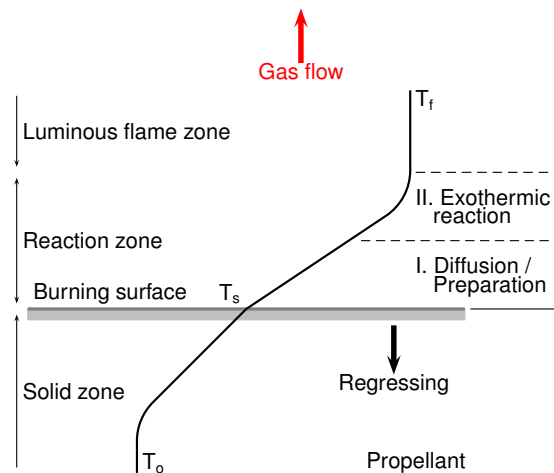


図 7.3 燃焼表面近傍の反応層内の燃焼波構造

図 7.4 のように、燃焼表面上でアルミニウム粒子の凝集が進行すると、凝集した一部がアルミニウム粒子の溶融温度の 930 K を超える温度層に接触し、アルミニウム粒子が溶融し始める [6]。アルミニウム粒子の凝集と溶融が進み、集塊が進行すると、集塊したアルミニウム粒子の一部がアルミニウム粒子の着火温度の 2300 K を超える温度層と接触し、集塊が完了し着火し、着火すると同時に燃焼表面から離脱する [6, 50]。このようにアルミニウム粒子の集塊は、燃焼表面近傍の反応層内で行われ、主にアルミニウム粒子の着火温

度の 2300 K より低い温度の図 7.3 の I 層で行われると考えられる。

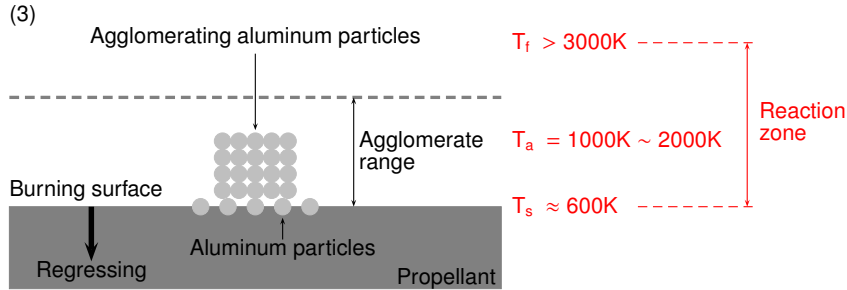


図 7.4 アルミニウム粒子の集塊と反応層内の温度分布

燃焼表面近傍の熱平衡から導出した燃焼速度の式を用いて，反応層内の温度分布と集塊範囲との関係を求める。

燃焼速度 r は式 7.4 から式 7.5 のように表すことができる。

$$r = \frac{\lambda_g(dT/dx)_{sg}}{\rho_p c_p (T_s - T_o - Q_s/c_p)} = \alpha_g \lambda_g (dT/dx)_{sg} \quad (7.5)$$

$$\alpha_g = \frac{1}{\rho_p c_p (T_s - T_o - Q_s/c_p)} \quad (7.6)$$

α_g は AP 系コンポジット推進薬の組成によって決まる定数である。アルミニウム粒子の集塊は主に図 7.3 の I 層で行われると考えられ，無反応領域であることから I 層内の温度勾配は一次近似することができる。燃焼表面上の気相側の温度勾配 $(dT/dx)_{sg}$ と集塊範囲内の平均温度勾配 $(\Delta T/\Delta x)_{sg-a}$ の関係は式 7.7 のようになる。

$$(dT/dx)_{sg} = (\Delta T/\Delta x)_{sg-a} \quad (7.7)$$

式 7.5 と 7.7 からアルミニウム粒子の集塊範囲 R_a は式 7.9 のようになる。

$$\Delta x_{sg-a} = R_a \quad (7.8)$$

$$R_a = \frac{\alpha_g \lambda_g \Delta T_{sg-a}}{r} \quad (7.9)$$

$\alpha_g \lambda_g \Delta T_{sg-a}$ は反応層内の熱拡散率に相当する。アルミニウム粒子の集塊範囲は，反応層内の熱拡散率と燃焼速度の比によって表すことができる。

AP系コンジット推進薬の固相から燃焼表面では酸化剤とバインダーの物理的な構造は不均質であるので、燃焼表面から分解ガスが噴出したときに反応層内での分解ガスの拡散と混合が変化し、酸化剤とバインダーの拡散火炎も変化するので、燃焼表面近傍の反応層内の $\alpha_g \lambda_g \Delta T_{sg-a}$ は影響を受けて変化すると考えられる。また、 ΔT_{sg-a} に比較して、 α_g と λ_g の変化は小さく定数とすることができるときには、集塊範囲 R_a は集塊範囲内の温度分布 ΔT_{sg-a} と燃焼速度 r の比によって決定される。

図7.5で、燃焼速度 r が減少したときには反応層内の温度勾配が減少し、反応層の厚さ δ_g が増加し、同時に集塊範囲 R_a は増加する。本研究では、アルミニウム粒子の集塊範囲は100から700 μm ほどの範囲で変化しており、図7.3のI層も同様に変化していると考えられる。

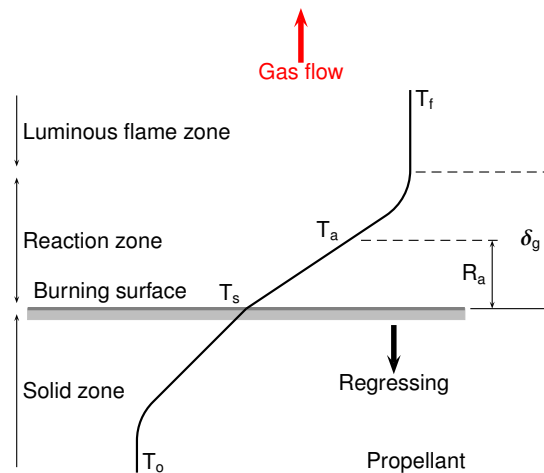


図7.5 アルミニウム粒子の集塊範囲と反応層内の温度分布

ANを増加させ燃焼速度が減少したときに集塊範囲は増加した。ANを増加させたときには、燃焼速度 r に比較して反応層内の $\alpha_g \lambda_g \Delta T_{sg-a}$ の変化は小さく、主に燃焼速度 r が減少したことによって集塊範囲 R_a が増加したと考えられる。

このように、アルミニウム粒子の集塊粒径は燃焼表面近傍の反応層内の温度分布の影響を受け、反応層内の温度分布と燃焼速度によってアルミニウム粒子の集塊範囲が決定される。

本研究の実験結果から $\alpha_g \lambda_g \Delta T_{sg-a}$ を求める。式7.9は式7.10のように表すことができる。

$$rR_a = \alpha_g \lambda_g \Delta T_{sg-a} \quad (7.10)$$

実験結果から燃焼速度 r と集塊範囲 R_a が得られており、 rR_a を計算すると図7.6のよ

うになる。

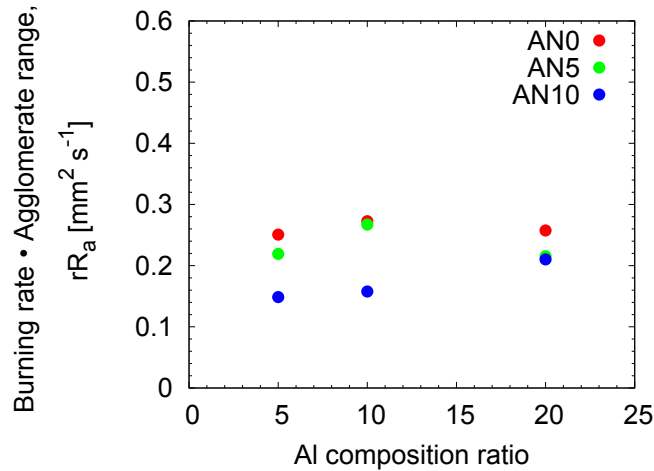


図 7.6 アルミニウム粒子の集塊範囲と燃焼速度, AN0, AN5, AN10

図 7.6 のように rR_a が得られ、反応層内の $\alpha_g \lambda_g \Delta T_{sg-a}$ を求めることができる。反応層内の $\alpha_g \lambda_g \Delta T_{sg-a}$ はそれぞれの AP 系コンポジット推進薬の組成によって決まり、図 7.6 の平均値は表 7.1 のように得られる。

