

AN系固体推進薬の燃焼特性へのマグナリウム (Mg-Al合金)による影響

村田博一^{*}, 東 保男^{*}, 東原千春^{**}, 霜田正隆^{***},
山谷寿夫^{***}, 堀 恵一^{***}, 齋藤猛男^{***}

現在、過塩素酸アンモニウム(AP)の代替酸化剤として塩素を含まない硝酸アンモニウム(AN)を用いる多くの研究が行われている。しかしAN系推進薬を用いるには、AP系推進薬に比べ劣る燃焼性能(着火性や燃焼速度)の向上が必要である。よって、マグナリウム(Mg-Al合金)を混入することにより、AN系推進薬の燃焼性能の向上を目的とした。ANの熱分解開始温度はMg-Alの混入により、約40℃減少した。またMg-AlはANの熱分解形式を2段階に変えた。1段階目ではANの分解が生じ、2段階目ではANの分解と同時に、融解ANあるいはANの酸化性熱分解気体とMg-Alの間で発熱酸化反応が生じMg-Alの酸化物が残った。AN系推進薬へのMg-Alの混入は、Al入り推進薬の低圧側での燃焼持続性を改善し、燃焼速度の増加を実現させた。Mg-Al量の増加と共に、AN系推進薬の燃焼速度は増加した。AN/HTPB/Mg-Al(48/32/20)の組成の推進薬は5MPaで3.58mm/sの燃焼速度を得、圧力指数は0.3であった。

1. 結 言

近年宇宙開発を目指す先進国では、コンポジット系固体推進薬の燃焼プルーム中の塩化水素の低減化のための対策研究がなされている。その一つにクリーンな硝酸アンモニウム(AN)を大型固体ロケット推進薬の酸化剤として用いることが試みられている。我が国においても、ANを過塩素酸アンモニウム(AP)の代替酸化剤として用いるための研究が数多く火薬学会で講演発表されてきた^{1)~5)}。AN系推進薬はAP系推進薬より燃焼性能が劣るので、ANを金属燃料、高エネルギー酸化剤、高エネルギーバインダ、高エネルギー可塑剤と組み合わせることにより、燃焼性能の向上を図る必要がある。AN系推進薬への金属燃料としては、アルミニウム(Al)とマグネシウム(Mg)⁶⁾が考えられる。Alは酸化熱が大

きいという利点を持つが、AN中では燃焼効率が悪い。AN中でのAlの反応性に関する研究が中村等^{1)~4)}によってなされてきた。AN/Al=90/10, 82/18, 70/30の試料のAr20kg/cm²での燃焼より、Alの酸化率は、AN/Alが化学量論比である82/18、および酸素バランスが負になる70/30でも、ほぼ100wt%であった¹⁾。ANの反応性はAlの種類により異なり、ステアリン酸とテフロンでコーティングしたピグメントアルミニウム(p-Al)はANとの反応性に富むことが分かった。更に、添加物としてAlの酸化を促進されている種々なハロゲン化物の内、LiFとNaFがAN/p-Al/additive=90/10/5の組成においてAlとANの反応性を増大した²⁾。添加物としてのクリオライ³⁾および溶解フラックスの効果も大きく、これらは、Alの含有率が高い程Alの酸化率を高めた³⁾。又、AN/p-Alの酸化反応促進効果として、金属酸化物中ではMnO₂の効果が大であった。反応熱測定結果より、これらの添加物は含有率1wt%程度で最大の反応熱を示した⁴⁾。一方、篠崎等は⁵⁾⁶⁾、AN/HTPB=90/10の推進薬の燃焼速度の圧力指数は0.87と大きいが、Alを混入することにより、AN/HTPB/Al=60/20/20の圧力指数を0.32と低下させることができ、5MPaで両者とも2.2mm/sの燃焼速度を得た。又、AN/Al系では圧力指数0.36と低く、燃焼速度は、1MPaで8mm/sに達した⁵⁾。

2000年2月1日受理

^{*}東海大学大学院工学研究科工業化学専攻
〒259-1207 平塚市北金目1117

TEL 0463-58-1211

FAX 0463-50-2012

^{**}細谷火工株式会社 技術開発センター

〒197-0801 東京都あきる野市菅生1847

TEL 042-559-2578

FAX 042-559-2413

^{***}文部省宇宙科学研究所

〒229-8510 相模原市由野台3-1-1

TEL 042-759-8082

FAX 042-759-8283

e-mail murata@pub.isas.ac.jp

更に (AN+AP)/HTPB/Al=60/20/20 の推進薬中の AP と AN の比率を変化させた結果、AP の比率が高いほど燃焼速度は大きかった。熱分析実験から、AN と AP の混在系では、2 段階分解を行い、AP40wt% 以上での Al の酸化率は 100wt% に達した⁶⁾。これは AN=20wt%、AP=40wt% でほぼ AN と AP の有効酸素量が、Al と化学量論比になっているからであると述べられている。一方、Mg は AN に対し燃焼効率は良いが、Al に比べ密度が小さく比推力も低下する。桑原等は、AN/Al=50/50、AN/Mg=50/50 の燃焼性能を比較し、Al の燃焼速度はビエユの法則に従うが、Mg の燃焼速度は 2MPa 付近で飽和に達した。Al 粒子の表面積がある一定以上になると燃焼速度は減少したが、Mg の場合には表面積が増加するにつれて増加した⁷⁾。次に中村等は、AN と種々な組成の Mg-Al の反応性に関し研究し、Mg/Al=3/7 と 6/4 の組成比の Mg-Al が AN との反応性が良かった⁸⁾。そこで低公害推進薬として、Mg-Al 含有 AN+AP/HTPB 推進薬の熱反応性、燃焼反応性、燃焼生成物の酸性度等の測定を行い、推進薬中の Mg-Al の熱反応性は Al とほぼ同等であり、AP20wt% 推進薬において、Mg-Al は燃焼ガスと燃焼残渣の両方の pH 値を中和値にさせることができた⁹⁾。

