

多泡性推進薬の燃焼および爆轟性に関する研究(第一報)

—マイクロスフェアを含む推進薬—

山谷寿夫*, 岩間 彬*, 得猪治輔**

一般に、ロケット・モータに装填した推進薬に無数の気泡が介在すると異常燃焼、ひいては爆轟へ転移しかねないと信じられている。一方、推進薬マトリックス中に気泡を人工的に導入すれば超高燃焼速度を実現し得る可能性がある。本論文はアルミ粉を含まないCTPB/AP推進薬に3種のマイクロスフェアを混入、それによる推進薬のぜい弱性(vulnerability)の高まりを検討するため初歩的な実験を行ない、顕著なvulnerabilityの上昇はみられなかったことを報告している。ただし、気泡が互いに独立して分布し、推進薬の未燃部分へ燃焼ガスが深く侵入を許さないことが前提である。3種のマイクロスフェアの添加重量当たりの燃速への増加効果と比較すると、プラスチック>ガラス>カーボンの順になるが、気泡容積含有率でみると差はほとんどないことが判った。

1. はじめに

コンポジット推進薬の製造および装填技術は、ここ20年の間に長足の進歩を遂げ、グレインの中に亀裂や無数の気泡を生じ廃棄処分をせざるを得なくなるトラブルはほとんどみられなくなった。その理由の一つには、水とイソシアナートとの反応によって炭酸ガスが発生するポリウレタン系から、気泡生成のおそれが少ないイミンやエポキシ化合物で架橋する末端カルボキシル基ポリブタジエン系へと、燃料結合剤成分の主力が移行したことが挙げられる。

しかし、コンポジット推進薬の製造では、高性能化へ指向して、燃結剤ポリリマの配合比は注型可能なギリギリの線まで抑えられているため、ドウの見掛粘度は非常に高く、プロセス管理を疎かにすると多量の気泡が硬化グレイン中に残る危険が常につきまといている。実際にロケット・モータに装填したグレインを非破壊検査機にかけてと例外なく多少の気泡が確認され、気泡はモータが巨大なもののほど径が大きくなる傾向がある。ごく少数の気泡が点在する程度ならば、通常そのまま打上げてしまうけれども、グレイン点火面に多数の気泡が群がっていたり、レストリクタやライ

ナとグレインとの界面で剥離が生じている場合などでは、点火直後の異常燃焼の発生原因になりかねないので、時には打上げ可否をめぐって論議的にさえる。

これにもかかわらず、グレインにどの程度の大きさ、密度、状態で気泡が介在していれば廃棄あるいは打上げを断念すべきか、学問的裏付けに乏しく経験に頼っているのが現状である。折しも、1980年2月、日本宇宙開発事業団が気象・通信衛星を所定軌道にのせるミッションを担って発射した「あやめ」1号が目的を達せられなかった出来事があり、その原因はアボジ・モータの推進薬グレイン製造の不手際のため多量の気泡が存在していたことにあるとされた。本研究はこれを契機として始められたものである。

一方、我国では、現在コンポジット推進薬の燃結剤は主流が末端カルボキシル基ポリブタジエン(CTPB)からウレタン反応で重合・硬化が進む末端水酸基ポリブタジエン(HTPB)への交代期にあり、再びこの問題への関心が高まったこと、巨大ロケット・モータではワン・バッチでねっ和、直填する推進薬ドウの量が多く、もし気泡発生などで不良セグメントをつくるとばく大な損失を蒙る、といった状況の推移も研究動機になっている。

これまで、グレインに割れ目や細孔を人工的につくり、それらの中へ侵入する火炎の挙動を観察し解析する研究はかなりの数の発表がある^{1)~4)}が、気泡が存在している推進薬を人工的につくり、制御された条件下で燃焼特性を研究した発表は少なく、僅かに理論解析⁵⁾