表 7.1 反応層内の $\alpha_g \lambda_g \Delta T_{sg-a}$

	$\alpha_g \lambda_g \Delta T_{sg-a} [mm^2 s^{-1}]$
AN0	0.26
AN5	0.23
AN10	0.17

このように、AP 系コンポジット推進薬の反応層内の $\alpha_g \lambda_g \Delta T_{sg-a}$ の平均値は、アルミニウム粒子の集塊範囲と燃焼速度のそれぞれの平均値から求めることができる。AN0 と AN5 は近い反応層内の $\alpha_g \lambda_g \Delta T_{sg-a}$ を示しているが、AN10 は AN が増加した分だけ $\alpha_g \lambda_g \Delta T_{sg-a}$ が減少し、AN の組成比の影響が現れていると考えられる。

第 8 章

結論

燃焼実験とコンピュータ・シミュレーションにより，アルミニウム粒子を添加した AP 系コンポジット推進薬において，燃焼表面近傍の反応層内でアルミニウム粒子が着火したときに反応層内の温度分布へ与える影響と，アルミニウム粒子が燃焼表面近傍の反応層内で集塊するときの機構と反応層内の温度分布との関係を解明することができた。

燃焼表面近傍の反応層内でアルミニウム粒子は着火し，反応層内の温度分布に着火したアルミニウム粒子による温度変動が出現し，この温度変動によって燃焼表面近傍の反応層内の温度分布が変化した。着火したアルミニウム粒子の周辺には流線形の高温領域が形成され，高温領域の形状はアルミニウム粒子の粒径と燃焼ガス流の影響を受け，レイノルズ数によって変化し，レイノルズ数が大きくなると細長い流線形になり，高温領域はアルミニウム粒子の下流に集中するようになる。反応層内の温度分布に出現した温度変動は，このような着火したアルミニウム粒子の周辺の高温領域によるものである。高温領域は熱源の着火したアルミニウム粒子の輝炎径の 3 から 4 倍の大きさで広がり，広い範囲でアルミニウム粒子の周辺の燃焼ガスの温度を上昇させている。燃焼表面近傍の反応層内でアルミニウム粒子が着火すると反応層内での滞留時間は非常に短い，反応層内のアルミニウム粒子の周辺の燃焼ガスの温度は瞬時に上昇する。

燃焼表面近傍の反応層内でアルミニウム粒子は集塊し，集塊粒径は反応層内の温度分布の影響を受ける。燃焼表面近傍で集塊する前にアルミニウム粒子が分布していた領域の代表長さを集塊範囲とすると，集塊範囲は反応層内の温度分布と燃焼速度の比によって決定される。アルミニウム粒子の集塊の機構には燃焼表面上の燃焼表面温度からアルミニウム粒子の着火温度付近までの温度層が影響を与えている。AP 系コンポジット推進薬の固相と気相での不均質さによって燃焼表面近傍の反応層内の温度分布は影響を受け不均質になり，アルミニウム粒子の集塊粒径と集塊範囲は反応層内の温度分布の影響を受けて不均一となる。

以上のように，アルミニウム粒子を AP 系コンポジット推進薬に添加したときに，着火

したアルミニウム粒子が燃焼表面近傍の反応層内の温度分布に与える影響と、アルミニウム粒子の集塊の機構と燃焼表面近傍の反応層内の温度分布との関係が解明された。

謝辞

榎原卓雄先生，嶋田徹先生には本研究の中で多くのご指導を頂きまして，ここに感謝の意を表します。

木村元昭先生，村松旦典先生，田辺光昭先生には研究に関してご指導，ご意見を頂きまして，ここに感謝の意を表します。

榎原研究室，田辺研究室の大学院生，卒業研究生には多大なるご協力を頂き，ここに感謝の意を表します。

本研究の一部は平成 21 年度日本大学学術研究助成金及び平成 21・22・23・24 年度火薬工業技術奨励会研究助成金によるものであり，ここに感謝の意を表します。

ご指導，ご協力頂いた理工学部，航空宇宙工学科及び各学会関係者各位に感謝の意を表します。

参考文献

- [1] 大塚浩仁, 矢木一博, 岸光一, 野原勝, 佐野成寿, 次期固体ロケットの研究概要, IHI 技報, Vol. 49, No. 3, pp. 164–171, 2009.
- [2] J.F. Guery, I. Chang, T. Shimada, M. Glick, D. Boury, E. Robert, J. Napior, R. Wardle, C. Pérut, M. Calabro, R. Glick, H. Habu, N. Sekino, G. Vigier, and B. d’Andrea, Solid propulsion for space applications: An updated roadmap, *Acta Astronautica*, Vol. 66, No. 1-2, pp. 201–219, 2010.
- [3] プロペラント専門部会, プロペラント・ハンドブック, 社団法人 火薬学会, 2005.
- [4] 久保田浪之介, 固体推進薬の燃焼速度領域, 日本航空宇宙学会誌, Vol. 26, No. 293, pp. 308–317, 1978.
- [5] K. K. Kuo and M. Summerfield, *Fundamentals of Solid-Propellant Combustion*, Vol. 90 of *Progress in Astronautics and Aeronautics*, American Institute of Aeronautics and Astronautics, 1984.
- [6] V. Yang, T.B. Brill, and W.-Z. Ren, *Solid Propellant Chemistry, Combustion, and Motor Interior Ballistics*, Vol. 185 of *Progress in Astronautics and Aeronautics*, American Institute of Aeronautics and Astronautics, 2000.
- [7] M.J.L. Tuner, *Rocket and Spacecraft Propulsion*, Springer Science+Business Media Inc., 3rd edition, 2009.
- [8] G.P. Sutton and O. Biblarz, *Rocket Propulsion Elements*, John Wiley & Sons, Inc., 8th edition, 2010.
- [9] 北川幸樹, 嶋田徹, 安田誠一, 吉田裕二, 富澤利夫, 鈴木直洋, 加藤洋一, 尾澤剛, 二宮一芳, 矢島卓, 小型固体モータを用いたロールトルク計測技術の開発, 宇宙航空研究開発機構研究開発資料, JAXA-RM-10-019, 2011.
- [10] 稲元智行, 奥山純一, 室伏祥子, 宮川清, 高田淳史, 新規合成法による過塩素酸アンモニウムを用いた固体推進薬の燃焼特性取得結果, IHI 技報, Vol. 51, No. 2, pp. 43–47, 2011.
- [11] 羽生宏人, マグナリウムの固体ロケット推進薬への適用, 軽金属, Vol. 58, No. 4, pp.