本研究では AN に対する Mg の着火・燃焼のし易さと Al の大きい燃焼熱と密度を活かすため、融点が共融点に近い 460°C である Mg/Al=50/50 である Mg-Al 合金による AN の熱分解および AN 系推進薬の燃焼性の活性化を試みた。

2. 実験および推進薬組成

2.1 試料

本研究で使用した Mg-Al 合金は、質量比で Mg/Al=50/50 である。AN の粒径範囲は 100~150 μm で

ある。バインダは、末端水酸基ポリブタジエン (HTPB) をイソフォロンジイソシアネート (IPDI) で硬化させたものである。バインダ 20wt% の推進薬は、可塑剤としてジオクチルアジペート (DOA) をバインダ/可塑剤=9/1 の割合で加えた。Table 1 に本研究で使用した試料組成を示す。a-1~b-5 は AN の熱分解への Mg-Al の影響を見るための混合物試料であり、これに使用した Mg-Al は 100 μm 以下の粒子で 40 μm にピークを持つ。c-1~d-5 は熱分解および燃焼速度測定用推進薬試料でバインダを 20, 25wt% とし、AN と Mg-Al を合わせて各々 80, 75wt% 含み、推進薬中の AN/Mg-Al の比が b-1~b-5 に等しい推進薬試料である。c-1~c-5 の試料における Mg-Al の粒径範囲は 100~150 μm、d-1~d-5 の試料における Mg-Al の粒径は 50 μm 以下である。

2.2 熱分析

熱分析は示差熱分析 (DTA) と熱重量測定 (TG) を行った。DTA は理学電機製高圧 DTA を使い、石英試料セルに約 5 mg の試料を取り、0.1MPa の Ar あるいは N₂ 雰囲気下で加熱速度 5, 10, 20°C/min で測定した。これより、結晶移転点、融点、分解温度の吸熱や発熱ピーク温度を求めた。

TG は真空理工製 TGD-5000RH を使い、石英試料セルに約 10mg の試料を取り、0.1MPa の Ar あるいは N₂ 雰囲気下で加熱速度 5, 10, 20°C/min で測定した。全ての試料に対し重量減少が起こる温度を分解開始温度とし、推進薬試料 (c-1~c-5) では発熱を伴う急激な重量減少が生じる温度を着火温度とした。

2.3 線燃焼速度の測定

チムニ型燃焼器を用い、7×7×60mm のストランド状試料を N₂ 加圧下で燃焼させた。燃焼速度は、試

Table 1 Composition of samples (wt%)

	a-1	b-1	b-2	b-3	b-4	b-5	c-1	c-2	c-3	c-4	c-5	d-1	d-2	d-3	d-4	d-5	e-1	e-2
AN		100	90	80	70	60	80	72	64	55.6	48	75	67.5	60	52.5	45	90	67.5
Mg-Al	100		10	20	30	40		8	16	24	32		7.5	15	22.5	30		
Al																	10	7.5
HTPB							16.6	16.6	16.6	16.6	16.6	23	23	23	23	23		23
IPDI							1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	2	2	2	2	2		2
DOA							2	2	2	2	2							

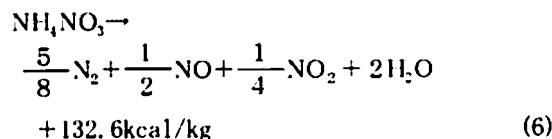
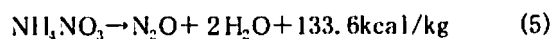
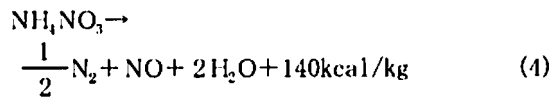
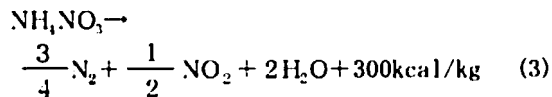
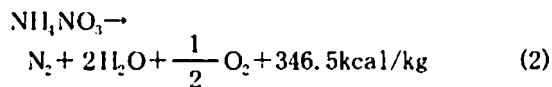
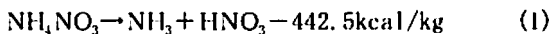
料中央部分に20mm 間隔で通された0.25mm^φの2本のヒューズワイヤの火災による融断時間を測定し求めた。また側面燃焼を避けるため試料側面をエポキシ樹脂でコーティングした。