昭和57年11月10日受理

*宇宙科学研究所

〒153 東京都目黒区駒場 4-6-1

TEL 03-467-1111 内線436

**ダイセル化学工業㈱

〒671-16 兵庫県揖保郡揖保川町馬場 掃磨工場

TEL 0791-72-5415

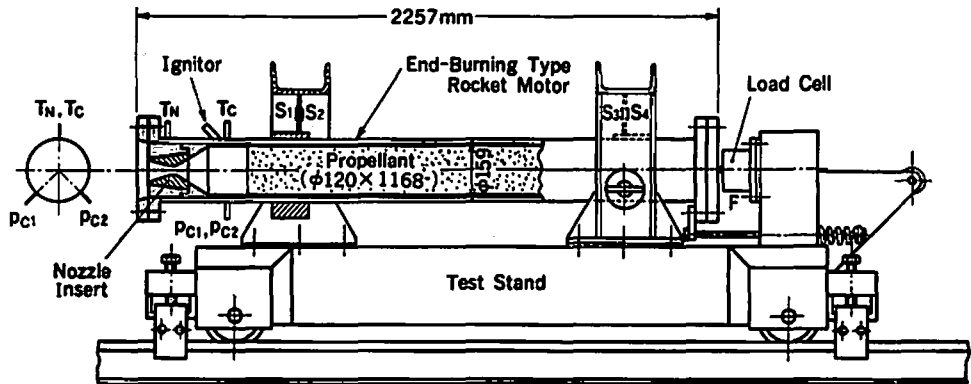
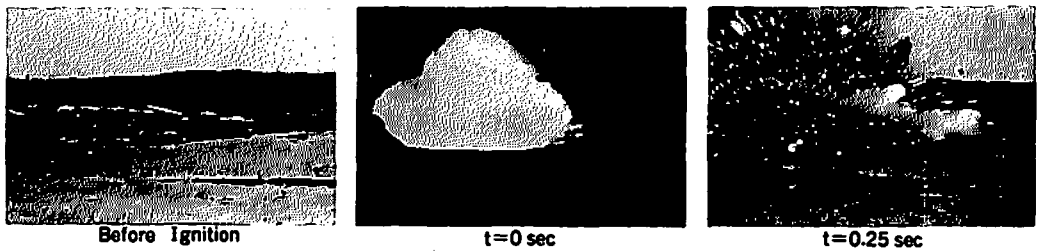


Fig. 1 Abnormal burning of static firing motor loaded with a porous propellant

が目につく程度である。

その理由は気泡の大きさや密度を制御することが難しい点にあり、もしこの技術が確立できれば多泡性推進薬が燃焼速度を飛躍的に増加させる可能性をもつことから、端面燃焼モータや高発射加速度が要求されるロケットへの応用も拓かれよう。

本報は多泡性推進薬の燃焼と爆轟転移研究の一環をなすもので、市販のマイクロスフェア（商品名マイクロバルーン・微小球体）を混入したときの燃焼速度、その他のデータを提供している。

2. 気泡を含む推進薬装填モータの異常燃焼例

ドウをライナ・ビカに注形するとき、真空度と注形速度を調節して、容積率 6.9%と2.0%の大小無数 ($\phi 100 \sim \phi 1000 \mu\text{m}$) の気泡を介在させたグレイン ($\phi 120\text{mm} \times 1168\text{mmL}$) を試作、Fig. 1 に示す端面燃焼モータで地上燃焼させた。この推進薬は重量部で CT PB 20, AP 80, Al 10, 亜クロム酸銅 2 および銅ファイバ ($\phi 0.3\text{mm} \times 30\text{mmL}$) 1 から成る。

Fig. 1 の写真は気泡 6.9% を含む推進薬グレインが着火直後爆轟というべき異常燃焼が発生したときの状況である。気泡 2.0% を含むグレインでは燃焼は不安定であるが、爆轟へは転移せず、前者が 3号雷管で起爆するのに対して後者は不爆であった。この結果と合わせて、製造時の不手際によってグレイン中に気泡が