- 162–166, 2008.
- [12] N. Kubota, *Propellants and Explosives*, Wiley-Vch Verlag GmbH & Co. KGaA, 2nd edition, 2007.
- [13] T. Kuwahara and N. Kubota, Low pressure burning of ammonium perchlorate composite propellants, *Combustion Science and Technology*, Vol. 47, pp. 81–91, 1986.
- [14] A.J. Sabadell, J. Wenograd, and M. Summerfield, Measurement of temperature profiles through solid-propellant flames using fine thermocouples, *AIAA Journal*, Vol. 3, No. 9, pp. 1580–1584, 1965.
- [15] M.W. Beckstead, A summary of aluminum combustion, *RTO/VKI Special Course on Internal Aerodynamics in Solid Rocket Propulsion*, RTO-EN-023, 2004.
- [16] P. Bucher, R.A. Yetter, F.L. Dryer, T.P. Parr, and D.M. Hanson-Parr, PLIF species and ratiometric temperature measurements of aluminum particle combustion in O₂, CO₂ and N₂O oxidizers, and comparison with model calculations, *27th Symposium (International) on Combustion*, pp. 2421–2429, 1998.
- [17] 湯浅三郎, 金属の着火と燃焼の特性, 日本燃焼学会誌, Vol. 45, No. 133, pp. 152–163, 2003.
- [18] K. Takahashi, T. Mano, M. Tanabe, T. Kuwahara, and T. Shimada, Velocity and temperature distributions around metal particles in the reaction zone of AP composite propellant, *45th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference*, AIAA paper 2009-5428, 2009.
- [19] K. Takahashi, T. Mano, M. Tanabe, T. Kuwahara, and T. Shimada, Hot gas flow around burning aluminum particles near burning surface of AP composite propellant, *46th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference*, AIAA paper 2010-6679, 2010.
- [20] K. Takahashi, K. Nakadai, M. Tanabe, T. Kuwahara, and T. Shimada, Agglomerate and ignition characteristics of aluminum particles in AN composite propellants, *The 4th International Symposium on Energetic Materials and their Applications*, 2011.
- [21] 高橋賢一, 中臺啓太, 田辺光昭, 桑原卓雄, 嶋田徹, コンポジット推進薬の燃焼表面近傍でのアルミニウム粒子の燃焼 - 温度勾配へ及ぼす影響 -, 日本航空宇宙学会論文集, Vol. 59, No. 689, pp. 141–147, 2011.
- [22] K. Takahashi, S. Oide, and T. Kuwahara, Agglomeration characteristics of aluminum particles in AP/AN composite propellants, *Propellants, Explosives, Pyrotechnics*, Vol. 38, No. 4, pp. 555–562, 2013.
- [23] K. Takahashi, K. Nakadai, S. Oide, M. Tanabe, T. Kuwahara, and T. Shimada, Agglomerate and ignition characteristics of aluminum particles in AN composite propellants, *Science and Technology of Energetic Materials, Japan Explosive Society*,

- Vol. 74, No. 6, pp. 145–153, 2013.
- [24] J.M. Lenoir and G. Robillard, A mathematical method to predict the effects of erosive burning in solid-propellant rockets, *Symposium (International) on Combustion*, Vol. 6, No. 1, pp. 663–667, 1957.
- [25] N. Kubota, T.J. Ohlemiller, L.H. Caveny, and M. Summerfield, The mechanism of super-rate burning of catalyzed double base propellants, *Symposium (International) on Combustion*, Vol. 15, No. 1, pp. 529–537, 1975.
- [26] N. Kubota, Determination of plateau burning effect of catalyzed double-base propellant, *Symposium (International) on Combustion*, Vol. 17, No. 1, pp. 1435–1441, 1979.
- [27] N. Kubota, T. Kuwahara, K. Uchiyama, and N. Hirata, Combustion wave structures of ammonium perchlorate composite propellants, *20th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference*, AIAA paper 1984-1435, 1984.
- [28] N. Kubota, T. Kuwahara, S. Miyazaki, K. Uchiyama, and N. Hirata, Combustion wave structures of ammonium perchlorate composite propellants, *Journal of Propulsion and Power*, Vol. 2, No. 4, pp. 296–300, 1986.
- [29] M.W. Beckstead, Solid propellant combustion mechanisms and flame structure, *Pure and Applied Chemistry*, Vol. 65, No. 2, pp. 297–307, 1993.
- [30] R.H.W. Waesche, Mechanisms and methods of suppression of combustion instability by metallic additives, *Journal of Propulsion and Power*, Vol. 15, No. 6, pp. 919–922, 1999.
- [31] C. Oommen and S.R. Jain, Ammonium nitrate: a promising rocket propellant oxidizer, *Journal of Hazardous Materials*, Vol. 67, No. 3, pp. 253–281, 1999.
- [32] 羽生宏人, 野副克彦, 霜田正隆, 山谷寿夫, 堀恵一, 齋藤猛男, マグナリウム (Mg/Al)-AP 系推進薬の燃焼, 火薬学会誌, Vol. 60, No. 2, pp. 83–90, 1999.
- [33] M.W. Beckstead, Recent progress in modeling solid propellant combustion, *Combustion, Explosion, and Shock Waves*, Vol. 42, No. 6, pp. 623–641, 2006.
- [34] 羽生宏人, 堀恵一, マグナリウム (Mg/Al)-AP 系固体推進薬の燃焼速度特性に関する研究, 火薬学会誌, Vol. 67, No. 6, pp. 187–192, 2006.
- [35] 桑原卓雄, 篠崎昇, 硝安/Al 系コンポジット推進薬の燃焼機構, 工業火薬 (火薬学会誌), Vol. 53, No. 3, pp. 131–136, 1992.
- [36] 桑原卓雄, 篠崎昇, AN/Al/AP 系コンポジット推進薬の着火特性, 火薬学会誌, Vol. 55, No. 3, pp. 108–113, 1994.
- [37] 桑原卓雄, 松尾信二, AN/AP 系コンポジット推進薬の燃焼速度及び着火特性, 火薬学会誌, Vol. 56, No. 3, pp. 135–140, 1995.
- [38] 桑原卓雄, AN/AP 系コンポジット推進薬の着火特性, 火薬学会誌, Vol. 60, No. 2, pp.

- 66–69, 1999.
- [39] 甲賀誠, AP/HTPB 系コンポジット推進薬設計のための一考察, 日本航空宇宙学会論文集, Vol. 55, No. 639, pp. 182–187, 2007.
- [40] 吉田冴子, 甲賀誠, 微粒 AP と粗粒 AP を用いた AN/AP 系推進薬の燃焼特性, *Science and Technology of Energetic Materials*, Vol. 67, No. 4, 2006.
- [41] M. Kohga, Burning characteristics and thermochemical behavior of AP/HTPB composite propellant using coarse and fine AP particles, *Propellants, Explosives, Pyrotechnics*, Vol. 36, No. 1, pp. 57–64, 2011.
- [42] V. Babuk, A. Glebov, I. Dolotkazin, A. Dosychev, L.T. DeLuca, B. D’Andrea, A. Vorozhtsov, and G. Klyakin, New generation of cheap and ecologically safe solid propellants for space applications, *European Conference for Aero-Space Sciences*, 2005.
- [43] C. Boyars and K. Klager, *Propellants Manufacture, Hazards, and Testing*, American Chemical Society, 1969.
- [44] U. Teipel, *Energetic Materials*, Wiley-Vch Verlag GmbH & Co. KGaA, 2005.
- [45] V.P. Sinditskii, V.Y. Egorshv, D. Tomasi, and L.T. DeLuca, Combustion mechanism of ammonium-nitrate-based propellants, *Journal of Propulsion and Power*, Vol. 24, No. 5, pp. 1068–1078, 2008.
- [46] S. Levi, D. Signoriello, A. Gabardi, M. Molinari, L. Galfetti, L.T. DeLuca, S. Cianfanelli, and G.F. Klyakin, Metallized solid rocket propellants based on AN/AP and PSAN/AP for access to space, *Progress in Propulsion Physics*, Vol. 1, pp. 97–108, 2009.
- [47] T.M. Klapötke, *Chemistry of high-energy materials*, Walter de Gruyter GmbH & Co. KG, 2011.
- [48] S. Groult and A. Bizot, Numerical simulations of heterogeneous AP/HTPB propellant combustion, *40th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference*, AIAA paper 2004-4039, 2004.
- [49] A. Bizot, Numerical simulations of heterogeneous AP/HTPB propellant combustion with aluminium, *42th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference*, AIAA paper 2006-5096, 2006.
- [50] R. Friedman and A. Maček, Ignition and combustion of aluminium particles in hot ambient gases, *Combustion and Flame*, Vol. 6, pp. 9–19, 1962.
- [51] R. Friedman and A. Maček, Combustion studies of single aluminum particles, *Symposium (International) on Combustion*, Vol. 9, No. 1, pp. 703–712, 1963.
- [52] R.W. Bartlett, J.N. Ong Jr, W.M. Fassell Jr, and C.A. Papp, Estimating aluminium