3. 結果および考察

3.1 示差熱分析と熱重量測定

Fig. 1(a)にMg-Al合金および b-1~b-5 までのANのみとAN/Mg-Al混合物試料各々のDTA曲線を、Fig. 1 (b)にそれらの熱重量測定結果を示す。

Fig. 1(a)において、a-1試料のMg-Al合金の460℃における吸熱は融点を示す。Mg-Alは500℃以上になると発熱を示すが、これは融解後原子の振動が起こり易くなり結晶格子からの歪エネルギー等の放出によるものではないかと考えられる。ANのみのb-1試料はいくつかの相転移を示した後、170℃に融解吸熱ピークを、310℃に熱分解による吸熱ピークを示す。Mg-Alを10wt%含むb-2試料は176℃と315℃付近に発熱ピークを示し、その後400℃以上まで小さいながらも発熱性を示す。450℃付近にMg-Alの融解による小さい吸熱ピークを示す。ANの分解反応式としては、次の(1)~(6)式が知られており、(1)式のANのアンモニアと硝酸への分解反応以外は発熱反応である¹⁰⁾。



試料 b-2~b-5 における 176℃及び 300℃前後の発熱ピークは、上記のANの(1)式に基づく吸熱分解反応に、Mg-Alの影響により(2)~(6)式の発熱分解反応のいくつかが誘起され、それらが複雑に組み合わさった結果であると考えられる¹¹⁾。第2ピーク以降の低いながらも発熱は、Fig. 1(b)の重量減少曲線から、融解ANと固体 Mg-Al との凝縮相酸化反応、

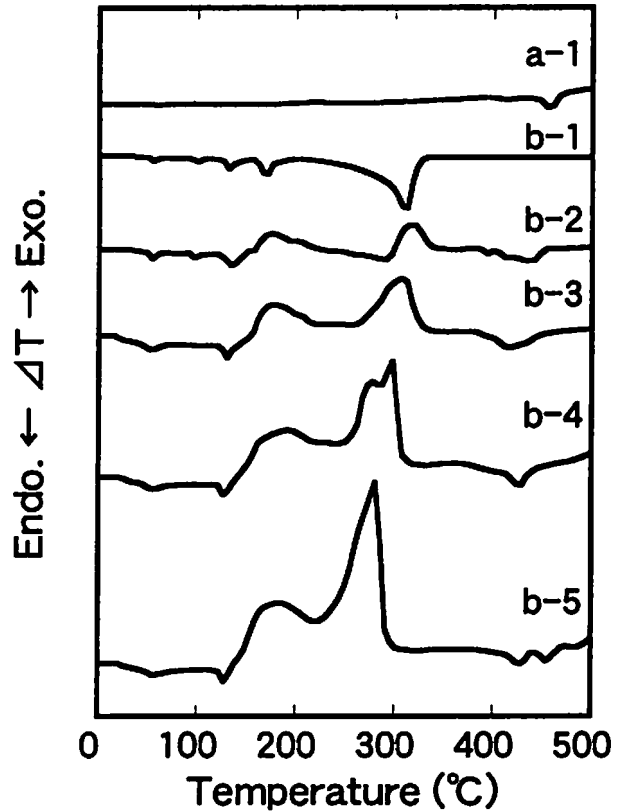


Fig. 1 (a) DTA curves (a-1~b-5)

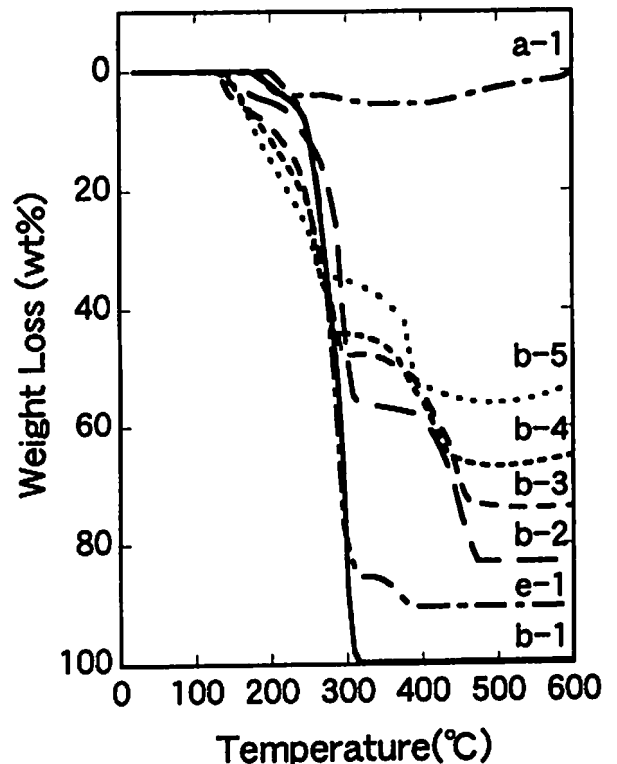


Fig. 1 (b) TG curves (a-1~b-5,e-1)

あるいはANの熱分解生成物と固体Mg-Alとの不均質酸化反応によるものだと考えられる。ANは170°Cを通過すると、完全に融解しMg-Alとの接触が良くなり、Mg-Alの影響を受け易くなると同時に熱分解を開始している。Mg-Al含有量の増加に従い、310°Cの発熱ピークは280°C位の低温にシフトし、同時にピーク面積も増加する。一方、176°Cのピーク面積もMg-Al含有率の増加と共に大きくなる。