残った時、この推進薬組成では気泡含有率が 2.0% を越えると燃焼から爆轟へ転移するおそれが大になると思われた。

地上燃焼用実機モータや飛しょうロケットでは、推進薬グレインの見掛比重は設計値より 1% も下まれば、先ず廃棄処分されてしまう。しかし、これは気泡が連絡と互いに接している状態、つまり、焼結金属のようにグレインが通気性をもつ場合には妥当な臨界条件であるが、個々の気泡が完全に互いに独立しているときには、たとえかなり多量に存在していても燃焼から爆轟への転移は、次の実験結果からなかなか起こらないと思われる。

3. ミクロスフェア添加推進薬の燃焼性と爆轟性

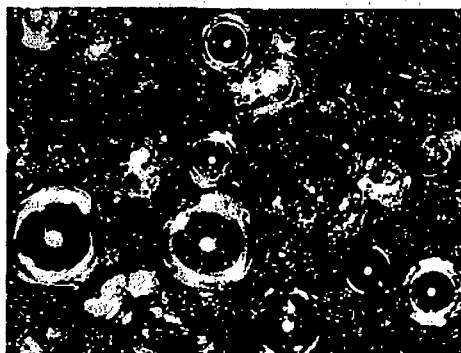
3.1 ミクロスフェア

ミクロスフェアのなかでガラスを原材料とするものはエマルジョンおよびスラリー爆薬の鋭感剤および密度調整剤として知られているが、ここでは無数の独立気泡をグレイン中に介在させる目的でこれらを利用している。Table 1 に本研究に用いた 3 種のミクロスフェア、すなわちカーボン (CB, クレハ化学)、ガラス (GB/15, 東洋ソーダ) およびフェノーリック (PHB, ユニオン・カーバイト) の物性を示す。いずれも推進薬ドウのねつ和中の応力に耐える圧潰強度を有し、顕微鏡下で表面を観察すると Fig. 2 に示すようにミクロスフェア

Table 1 Microsphere specifications

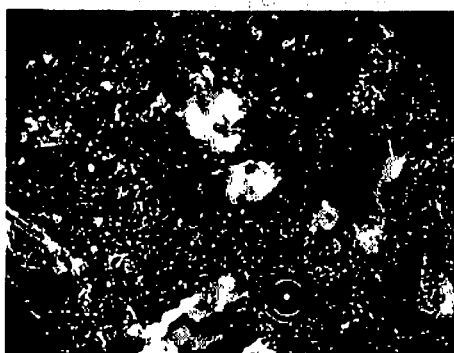
Items \ Classification	Carbon Hollow	Glass Hollow	Phenolic Hollow
Producer	Kureha Chemical Co.	Tôyô Sôda Co.	Union Carbide Co.
Average Diameter (μm)	200	80	43
Diameter Range (μm)	150~350	30~140	5~127
Average Shell Thickness (μm)	5	—	—
Bulk Density (g/cm^3)	0.17	0.15	0.133
Sphere Density [Liquid Displacement] (g/cm^3)	0.35	—	0.265

AP : 80 parts
PB : 20 parts
Microsphere : Carbon Balloon 4 parts (CB-4)



100 μm

AP : 80 parts
PB : 20 parts
Microsphere : Glass Balloon 2 parts (GB/15-2)



100 μm

Fig. 2 Microscope photos of microsphere included propellant

が点在し、殻が破損しているものはほとんど見当たらない。

CTPB 20wt% と AP 80wt% からなる金属成分がない推進薬を標準組成 (CN) とし、推進薬 100 部に対してミクロスフェア 0.5~5 部の間で添加して多泡性推進薬を試作した。