- particle combustion kinetics, *Combustion and Flame*, Vol. 7, pp. 227–234, 1963.
- [53] A. Maček, Fundamentals of combustion of single aluminum and beryllium particles, *Symposium (International) on Combustion*, Vol. 11, No. 1, pp. 203–217, 1967.
- [54] R.P. Wilson Jr and F.A. Williams, Experimental study of the combustion of single aluminum particles in O₂/Ar, *Symposium (International) on Combustion*, Vol. 13, No. 1, pp. 833–845, 1971.
- [55] Y.V. Frolov, P.F. Pokhil, and V.S. Logachev, Ignition and combustion of powdered aluminum in high-temperature gaseous media and in a composition of heterogeneous condensed systems, *Combustion, Explosion, and Shock Waves*, Vol. 8, No. 2, pp. 168–187, 1972.
- [56] A.G. Merzhanov, Y.M. Grigorjev, and Y.A. Gal'chenko, Aluminium ignition, *Combustion and Flame*, Vol. 29, pp. 1–14, 1977.
- [57] A. Gany and L.H. Caveny, Agglomeration and ignition mechanism of aluminum particles in solid propellants, *Symposium (International) on Combustion*, Vol. 17, No. 1, pp. 1453–1461, 1979.
- [58] S. Yuasa, S. Sogo, and H. Isoda, Ignition and combustion of aluminum in carbon dioxide streams, *Symposium (International) on Combustion*, Vol. 24, No. 1, pp. 1817–1825, 1992.
- [59] K.P. Brooks and M.W. Beckstead, Dynamic of aluminum combustion, *Journal of Propulsion and Power*, Vol. 11, No. 4, pp. 769–780, 1995.
- [60] S. Yuasa, Y. Zhu, and S. Sogo, Ignition and combustion of aluminum in oxygen/nitrogen mixture streams, *Combustion and Flame*, Vol. 108, No. 4, pp. 387–390, 1997.
- [61] E.L. Dreizin, Experimental study of stages in aluminium particle combustion in air, *Combustion and Flame*, Vol. 105, No. 4, pp. 541–556, 1996.
- [62] P. Bucher, R.A. Yetter, F.L. Dryer, T.P. Parr, D.M. Hanson-Parr, and E.P. Viceni, Flames structure measurement of single, isolated aluminum particles burning in air, *26th Symposium (International) on Combustion*, pp. 1899–1908, 1996.
- [63] E.L. Dreizin, On the mechanism of asymmetric aluminum particle combustion, *Combustion and Flame*, Vol. 117, No. 4, pp. 841–850, 1999.
- [64] P. Bucher, R.A. Yetter, F.L. Dryer, and E.P. Vicenzi, Condensed-phase species distribution about Al particles reacting in various oxidizers, *Combustion and Flame*, Vol. 117, No. 1-2, pp. 351–361, 1999.
- [65] J.C. Melcher, R.L. Burton, and H. Krier, Combustion of aluminum particles in solid rocket motor flows, *35th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference*, AIAA

- paper 1999-2630, 1999.
- [66] J.C. Melcher, J.T. Brzozowski, H. Krier, and R.L. Burton, Combustion of aluminum in solid rocket motor flows, *36th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference*, AIAA paper 2000-3333, 2000.
- [67] J.C. Melcher, H. Krier, and R.L. Burton, Burning aluminum particles inside a laboratory-scale solid rocket motor, *37th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference*, AIAA paper 2001-3947, 2001.
- [68] J. Servaites, H. Krier, J.C. Melcher, and R.L. Burton, Ignition and combustion of aluminum particles in shocked $\text{H}_2\text{O}/\text{O}_2/\text{Ar}$ and $\text{CO}_2/\text{O}_2/\text{Ar}$ mixtures, *Combustion and Flame*, Vol. 125, No. 1-2, pp. 1040–1054, 2001.
- [69] M.A. Trunov, M. Schoenitz, and E.L. Dreizin, Ignition of aluminum powders under different experimental conditions, *Propellants, Explosives, Pyrotechnics*, Vol. 30, No. 1, pp. 36–43, 2005.
- [70] T. Bazyn, H. Krier, and N. Glumac, Combustion of nanoaluminum at elevated pressure and temperature behind reflected shock waves, *Combustion and Flame*, Vol. 145, No. 4, pp. 703–713, 2006.
- [71] N. Glumac, H. Krier, T. Bazyn, and R. Eyer, Temperature measurements of aluminum particles burning in carbon dioxide, *Combustion Science and Technology*, Vol. 177, No. 3, pp. 485–511, 2005.
- [72] S. Goroshin, J. Mamen, A. Higgins, T. Bazyn, N. Glumac, and H. Krier, Emission spectroscopy of flame fronts in aluminum suspensions, *Proceedings of the Combustion Institute*, Vol. 31, No. 2, pp. 2011–2019, 2007.
- [73] P. Lynch, H. Krier, and N. Glumac, A correlation for burn time of aluminum particles in the transition regime, *Proceedings of the Combustion Institute*, Vol. 32, No. 2, pp. 1887–1893, 2009.
- [74] S. Mohan, M.A. Trunov, and E.L. Dreizin, On possibility of vapor-phase combustion for fine aluminum particles, *Combustion and Flame*, Vol. 156, No. 11, pp. 2213–2216, 2009.
- [75] S. Mohan, L. Furet, and E.L. Dreizin, Aluminum particle ignition in different oxidizing environments, *Combustion and Flame*, Vol. 157, No. 7, pp. 1356–1363, 2010.
- [76] L.A. Watermeier, W.P. Aungst, and S.P. Pfaff, An experimental study of the aluminum additive role in unstable combustion of solid rocket propellants, *Symposium (International) on Combustion*, Vol. 9, No. 1, pp. 316–327, 1963.
- [77] 泉川宗男, 高橋守, 三谷徹, 新岡嵩, 千葉正俊, 加藤一成, 固体推進薬における金属の燃焼, *航空宇宙技術研究所報告*, Vol. 998, pp. 1–27, 1988.

- [78] 三谷徹, 泉川宗男, 固体推進薬におけるアルミニウムとボロンの燃焼, 日本航空宇宙学会誌, Vol. 36, No. 415, pp. 389–395, 1988.
- [79] M.Q. Brewster and B. Hardt, Influence of metal agglomeration and heat feedback on composite propellant burning rate, *Journal of Propulsion and Power*, Vol. 7, pp. 1076–1078, 1991.
- [80] M.Q. Brewster, T. Sheridan, and A. Ishihara, Ammonium nitrate-magnesium propellant combustion and heat transfer mechanisms, *Journal of Propulsion and Power*, Vol. 8, No. 4, pp. 760–769, 1992.
- [81] A. Ishihara, M.Q. Brewster, T.A. Sheridan, and H. Krier, The influence of radiative heat feedback on burning rate in aluminized propellants, *Combustion and Flame*, Vol. 84, No. 1-2, pp. 141–153, 1991.
- [82] A. Ishihara, The effect of cross-flow temperature on the burning rate in a solid propellant, *Symposium (International) on Combustion*, Vol. 24, No. 1, pp. 1931–1938, 1992.
- [83] A. Ishihara and M.Q. Brewster, Combustion studies of boron, magnesium, and aluminum composite propellants, *Combustion Science and Technology*, Vol. 87, pp. 275–290, 1993.
- [84] V.A. Babuk, V.A. Vasilyev, and M.S. Malakhov, Condensed combustion products at the burning surface of aluminized solid propellant, *Journal of Propulsion and Power*, Vol. 15, No. 6, pp. 783–793, 1999.
- [85] A. Ishihara, Y. Sakai, K. Konishi, and E. Andoh, Measurement of the burning surface temperature in ammonium perchlorate, *Proceedings of the Combustion Institute*, Vol. 28, No. 1, pp. 855–862, 2000.
- [86] O.G. Glotov, Condensed combustion products of aluminized propellants. II. evolution of particles with distance from the burning surface, *Combustion, Explosion, and Shock Waves*, Vol. 36, No. 4, pp. 476–487, 2000.
- [87] H. Habu and T. Shimada, Study on Al/Al₂O₃ agglomeration particle size distribution for solid propellants, *42th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference*, AIAA paper 2006-5249, 2006.
- [88] O.G. Glotov and V.A. Zhukov, Evolution of 100- μ m aluminum agglomerates and initially continuous aluminum particles in the flame of a model solid propellant I. experimental approach, *Combustion, Explosion, and Shock Waves*, Vol. 44, No. 6, pp. 662–670, 2008.
- [89] O.G. Glotov and V.A. Zhukov, The evolution of 100- μ m aluminum agglomerates and initially continuous aluminum particles in the flame of a model solid propellant II.