Fig. 1(b)に試料 a-1, e-1 と b-1~b-5 のN₂雰囲気中でのTG結果を示す。Mg-Alは200°C付近から少し、不純物の蒸発と思われる重量減少を示し、更に500°C以上の高温では重量増加を示した。Mg-AlはAr雰囲気中で600°C迄加熱しても殆ど増加しない。従って上記のMg-AlのN₂雰囲気中での重量増加はMgの窒化物Mg₃N₂が生成されたと考えられる。ANのみの重量減少は1段階で進行するが、AN/Mg-Al系では二段階で進行する。低温側での1段階の重量減少は主にANのみの重量減少であり、ANが融解し始めるとANとMg-Alの接触が良くなり、Mg-AlによりANの発熱分解が促進される。各試料のANのみに基づく1段階の重量減少割合としては、Mg-Al含有量の増加とともに減少するが、ANの減少割合としてはほぼ60wt%前後で一定となる。Fig. 2はb-2試料の300°Cにおける加熱中断後のSEM写真であり、ANがMg-Al表面を覆っている様子が分かる。高温側での2段階の重量減少は、ANの熱分解による減少とその酸化性分解気体とMg-Alの不均質酸化反応による重量増加からなる。Al入り試料e-1 (AN/Al=9/1)でも2段階分解を行うが、2段階の重量減少は約5wt%である。残渣は10wt%で初期Alwt%と殆ど変わらずAlの酸化反応は生じていない。

理論的には、式(2)中のANからの分解生成物O₂がMg/Al=50/50のMg-Alを完全に酸化する時の化学量論比はAN/Mg-Al=3.87/1であるから、b-2

試料は酸化剤過剰、b-3は化学量論比に近く、b-4, b-5試料は酸化剤不足となる。各試料について、Table 2の3列目には2段階反応後の残留物wt%、4列目には含有Mg-Alが完全に酸化された場合の残留物wt%、5列目にはMg-Al中のMgだけが完全酸化された場合の残留物wt%を示す。Table 2に示されるように、b-2試料では最終的に約16.4wt%の残渣が存在し、Mg-Al含有量の増加と共に増加する。また優先的にMgが酸化されると仮定した場合、b-2試料の残留物wt%は酸化剤過剰のためMgのみが100wt%酸化した場合より大きくなり、Mg-Al中のAl成分も69wt%酸化した計算になる。b-3試料ではMg成分のみが83wt%酸化され、Mg-Al含有量の増加と共にb-4, b-5試料ではMg成分の酸化率も40wt%前後に減少する。

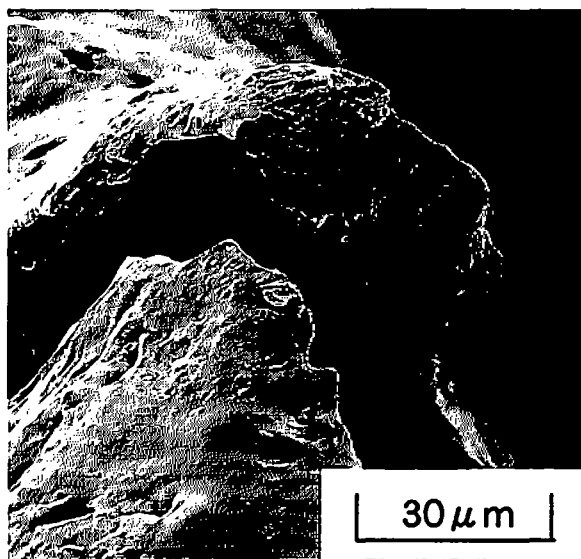


Fig. 2 Scanning electron micrograph of mixture (b-2) at 300°C

Table 2 Experimental and theoretical residue wt%

	Mg-Al	Experimental	Theoretical	
			Complete oxidation of Mg+Al	Complete oxidation of Mg
b-2	10	16.4	17.7	13.3
b-3	20	24.6	35.4	26.6
b-4	30	33.5	53.1	39.9
b-5	40	45.0	70.8	53.2

Fig. 3 は、試料 b-1~b-5 の各々 80wt%にHTPB 20wt%を加えた推進薬試料のDTA曲線である。c-1 試料は 230°CにANとバインダ間の発熱ピークが見られる。c-2 試料では 240°Cに大きい、260°Cに小さい2つの発熱ピークを示し、Mg-Al含有量の増加と共に高温側のピークが大きくなることより、低温側のピークは、ANとバインダ間の反応によるものであり、高温側のピークはMg-Alの関与した反応である。AN/Mg-Al=8/2である c-3 試料からMg-Alに基づく反応が支配的になりc-5 試料では290°Cで1つのピークになる。

Fig. 4 は試料 b-1~b-5 の各々 75wt%にHTPB 25wt%を加えた推進薬試料のDTA曲線である。バインダ量が多いためMg-Al効果が薄れ、Mg-Al含有量の増加に伴う発熱ピークのシフトは緩やかであるが、AN/Mg-Al=6/4のd-5 試料になって始めて急激な発熱ピークのシフトが見られMg-Alに基づく反応が支配的になる。