3.2 落錘衝撃感度

Table 2 は落錘衝撃によって評価した爆発感度の比較である。試料名に付記した数字は、/ の次は圧潰強度 (kg/cm^2) を一の次は CN 100 部に対する添加重量部を示す。3 種のミクロスフェアの間で、標準推進薬に添加した場合、衝撃感度を増大させる順に並べると $\text{CB} > \text{GB} > \text{PHB}$ となり、燃結剤に近い性質をもち圧潰強度が低いプラスチック・ミクロスフェアがもっとも衝撃感度が小さく、反対に圧潰強度が高いカーボン・ミクロスフェアが衝撃感度をもっとも大きくしている。たとえば CB を 1 部添加すると、推進薬は約 3.6 vol% の気泡を含むことになるが、この衝撃感度は 4 級と AP の一部を HMX で置換した HTPB 推進薬と

同水準になる。

しかし、衝撃感度のみでミクロスフェア添加推進薬のバルネラビリティを判定するのは早計である。落錘衝撃感度試験法によって推進薬試料が受ける衝撃力はモータ点火および燃焼時のそれとは比べものにならないほど大であり、事実、筆者らのこれらグレインを装填した厚肉モーツになる地上燃焼実験で異常な振舞いは全くみられなかった。

PHB 添加推進薬は落錘感度に限っては標準推進薬のそれと変わらない。フェノーリックと CTPB が同じプラスチックであることから、実際に推進薬を製造する場合、マトリックスに数十 μm 程度の気泡を発生させても、独立気泡ならば衝撃感度に何ら影響をおよぼしていないことは、打上げ可否の判断をするときに参考になろう。

3.3 雷管による起爆試験

6 号雷管による起爆試験では CB, GB および PHB のいずれを混入した推進薬も爆轟には至らず、半爆現

Table 2 Sensitivity of drop hammer tests

Test Sample	Grade	Test Sample	Grade
CN	7	GB/15-1	5
		GB/15-2	4
CB-1	4	GB/15-3	5
CB-3	3	PHB-0.5	7
CB-4	3	PHB-1	7
CB-5	3	PHB-1.5	7

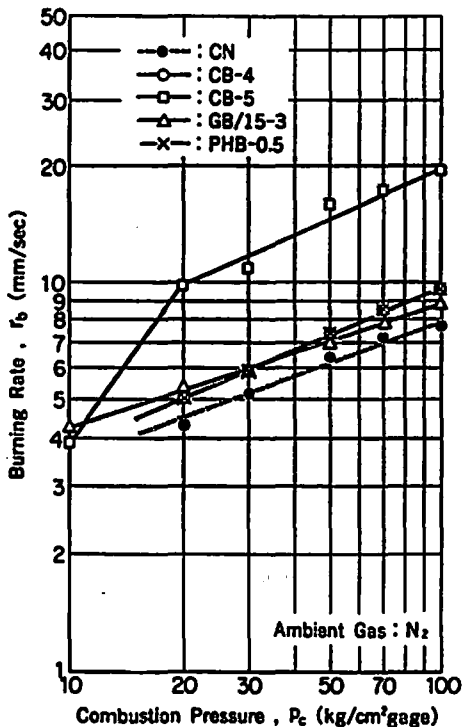


Fig. 3 Linear burning rates of microsphere included propellants¹ (CN: control propellant, the numbers following / and - denote crush pressure by kg/cm² (gage) and parts by weight, respectively)

象も認められなかった。飛散破片の大部分は雷管作動時の衝撃で着火・燃焼するだけであり、落錘衝撃試験で高感度を示したGB添加推進薬でも爆轟せず、地上燃焼実験に供してもまず支障はないとの感触が得られた。

3.4 線燃焼速度

Fig. 3に推進薬ストランドの代表的な見掛線燃焼速度を示す。この結果ではミクロスフェア添加による線燃焼速度の増加は予想外に少なく、気泡含有による燃焼面

積増大から推定した値とはほど遠い。たとえば、1wt%のCBを添加した推進薬は100gr中に 6.7×10^8 個のミクロスフェアを含み、その全表面積は 8.4×10^3 cm²に達するのにもかかわらず、線燃速は5.4~5.7%増すに過ぎない。すなわち、ミクロスフェアは燃焼面積の実質物増加にそれほど寄与できず、かえってGBやCBなどでは燃焼に対して不活性な面さえ現われている。