- results, *Combustion, Explosion, and Shock Waves*, Vol. 44, No. 6, pp. 671–680, 2008.
- [90] M.Q. Brewster and J.C. Mullen, Flame structure in aluminized wide-distribution AP composite propellants, *Combustion and Flame*, Vol. 157, No. 12, pp. 2340–2347, 2010.
- [91] L.T. DeLuca, L. Galfetti, F. Severini, L. Meda, G. Marra, A.B. Vorozhtsov, V.S. Sedoi, and V.A. Babuk, Burning of nano-aluminized composite rocket propellants, *Combustion, Explosion, and Shock Waves*, Vol. 41, No. 6, pp. 680–692, 2005.
- [92] Y. Huang, G.A. Risha, V. Yang, and R.A. Yetter, Combustion of bimodal nano/micron-sized aluminum particle dust in air, *Proceedings of the Combustion Institute*, Vol. 31, No. 2, pp. 2001–2009, 2007.
- [93] Y. Huang, G.A. Risha, V. Yang, and R.A. Yetter, Effect of particle size on combustion of aluminum particle dust in air, *Combustion and Flame*, Vol. 156, No. 1, pp. 5–13, 2009.
- [94] L.T. DeLuca, C. Paravan, A. Reina, E. Marchesi, F. Maggi, A. Bandera, G. Colombo, and B. Kosowski, Aggregation and incipient agglomeration in metalized solid propellants and solid fuels for rocket propulsion, *46th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference*, AIAA paper 2010-6752, 2010.
- [95] F. Maggi, A. Bandera, L. Galfetti, L.T. DeLuca, and T.L. Jackson, Efficient solid rocket propulsion for access to space, *Acta Astronautica*, Vol. 66, No. 11-12, pp. 1563–1573, 2010.
- [96] F. Maggi, A. Bandera, and L.T. DeLuca, Approaching solid propellant heterogeneity for agglomerate size prediction, *46th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference*, AIAA paper 2010-6751, 2010.
- [97] F. Maggi, S. Dossi, and L.T. DeLuca, Combustion of metal agglomerates in a solid rocket core flow, *Acta Astronautica*, In Press, 2012.
- [98] L. Galfetti, L.T. DeLuca, F. Severini, G. Colombo, L. Meda, and G. Marra, Pre and post-burning analysis of nano-aluminized solid rocket propellants, *Aerospace Science and Technology*, Vol. 11, No. 1, pp. 26–32, 2007.
- [99] T. Bazyn, H. Krier, and N. Glumac, Evidence for the transition from the diffusion-limit in aluminum particle combustion, *Proceedings of the Combustion Institute*, Vol. 31, No. 2, pp. 2021–2028, 2007.
- [100] A.L. Breiter, V.M. Mal'tsev, and E.I. Popov, Models of metal ignition, *Combustion, Explosion, and Shock Waves*, Vol. 13, No. 4, pp. 475–485, 1977.
- [101] N.S. Cohen, A pocket model for aluminum agglomeration in composite propellants, *AIAA Journal*, Vol. 21, No. 5, pp. 720–725, 1982.

- [102] J.F. Widener and M.W. Beckstead, Aluminum combustion modeling in solid propellant combustion products, *34th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference*, AIAA paper 1998-3824, 1998.
- [103] L. Massa, T.L. Jackson, J. Buckmaster, and M. Campbell, Three-dimensional heterogeneous propellant combustion, *Proceedings of the Combustion Institute*, Vol. 29, No. 2, pp. 2975–2983, 2002.
- [104] L. Massa, T.L. Jackson, and J. Buckmaster, New kinetics for a model of heterogeneous propellant combustion, *Journal of Propulsion and Power*, Vol. 21, No. 5, pp. 914–924, 2005.
- [105] M.K. King, Aluminum combustion in a solid rocket motor environment, *Proceedings of the Combustion Institute*, Vol. 32, No. 2, pp. 2107–2114, 2009.
- [106] O. Orlandi and Y. Fabignon, Numerical simulation of the combustion of a single aluminum droplet in various environments, *37th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference*, AIAA paper 2001-3582, 2001.
- [107] M.W. Beckstead, Y. Liang, and K.V. Pudduppakkam, Numerical simulation of single aluminum particle combustion (review), *Combustion, Explosion, and Shock Waves*, Vol. 41, No. 6, pp. 622–638, 2005.
- [108] T.L. Jackson, F. Najjar, and J. Buckmaster, New aluminum agglomeration models and their use in solid-propellant-rocket simulations, *Journal of Propulsion and Power*, Vol. 21, No. 5, pp. 925–936, 2005.
- [109] X. Wang, T.L. Jackson, and J. Buckmaster, Numerical simulation of the 3-dimensional combustion of aluminized heterogeneous propellants, *Proceedings of the Combustion Institute*, Vol. 31, No. 2, pp. 2055–2062, 2007.
- [110] M. Jackson, M.L. Pantoya, and W. Gill, Characterization of a gas burner to simulate a propellant flame and evaluate aluminum particle combustion, *Combustion and Flame*, Vol. 153, No. 1-2, pp. 58–70, 2008.
- [111] E.B. Washburn, J.A. Webb, and M.W. Beckstead, The simulation of the combustion of micrometer-sized aluminum particles with oxygen and carbon dioxide, *Combustion and Flame*, Vol. 157, No. 3, pp. 540–545, 2010.
- [112] S. Gallier, F. Sibe, and O. Orlandi, Combustion response of an aluminum droplet burning in air, *Proceedings of the Combustion Institute*, Vol. 33, No. 2, pp. 1949–1956, 2011.
- [113] A.R. Grant, T.L. Connell Jr, R.A. Yetter, V. Yang, T.D. Wood, M.A. Pfeil, L.P. Timothee, and F.S. Steven, Aluminum-ice (alice) propellants for hydrogen generation and propulsion, *45th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference*, AIAA paper