3. 2 分解開始温度と着火温度

Table 3 に20°C/minの加熱速度における熱重量測定実験から求めた熱分解開始温度と着火温度を示す。値は2回の平均値である。分解開始温度は、AN/Mg-Al系のb-2~b-5では約130°CとANのみ(177°C)よりも低温化している。HTPB20wt%推進薬試料c-1~c-5では約165°C、HTPB25wt%推進薬試料d-1~d-5では約175°Cと、Mg-Alの含有量には関係なく、バインダ量の増加と共に高温化している。これはMg-AlとANの接触がバインダにより妨げられた結果であり、ANの融解開始後熱分解が開始される。

一方、着火温度は、試料c-4とc-5の場合以外、分解開始温度同様バインダ量が増加すると高くなった。バインダが少なく、AN量が少ないc-4、c-5試料の着火温度が260°Cと、c-1、c-2、c-3の着火温度205°Cと比べて高かったこと、バインダを含まないAN/Mg-Al系試料では着火が生じなかったことから、着火はANとバインダ間の反応で開始されると考えられる。従って、バインダに対しMg-Alの占める割合が大きい試料ではMg-Alは熱吸収源として働き、着火を遅らせる作用をしていると考えられる。また、比較のためのAN/Al=90/10の試料e-1の分解開始温度195°Cは、AN/Mg-Al=90/10のb-2試料より60°C高く、ANのみの分解開始温度より20°C高温化した。表面が酸化皮膜で覆われているAlは、Mg-AlよりANとの反応性が低下している。しかし、Al含有推進薬試料e-2は、それに相当するMg-Al含有推進薬試料d-2の分解開始温度、着火温度と

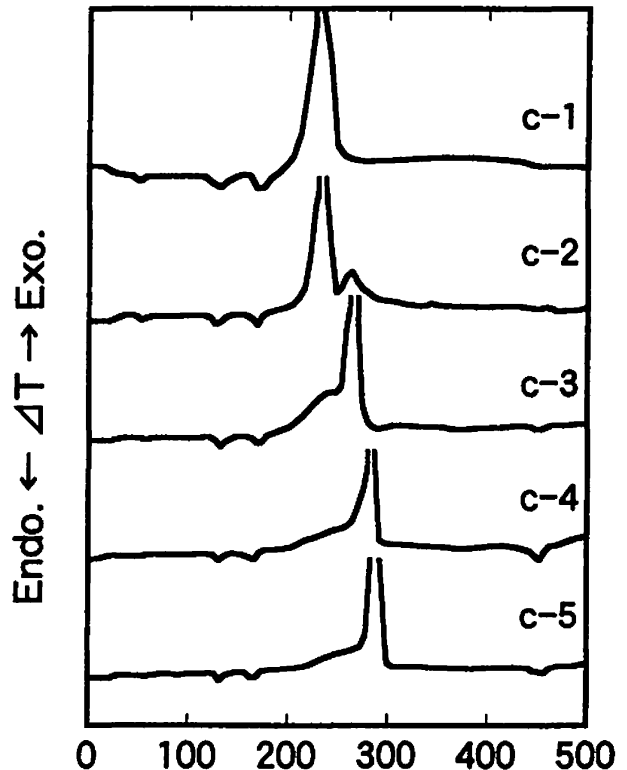


Fig. 3 DTA curves (c-1~c-5)

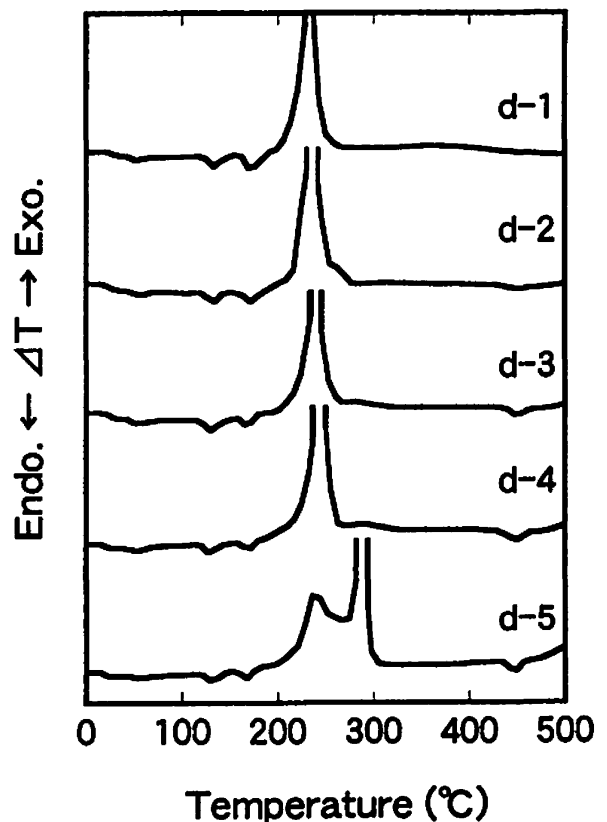


Fig. 4 DTA curves (d-1~d-5)