CB添加量を5部に増やすと、線燃速の増加は顕著になるが、それでも約2倍にとどまっている。PHBあるいはGBを添加すると、重量当たりの燃速におよぼす効果が高まり、3者を比較するとTable 3のようにPHB>GB>CBの順で燃速を増加させるが、気泡含有率で換算するとミクロスフェアの種類に関係がなく同水準にあり、むしろ逆転の傾向さえみられる。

ストランド燃焼器窓を通して燃焼を観察すると、CBおよびGBの一部は気相に飛出した後に破裂するが、大部分は燃焼表面または表面直下で破裂しているようである。しかし、それがマトリックスを破壊し、燃焼剤とAPとの剝離を著しく促すまでには至っていない。

3.5 地上燃焼試験

Fig. 1に示した端面燃焼形厚肉モータを用い、これまでのバルネラビリティ評価データをふまえて地上燃焼実験を行なった。これまで、いずれの種類ミクロスフェアを添加したグレインも異常燃焼を起こす気配は感ぜられなかった。ただし、Fig. 4の燃焼圧力-時間曲線が示唆するようにCBとGBはノズル・スロートを著しく侵食し両者を比較するとGBがやや燃速を高めていることがわかる。

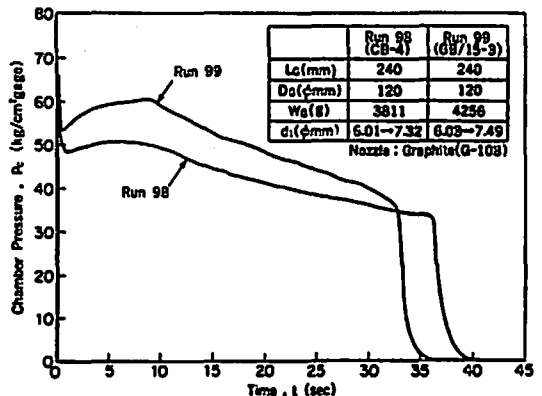


Fig. 4 Combustion pressure-time histories of end burning type propellant grains

4. 考察と結論

以上、微小気泡をグレイン中に介在させるため市販されている3種のミクロスフェアを添加、推進薬のバルネラビリティを人為的に高めようと試みたが、体積率で最大10%の気泡を含んでいる推進薬でも異常燃焼

Table 3 Linear burning rate data (unit: mm/s)

Pressure (kg/cm ²) / Test Sample	10	20	30	50	70	100
CN	—	4.3	5.1	6.3	7.1	7.6
PHB-2	3.9	5.1	6.3	7.6	9.0	—
PHB-2.5	4.0	5.1	6.5	7.9	9.1	—
PHB-3	4.3	5.3	6.6	8.3	9.4	—
GB-3	4.3	5.4	5.9	7.0	7.7	8.9
CB-3	—	4.7	5.6	7.0	7.8	8.4

を起こす兆候はみられなかった。すなわち、グレイン中に ϕ 10~350 μ mの気泡がかなり稠密に分布していても互いに独立し、内部へ深くガスが浸透するのを許さない気泡ならば線燃速はさほど増加しない代わりに爆轟へ転移するおそれも少ない。ただし、このことは端面燃焼形グレインにおける一つの結果であって、内面燃焼形でも妥当であるかどうかはいまのところ確認できていない。

本研究に用いたAPの粒度は前述のように気泡径と同程度である。したがって、燃結剤とAPとの分解速度の差により、ミクロスフェアを添加しなくても燃焼面ではこの位の大きさのピットが生成している可能性がある。したがって、ミクロスフェアが燃焼面の幾何学的形状を顕著に変えることが出来ず、線燃速はそれほど増加しないのは当然と思われる。