- 2009-4877, 2009.
- [114] T.D. Wood, M.A. Pfeil, T.L. Pourpoint, J. Tsohas, S.F. Son, T.L. Connell Jr, A.R. Grant, and R.A. Yetter, Feasibility study and demonstration of an aluminum and ice solid propellant, *45th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference*, AIAA paper 2009-4877, 2009.
- [115] H. Okura, K. Takahashi, M. Tanabe, and T. Kuwahara, Behavior of charcoal in black powder on burning surface, *44th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference*, AIAA paper 2008-4607, 2008.
- [116] C.A. Heller and A.S. Gordon, Structure of the gas phase combustion region of a solid double base propellant, *The Journal of Physical Chemistry*, Vol. 59, No. 8, pp. 773–777, 1955.
- [117] K. Nakadai, K. Takahashi, M. Tanabe, and T. Kuwahara, Burning rate characteristics of AN composite propellant with addition of Al particles, *47th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference*, AIAA Paper 2011-5713, 2011.
- [118] S. Oide, K. Takahashi, and T. Kuwahara, Characteristics of aluminum agglomeration in AP/AN composite propellants, *4th International Symposium on Energetic Materials and their Applications*, 2011.
- [119] S. Oide, K. Takahashi, and T. Kuwahara, Characteristics of aluminum agglomeration at burning surface in AP/AN composite propellants, *48th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference*, AIAA paper 2012-3973, 2012.
- [120] S. Oide, K. Takahashi, and T. Kuwahara, Characteristics of aluminum agglomeration in AP/AN composite propellants, *Science and Technology of Energetic Materials*, Vol. 73, No. 5, pp. 153–156, 2012.
- [121] I. Glassman and R.A. Yetter, *Combustion*, Academic Press, 4th edition, 2008.
- [122] H. Schlichting, *Boundary-Layer Theory*, McGraw-Hill Book Company, 7th edition, 1968.
- [123] J.A. Steinz and M. Summerfield, Low pressure burning of composite solid propellants, *Propellants Manufacture, Hazards, and Testing*, Vol. 88, pp. 244–295, 1969.
- [124] J.A. Steinz, P.L. Stang, and M. Summerfield, The burning mechanism of ammonium perchlorate-based composite solid propellants, *Aerospace and Mechanical Science Report*, Vol. 830, , 1969.
- [125] S.V. Patankar, *Numerical Heat Transfer and Fluid Flow*, CRC Press, 1980.
- [126] C.L. Mader, *Numerical Modeling of Explosives and Propellants*, CRC Press, 3rd edition, 2008.
- [127] 日本機械学会, 燃焼の数値計算, 社団法人 日本機械学会, 2004.

- [128] V.I. Golovitchev, R. Nordin, R. Jarnicki, and J. Chomiak, 3-D diesel spray simulations using a new detailed chemistry turbulent combustion model, *CEC/SAE Spring Fuels & Lubricants Meeting & Exposition*, 2000.
- [129] T. Kuwahara, H. Okura, K. Takahashi, and M. Tanabe, Heat release in gas phase near burning surface of composite propellants - ammonium perchlorate (AP) and black powder (BP) propellant -, *45th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference*, AIAA paper 2009-5425, 2009.
- [130] T. Kuwahara, T. Mano, K. Takahashi, and M. Tanabe, Reaction of aluminum in gas phase near burning surface of composite propellants, *46th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference*, AIAA paper 2010-6678, 2010.
- [131] 久保田浪之介, ロケット工学概論, 財団法人 防衛技術協会, 1981.
- [132] M.W. Beckstead, R.L. Derr, and C.F. Price, A model of composite solid-propellant combustion based on multiple flames, *AIAA Journal*, Vol. 8, No. 12, pp. 2200–2207, 1970.
- [133] S. Gordon and B.J. McBride, Computer program for calculation of complex chemical equilibrium compositions and applications, *NASA Reference Publication*, NASA RP-1311, 1994.
- [134] R. Klein, M. Mentser, G. von Elbe, and B. Lewis, The determination of the thermal structure of a combustion wave by fine thermocouples, *The Journal of Physical Chemistry*, Vol. 54, No. 6, pp. 877–884, 1950.
- [135] N.P. Suh, C.L. Tsai, C.L. Thompson, and J.S. Moore, Ignition and surface temperature of double base propellants at low pressure: I. thermocouple measurements, *AIAA Journal*, Vol. 8, No. 7, pp. 1314–1321, 1970.
- [136] C. Wieselsberger, Neuere feststellungen über die gesetze des flüssigkeits und luftwiderstandes, *Physikalische Zeitschrift*, Vol. 22, pp. 321–328, 1921.

付録 A

酸化剤とバインダーの組成比

AP系コンポジット推進薬の酸化剤とバインダーの組成比を決定するために NASA RP-1311 [133] による化学平衡計算を行った。酸化剤は過塩素酸アンモニウム (AP) とし、バインダーをオクタデシルアルコール (Oct) として、AP と Oct の組成比の合計を 100 とした。Oct の組成比を変化させたときの断熱火炎温度を図 A.1 に示した。計算条件は雰囲気圧力 0.1 MPa、初期温度 293 K である。

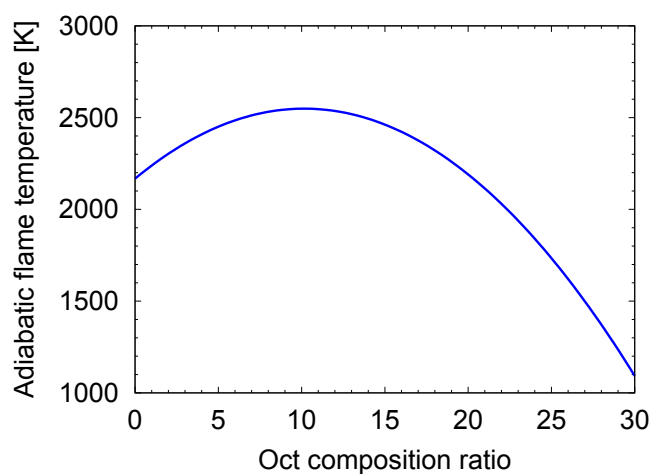


図 A.1 バインダーの組成比を変化させたときの断熱火炎温度

図 A.1 に示すように、AP / Oct = 90 / 10 のときに断熱火炎温度が最高値となり、本研究ではこの組成比を採択した。

付録 B

AP 系コンポジット推進薬の断熱火炎温度と反応生成物

アルミニウム粒子を添加したときの AP 系コンポジット推進薬の燃焼性能への影響を、燃焼実験で使用した AP 系コンポジット推進薬の組成で理論計算を行った。理論計算で得られる断熱火炎温度と反応生成物からアルミニウム粒子を添加したときの影響を調べた。

NASA RP-1311 [133] による化学平衡計算を表 B.1 の組成にて行った。計算条件は雰囲気気圧力 0.1 MPa, 初期温度 293 K とした。

表 B.1 理論計算の AP 系コンポジット推進薬の組成

組成		組成比 (質量比)
酸化剤	過塩素酸アンモニウム (AP)	80
	硝酸アンモニウム (AN)	10
バインダー	オクタデシルアルコール (Oct)	10
金属燃料	アルミニウム粒子 (Al)	0, 5, 10, 20

図 B.1 はアルミニウム粒子の組成比に対する断熱火炎温度の変化を示している。

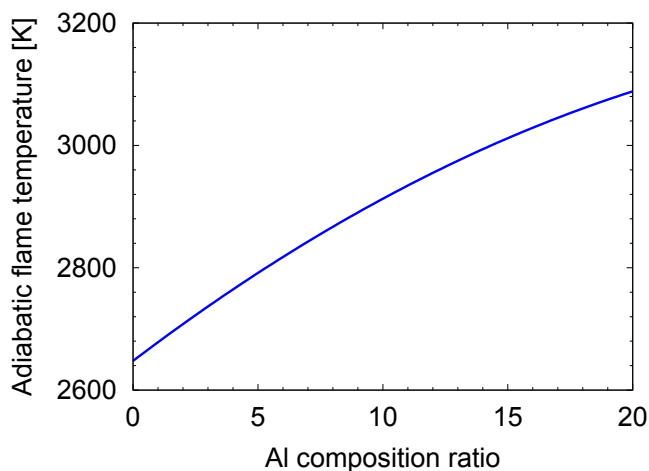


図 B.1 アルミニウム粒子の組成比が変化したときの断熱火炎温度

アルミニウム粒子が増加すると、断熱火炎温度も上昇している。この断熱火炎温度は化学反応が終結した時点の温度を示し、AP系コンポジット推進薬が燃焼しているときには輝炎層の温度に相当する。これらの組成の推進薬では輝炎層の温度が2600 Kから3100 Kほどに達する。