同程度であり、バインダを含む推進薬試料中では、Mg-AlとAlの反応性に差がなくなってくる。

3.3 線燃焼速度

Fig. 5 にHTPB20wt%の推進薬の線燃焼速度を示す。c-1推進薬試料は2MPa付近に燃焼限界が存在した。Mg-Alの含有量の増加に伴い、線燃焼速度が増加し、7MPa以下ではMg-Alの含有量が一番多いc-5推進薬試料が最も大きく、5MPaにおける値は3.58mm/sで、圧力指数は0.3となった。この値は、Al含有AN系推進薬の圧力5MPaにおける燃焼速度2.2mm/s⁵⁾、1000psiにおける燃焼速度2.79mm/sより大きかった¹²⁾。

Fig. 6 にHTPB25wt%推進薬の線燃焼速度を示す。ANとバインダのみからなるd-1試料の5MPaにおける線燃焼速度は0.76mm/s、圧力指数は0.26となった。燃焼限界圧力は、約3MPaとc-1推進薬試料に比べて増加した。Fig. 5と同様に、Mg-Alの含有量の増加に伴い線燃焼速度は増加し、d-5の5MPaにおける線燃焼速度は2.06mm/sで、圧力指数は0.55となった。Al含有推進薬e-2の燃焼速度は、d-1と同程度であり、燃焼限界は約2MPaであった。d-2推進薬は圧力指数も燃焼速度も、e-2推進薬より大きかった。

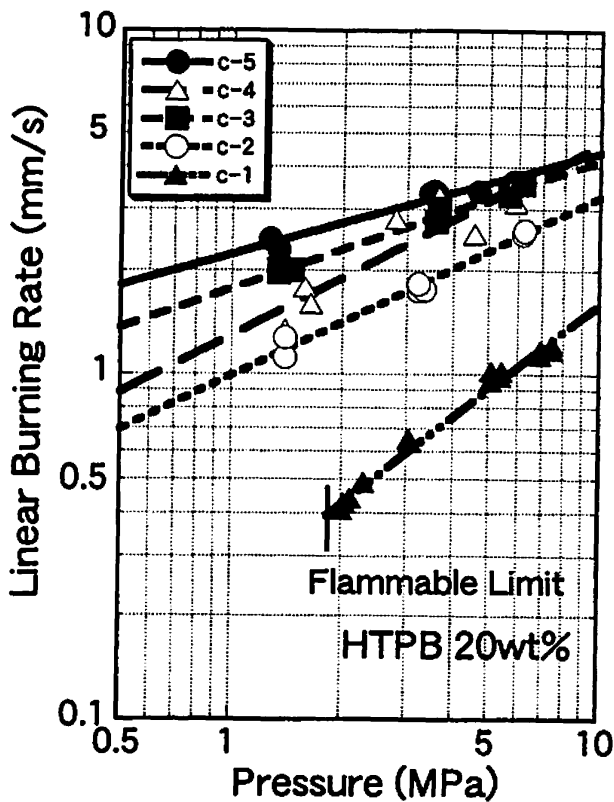


Fig. 5 Linear burning rates (c-1~c-5)

Table 3 Initiation temperature of thermal decomposition and ignition (°C)

	b-1	b-2	b-3	b-4	b-5	c-1	c-2	c-3	c-4	c-5	d-1	d-2	d-3	d-4	d-5	e-1	e-2
Initiation temperature of thermal decomposition	177	138	130	128	127	165	165	167	166	163	167	175	174	172	175	195	170
Ignition temperature	-	-	-	-	-	205	206	203	260	261	205	220	217	222	215	-	208

従って、Mg-Al含有とAl含有推進薬試料を比較すると、Mg-Alを混入することにより、低圧側での燃焼持続性、高圧側での線燃焼速度の向上がみられた。Mg-Al含有推進薬では、Mg-Al含有量の増加と共に燃焼速度が増加すること、およびHTPB 20wt%推進薬の燃焼速度は、HTPB25wt%推進薬より低圧側で3倍、高圧側で約1.5倍大きいことは、Fig.3と4のDTAの実験結果に照らして、表面近傍における融解ANとMg-Alの凝縮相酸化反応、あるいはANからの熱分解酸化性気体とMg-Alとの不均質酸化反応が大いに燃焼速度に影響を与えていることを示す。両組成推進薬ともMg-Al含有量の増加と共に、燃焼速度は7,8MPaにおいて収束する傾向がみられた。これは、圧力の増加と共に、気相中での分解ガスの拡散過程が燃焼速度を律速するようになってくるため、Mg-Al含有量が燃焼速度に影響を与えなくなると考えられる。

3.4 理論比推力 (I_{sp})

理論比推力 (I_{sp}) は SEA Software 社の『TEP』プログラムを用いて計算し、チャンバ内圧5MPa、開口比8の条件下における移動平衡の真空比推力である。

Fig.7はMg-Al含有AN系推進薬の I_{sp} をAP/Al系推進薬と比較したものである。Mg-Al合金の生成熱が未知であるので、Mg-Alを重量比でMg/Al=1/1の混合物と仮定した。両推進薬ともHTPB 20wt%推進薬の I_{sp} はHTPB25wt%の I_{sp} より大きい。HTPB20wt%におけるAP/Al系推進薬とAN/Mg-Al系推進薬を比較すると、AP/Al系推進薬の最大の I_{sp} はAl16wt%で270秒になるが、AN/Mg-Al系推進薬では最大値の I_{sp} は、含有量が24wt%の時約262.7秒になった。