結局、ミクロスフェア添加によって実質燃焼面積を上げ、推進薬グレインの初期燃焼面積当たりの推力を飛躍的に向上させ、端面燃焼モータへの応用や高発射加速度を目指すならば、ある臨界径以上のミクロスフェアを用いなければならない。この値が那辺にあるかは次報で述べる予定である。

最後に結論として次の事項を列挙する。

(1)アルミニウム粉を含まないCTPB/AP系推進薬へカーボン、ガラスおよびプラスチック(フェノーリック)と3種のミクロスフェアを添加し、初歩的な実験によってバルネラビリティへの影響を検討したが、それはかなり小さいことを見出した。

(2)線燃速への増加効果は添加重量当たりではPHBがもっとも大で、次いでGB、CBの順となった。ただし、気泡含有率で比較すると3者の差は極めて少なく、むしろ逆転の傾向さえみられる。

(3)通常、ロケットモータ内で発生するじょうらんの強さの範囲ならば、 ϕ 10~350 μ mの気泡がたとえ10%介在していても定常燃焼から異常燃焼へはなかなか転移しない。しかし、このことは気泡が互いに独立して分布している場合であって、気泡が葡萄状に連なっていたり、グレインが通気性をもっているときにはこの限りではない。

謝 辞

この研究は宇宙科学研究所、斎藤猛男博士、青柳鐘一郎飛しょう体開発課長、霜田正隆技官、および大学院学生の協力をうけて遂行された。ここに記して感謝する次第である。

文 献

- 1) Bobolev, V. K., A. D. Margolin, and Chuiko, S. V., "The Mechanism by Which Combustion Products Penetrate into the Pores of Charge of Explosive Material," Doklady Akademii Nauk USSR, Vol. 162, May 1965, pp.388~391.
- 2) Godai, T., "Flame Propagation into the Crack of a Solid Propellant Grain," AIAA Journal, Vol. 8, July 1970, pp.1322~1327.
- 3) Belyaev, A. F., Sukoyan, M. K., Korotkov, A. I., and Sulimov, A. A., "Consequence of the Penetration of Combustion into an Individual Pore," Combustion, Explosion and Shock Waves, Vol. 6, April-June 1970, pp.149~153.
- 4) Kuo, K. K., Chen, A. T., and Davis, T. R. "Convective Burning in Solid Propellant Cracks," AIAA Journal, Vol. 16, June 1978, pp.600~607.
- 5) Kuo, K. K., "Theory of Flame Propagation in Porous Propellant Charges under Confinement," AIAA Journal, Vol. 11, April 1973, pp.444~451.

Combustion and detonation of porous composite propellants

(I) Microspheres included Propellant

Toshio YAMAYA*, Akira IWAMA*, and Harusuke TOKUI**

Generally, it is believed that bubble contamination in the solid propellant grains loaded in rocket motor might induce a serious trouble and make it impossible to accomplish the mission. On the other hand, porous propellant takes an interest since high burning rates can be realized by combustion of porous media. This paper describes some preliminary results obtained with non-aluminized CTPB/AP propellants to which commercially available three kinds of microspheres (carbon, glass, and plastic) were added. The results demonstrate that no these microspheres used as the model materials for producing porous propellant introduce a remarkable elevation in the propellant vulnerability. A comparison in the function for achieving higher burning rates per unit weight became in the order, plastic > glass > carbon microspheres, but at the same level if converted per the bubble volume content. It is concluded that, without vital incident, firing of the propellant grains in which numerous bubbles exist, might be allowed, if the bubbles be distributed independently one another and don't cause the hot product gas to deeply penetrate the unburned region.

(*Institute of Space and Astronautical Science, Ministry of
Education, Science, and Culture

6-1, Komaba 4-chome, Meguro-ku, Tokyo 153, Japan

**Daicel Chemical Industries Co., Harima Plant

805, Umaba Ibo-gawa-cho, Ibo-gun Hyogo-Pref. 671-16, Japan)