図 B.2 は理論計算による反応生成物のモル分率である。

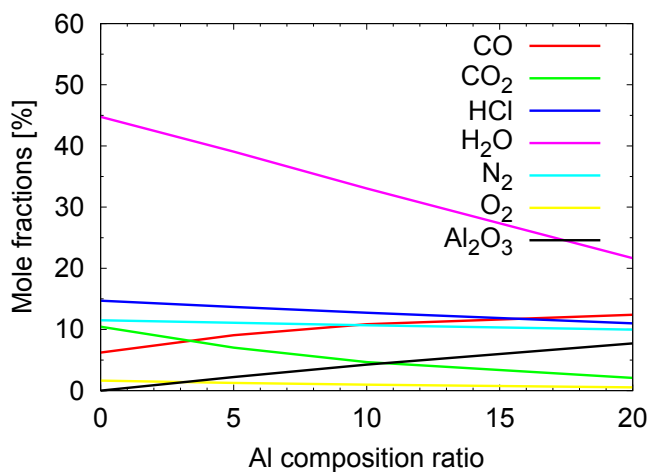


図 B.2 燃焼生成物

アルミニウム粒子が燃焼するとき酸素源となるCO、CO₂、O₂はアルミニウム粒子の組成比の変化に対してほとんど変化しないが、これらと比較してH₂Oは多く存在し、アルミニウム粒子が増加するとH₂Oは減少している。また、アルミニウム粒子が増加すると、アルミニウム粒子の反応生成物の一つのAl₂O₃が増加している。

付録 C

AP/HTPB コンポジット推進薬との比較

本研究で使用した AP/AN/Oct コンポジット推進薬と実用化されている一般的な AP/HTPB コンポジット推進薬との比較を行う。

NASA RP-1311 [133] による化学平衡計算を表 C.1 の組成にて行った。計算条件は雰囲気圧力 0.1 MPa, 初期温度 293 K とした。

表 C.1 理論計算の AP 系コンポジット推進薬の組成

組成		組成比 (質量比)			
		AP/HTPB	AP/AN/Oct		
酸化剤	過塩素酸アンモニウム (AP)	90	90	85	80
	硝酸アンモニウム (AN)	–	0	5	10
バインダー	末端水酸基ポリブタジエン (HTPB)	10	–	–	–
	オクタデシルアルコール (Oct)	–	10	10	10

断熱火炎温度は表 C.2 のようになった。

表 C.2 断熱火炎温度

AP/HTPB	AP/AN/Oct		
90/10	90/0/10	85/5/10	80/10/10
断熱火炎温度 [K]			
2697	2678	2663	2647

バインダーを HTPB から Oct へ変更すると断熱火炎温度が 20 K ほど減少し，AN を増加させると断熱火炎温度は 30 K ほど減少するが大幅な変化は無い．表 C.3 のように，生成熱は Oct の方が負に大きく，Oct の方が負に大きい吸熱的分解をするので，バインダーを Oct にした場合には燃焼表面での発熱量の減少が考えられ，燃焼速度が減少することになる．

表 C.3 HTPB と Oct の比較

	HTPB	Oct
分子記号	$C_{7.075}H_{10.65}O_{0.223}N_{0.063}$	$C_{18}H_{38}O$
密度 [$kg\ m^{-3}$]	900	812
生成熱 [$kJ\ mol^{-1}$]	-58	-690

次に表 C.4 に示すように反応生成物を比較する．

表 C.4 反応生成物

反応生成物	AP/HTPB		AP/AN/Oct	
	90/10	90/0/10	85/5/10	80/10/10
	モル分率 [%]			
CO	6.6	6.3	6.2	6.2
CO ₂	11.8	10.7	10.6	10.5
H ₂ O	40.0	42.9	43.8	44.8
O	0.6	0.5	0.4	0.4
OH	3.4	3.2	2.9	2.7
O ₂	2.9	2.3	1.9	1.6
Cl	3.5	3.1	2.7	2.3
H	1.0	1.0	1.0	0.9
HCl	16.5	16.5	15.6	14.7
H ₂	3.3	3.8	3.9	4.0
Total	89.7	90.0	89.1	88.2

表 C.4 のようにバインダーを HTPB から Oct に変更しても，AN を増加させても反応生成物の大幅な変化は無い．従って，酸化剤の一部を AN とし，バインダーを Oct としたときに，HTPB の場合とほぼ同様な燃焼ガス成分となり，アルミニウム粒子の集塊と着火の機構は双方の組成で同様に扱うことができる．AP/AN/Oct コンポジット推進薬によつ

て、AP/HTPB コンポジット推進薬を模擬することが可能である。

付録 D

極細熱電対の時定数

極細熱電対によるコンポジット推進薬の燃焼表面近傍の温度の計測について、様々な手法による研究が報告されている。

Sabadell ら [14] は、線径 $2.5 \mu\text{m}$ と $7.5 \mu\text{m}$ の極細熱電対 (白金-白金 10 % ロジウム) を使用し、PBAA-AP コンポジット推進薬の燃焼表面近傍の温度分布を計測し、燃焼表面近傍の温度勾配から燃焼表面への熱流入量を解析している。極細熱電対の接点となる接合部の直径は線径の 2 倍以下としている。

Heller ら [116] は、ダブルベース推進薬を使用して燃焼表面近傍の温度分布を計測しており、極細熱電対について詳細な検討を行っている。線径 $7.5 \mu\text{m}$ と $12.5 \mu\text{m}$ の極細熱電対 (白金-白金 10% ロジウム) を使用し、雰囲気圧力を変化させたときの温度分布を計測している。これらの線径の応答時間を検討し、計測に適しているとしている。

Suh ら [135] は、白金-白金 10 % ロジウム熱電対とアルメル-クロメル熱電対との比較を行い、白金の触媒効果が無いことを確認している。

Klein ら [134] は、白金の触媒効果に対して被覆の有無が計測結果に与える影響を調べ、影響がほとんど無いことを確認している。

以上の報告から、本研究で使用した白金-白金 10 % ロジウム、線径 $12.5 \mu\text{m}$ の極細熱電対では、被覆の有無、白金の触媒効果は計測結果に影響しないとする。

次に、本研究で使用した極細熱電対の時定数の理論計算を行う。表 D.1 に理論計算に使用した AP 系コンポジット推進薬の組成を示す。

表 D.1 AP系コンポジット推進薬の組成

組成		組成比 (質量比)
酸化剤	過塩素酸アンモニウム (AP)	80
	硝酸アンモニウム (AN)	10
バインダー	オクタデシルアルコール (Oct)	10

表 D.2 に極細熱電対の時定数の理論計算を示す。

表 D.2 物性値と時定数

極細熱電対の線径		12.5 μm
雰囲気圧力 ¹	p	0.1 MPa
燃焼速度 ¹	r	0.9 mm s ⁻¹
燃焼ガスの流速 ²	U	14 m s ⁻¹
燃焼ガスの密度 ³	ρ_g	0.1154 kg m ⁻³
燃焼ガスの粘性係数 ³	μ_g	9.058×10^{-5} Pa s
燃焼ガスの動粘性係数	ν_g	7.852×10^{-4} m ² s ⁻¹
レイノルズ数	Re	0.4457
プラントル数 ³	Pr	0.5199
ヌセルト数	Nu	2.306
燃焼ガスの熱伝導率 ³	λ_g	1.023 W m ⁻¹ K ⁻¹
白金の密度	ρ_{pt}	21450 kg m ⁻³
白金の比熱	c_{pt}	130 J kg ⁻¹ K ⁻¹
極細熱電対の接点の直径	D_{tc}	$12.5 \times 2 = 25 \mu\text{m}$
極細熱電対の時定数	τ_{tc}	0.1847 ms

¹ 第 4 章での実験条件, 実験結果

² 第 5 章での理論計算

³ NASA RP-1311 [133] による理論計算

表 D.2 で理論計算に使用した計算式は式 D.1, D.2, D.3 の通りである。

$$Re = \frac{UD_{tc}}{\nu_g} \quad \nu_g = \frac{\mu_g}{\rho_g} \quad (\text{D.1})$$

$$Nu = 2 + 0.57Re^{1/2}Pr^{1/3} \quad (\text{D.2})$$

$$\tau_{tc} = \frac{\rho_{pt} c_{pt} D_{tc}^2}{4Nu\lambda_g} \quad (\text{D.3})$$