次に、Mg-Alが結晶格子中に歪みエネルギーとして、+5kcal/molの正の生成熱を所有すると仮定し、HTPB25wt%の時の I_{sp} の計算結果をFig.7に示す。比推力最高の24wt%Mg-Al含有量の時264.4秒となり、生成熱0kcal/molの時の262.7秒に比べ1.5秒の増加になった。しかし、Mg-Alの生成熱の計算値として、-0.1kcal/molと言う計算値も存在し¹³⁾、Mg-Alの歪みエネルギーの I_{sp} への効果は期待できない。

4. 結 論

AN/Mg-Al混合物のDTA, TG実験より;

- 1) Mg-AlはANの吸熱分解反応を放熱分解反応に変え、分解開始温度を約40℃低温化した。

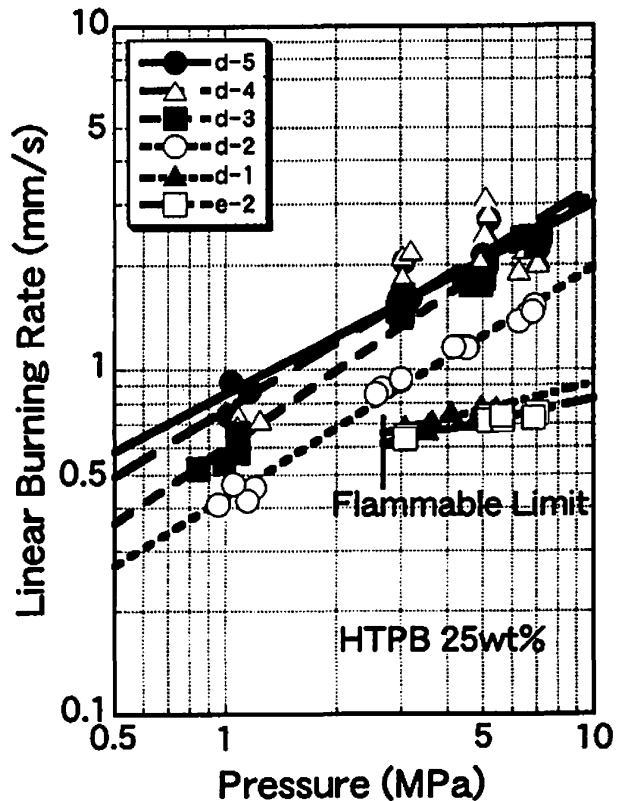


Fig. 6 Linear burning rates (d-1~d-5,e-2)

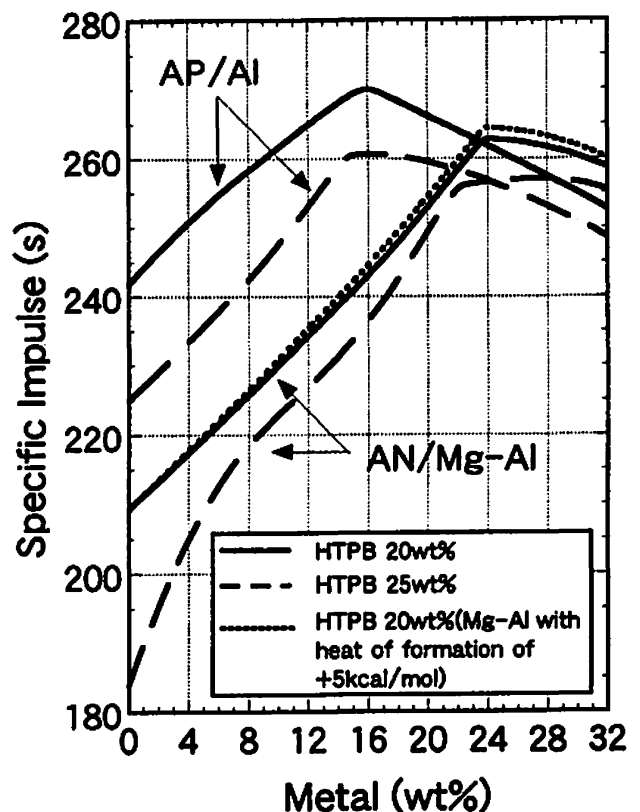


Fig. 7 I_{sp} of magnesium-based composite propellants

2) Mg-AIはANの1段階熱分解反応を2段階熱分解反応に変えた。実験範囲内では、低温側の1段目でANの含有量に関係なくANの約60wt%が分解した。高温側の2段目でANの残りの40wt%の分解と同時にAN/Mg-AIとAN間の凝縮相反応や、AN/Mg-AIとANからの酸化性分解ガスとの不均質酸化反応が起こった。

3) AN/AI (90/10)混合物は、ANの分解開始温度を20℃高めた。また、ANの分解反応を2段階反応に変化させた。しかし2段目での重量減少は非常に小さく、AIの酸化反応は起こらなかった。

AN/HTPB/Mg-AI推進薬のDTA, TG実験より;

4) 推進薬の熱分解反応において、Mg-AI含有量の増加と共にMg-AIとAN間の凝縮相発熱反応が支配的になってくる。バインダ量の増加はその反応を妨げる結果となる。