第 4 章では，AP 系コンポジット推進薬の組成比が AN10 Al10 のときに，燃焼速度は 0.9 mm s^{-1} となった．時定数が 0.1847 ms のときに，温度分布の分解能は $0.1662 \mu\text{m}$ となり，本研究での温度分布の計測における分解能は十分に小さく，応答時間は計測に適しているとする．

付録 E

球の抵抗係数によるコンピュータ・シミュレーションの検証

本研究で使用した CFD ツールとメッシュを球の抵抗係数によって検証する。球の抵抗係数を求めるために表 E.1 と E.2 のように計算条件を設定しコンピュータ・シミュレーションを行った。ここでのコンピュータ・シミュレーションでは、風洞実験の結果との比較のために球の表面に滑り無し条件を与え、球の表面温度は周囲のガスと同じ温度にした。他の計算条件と計算領域は第 5 章と同じ設定を使用した。

表 E.1 球の抵抗係数の計算条件 (1)

レイノルズ数	8
粒子の粒径	30 μm
初期条件・流入条件	14 m s^{-1} 600 K 0.1 MPa
動作流体	窒素

表 E.2 球の抵抗係数の計算条件 (2)

レイノルズ数	35
粒子の粒径	30 μm
初期条件・流入条件	6 m s^{-1} 600 K 1 MPa
動作流体	窒素

球の抵抗係数を比較するときに、一般的に利用されている Wieselsberger [136] による風洞実験の結果を利用し、風洞実験の結果との比較を図 E.1 に示す。

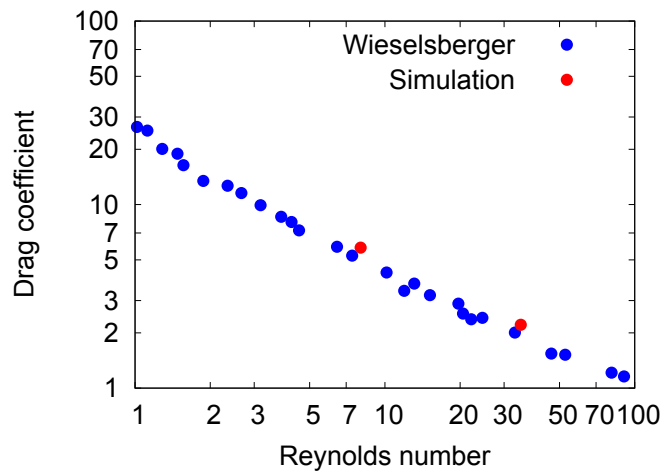


図 E.1 球の抵抗係数

図 E.1 のように風洞実験の結果 (青) とコンピュータ・シミュレーションの結果 (赤) は非常に近い値となり、粒子まわりの速度分布は精度良くシミュレーションできていると考えられる。これらのコンピュータ・シミュレーションの結果で後流の変動はほとんど見られず、粒子の周囲はストークス流れに近い状態となっていると考えられる。

付録 F

着火したアルミニウム粒子の輝炎径

AP系コンジット推進薬の燃焼中に、燃焼表面近傍の反応層内で集塊し着火したアルミニウム粒子を白黒高速度カメラで撮影し、動画から着火直後の集塊粒径と輝炎径を計測した。撮影条件はフレーム・レートが8113 fps、露光時間が70 μs である。このときの動画の解像度は14 μm である。集塊したアルミニウム粒子の集塊粒径は数100 μm となるので解像度は十分に小さいと考えられる。動画で焦点が合い輪郭が鮮明になっている35個の着火したアルミニウム粒子の集塊粒径と輝炎径を計測した。

図F.1にアルミニウム粒子の集塊粒径と輝炎径を示す。なお、使用したAP系コンジット推進薬の組成比は表2.4の、

AN10 Al10

Alの平均粒径: 30 μm

である。

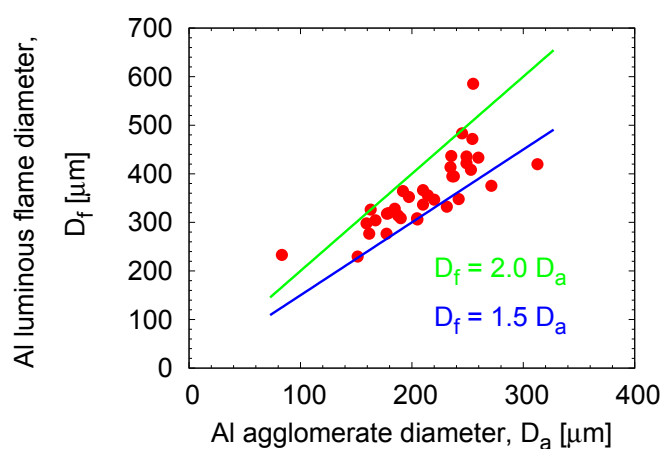


図 F.1 着火後のアルミニウム粒子の集塊粒径と輝炎径

図 F.1 のように、アルミニウム粒子の集塊粒径が増加すると、着火したアルミニウム粒子の輝炎径も増加している。着火したアルミニウム粒子の輝炎径は集塊粒径に対して、図 F.1 のように、1.5 から 2.0 倍付近でばらついている。着火直後ではアルミニウム粒子の輝炎径は比較的小さいと考えられ、本研究の第 5 章のコンピュータ・シミュレーションのモデルでは輝炎径は集塊粒径の 1.5 倍とした。

付録 G

既往の研究からの燃焼速度とアルミニウム粒子の集塊粒径の理論計算

久保田と桑原ら [13,27,35,37] によって, AP 系コンポジット推進薬の燃焼実験での物性値が求められている. これらの物性値を使用して, 燃焼速度とアルミニウム粒子の集塊範囲と集塊粒径を計算した.

表 G.1 に AP 系コンポジット推進薬の組成を示す.

表 G.1 AP 系コンポジット推進薬の組成

	組成	組成比 (質量比)
酸化剤	過塩素酸アンモニウム (AP)	20
	硝酸アンモニウム (AN)	40
バインダー	末端水酸基ポリブタジエン (HTPB)	20
金属燃料	アルミニウム粒子 (Al)	20

次に, 式 G.1 に燃焼速度の式と, 表 G.2 に物性値と計算した燃焼速度を示す.

$$r = \frac{\lambda_g (dT/dx)_{sg}}{\rho_p c_p (T_s - T_o - Q_s/c_p)} \quad (\text{G.1})$$

表 G.2 AP系コンポジット推進薬の燃焼速度の理論計算

	物性値	参考文献
雰囲気圧力	5 MPa	[13]
λ_g	0.084 W m ⁻¹ K ⁻¹	[13,27]
$(dT/dx)_{sg}$	1.0 × 10 ⁷ K m ⁻¹	[35]
ρ_p	1520 kg m ⁻³	[37]
c_p	1680 J kg ⁻¹ K ⁻¹	[37]
T_s	517 K	[35]
T_o	293 K	[37]
Q_s	1.0 × 10 ⁵ J kg ⁻¹	[13,27]
T_f	1500 K	[13,27]
λ_p	0.72 W m ⁻¹ K ⁻¹	[37]
r	2.0 mm s ⁻¹	式 G.1

既往の研究の実験結果から燃焼速度を計算すると、2.0 mm s⁻¹ となった。

また、式 7.9 からアルミニウム粒子の集塊範囲と集塊粒径を計算すると表 G.3 のようになる。

表 G.3 アルミニウム粒子の集塊範囲と集塊粒径

集塊範囲 R_a	140 μm
アルミニウムの平均粒径	2.5 μm
平均粒子間隔 I_{Al}	4.1 μm
集塊粒径 D_a	85 μm

理論計算によるアルミニウム粒子の集塊粒径は 85 μm となり、元の粒径の 34 倍で、Babuk ら [42, 84] の実験結果に近い値となった。

**AP系コンポジット推進薬の
燃焼表面近傍の反応層での
アルミニウム粒子の集塊と着火**

平成 25 年 9 月

高 橋 賢 一