5) 推進薬の熱分解開始温度は、ANとMg-AI間へのバインダの介在によりMg-AIのANへの分解促進効果が妨げられ、AN/Mg-AI混合物より高温化する。バインダ量が20wt%から25wt%に増加すると分解開始温度も高温化する。

6) 推進薬の着火温度も、バインダ量の増加と共に高温化した。従って、ANとHTPB間の反応が着火開始反応であると考えられる。Mg-AIは熱吸収源として働き着火を遅らせる。

7) AI含有推進薬(AN/HTPB/AI=67.5/25/7.5)は、それに相当するMg-AI含有推進薬の分解開始温度、着火温度と同程度であり、バインダを含む推進薬試料中では、Mg-AIとAIの反応性に差が生じなくなってくる。

AN/HTPB/Mg-AI推進薬のストランドバーナ実験より;

8) 燃焼速度はMg-AIの含有量の増加と共に増加した。

9) HTPB20wt%推進薬の燃焼速度はHTPB25wt%推進薬より大きい。

10) AN/HTPB/Mg-AI推進薬の燃焼速度は、Mg-AIの凝縮相酸化反応に律速されるが、圧力の増加と共に分解ガスの拡散過程が律速になり、Mg-AIの含有量には依存しなくなる。

11) AN/HTPB/Mg-AI推進薬はAN/HTPB/AI推進薬より低圧側での燃焼持続性と燃焼速度を向上させた。

AN/HTPB推進薬にMg-AIを混入することにより、AN系推進薬の燃焼速度として5MPaで3.58mm/sを得た。今後、さらに燃焼速度を増加させるためにニトロ可塑性剤やGAPバインダを使用する予定である。

文 献

- 1) 荒牧昌作, 児玉多朗, 中村英嗣, 原泰毅, 工業火薬協会 1993年度春季研究発表講演要旨集, pp. 169-170(1993)
- 2) 加茂賢治, 三宅大二, 中村英嗣, 原泰毅, 加藤一成, 工業火薬協会昭和63年度春季研究発表講演要旨集, pp. 65-66(1988)
- 3) 荒牧昌作, 中村英嗣, 原泰毅, 加藤一成, 工業火薬協会平成2年度秋季研究発表講演要旨集, pp. 3-4(1990)
- 4) 奥永一郎, 加茂賢治, 中村英嗣, 原泰毅, 加藤一成, 清水治昭, 工業火薬協会平成元年度春季研究発表講演要旨集, pp. 5-6(1989)
- 5) 篠崎 昇, 桑原卓雄, 工業火薬協会 1993年度春季研究発表講演要旨集, pp. 115-116(1993)
- 6) 篠崎 昇, 桑原卓雄, 光野実, 工業火薬協会平成3年度秋季研究発表講演要旨集, pp. 32-33(1991)
- 7) 桑原卓雄, 篠崎 昇, 工業火薬協会平成4年度春季研究発表講演要旨集, pp. 63-64(1992)
- 8) 荒牧昌作, 中村英嗣, 村上信義, 原泰毅, 加藤一成, 工業火薬協会平成4年度春季研究発表講演要旨集, pp. 120-121(1990)
- 9) M. Brewster, T. Sheridan and A. Ishihara, "Ammonium Nitrate-Magnesium Propellant Combustion And Heat Transfer Mechanisms", AIAA paper 91-2195
- 10) Tadeusz URBANSKI, Chemistry and Technology of Explosives, Vol. II, p. 455, Pergamon Press (1965)
- 11) 原泰毅, 長田英世, 工業火薬協会誌, Vol. 31, No. 4, pp. 236-243(1970)
- 12) T.P. Russell and T.B. Brill, Combustion and Flame, pp. 393-401(1989)
- 13) Madelung, O. (Editor), "LANDOLT-BORSTEIN", Vol. 5a, p. 200, Springer-Verlag (1991)

The effect of magnalium (Mg-Al Alloy) on combustion characteristics of ammonium nitrate-based solid propellant

Hirokazu MURATA^{*}, Yasuo AZUMA^{*}, Tiharu TOHARA^{**}, Masataka SIMODA^{***},
Tosio YAMAYA^{***}, Keiichi HORI^{***} and Takeo SAITO^{***}

Recently, many studies have been conducted on "chlorine-free" ammonium nitrate (AN) which might replace ammonium perchlorate (AP) in solid composite propellants. However, it is necessary to improve combustion characteristics of AN-based composite propellants, such as ignitability and burning rate. Therefore, the present study aims at improving combustion characteristics of AN-based composite propellants with magnalium (Mg-Al alloy) as metal fuel. Magnalium decreased decomposition temperature of AN by 40°C and transforms the form of AN thermal decomposition into two-stage reaction. At the first stage only AN decomposes and at the second stage melted AN and/or oxidant gases issued from AN cause condensed reaction or heterogeneous reaction with solid magnalium. The oxide of magnalium is produced as a residue. Magnalium-containing AN-based propellants are superior to Al-containing AN-based ones in the self-sustaining burning at low pressures and burning rates. The burning rate of AN-based propellants increases with content of magnalium. The propellant with the formulation of AN/HTPB/Mg-Al = 48/32/20 (wt%) showed the burning rate of 3.58mm/s at 5MPa and the pressure exponent of 0.3.

(^{*}Department of Engineering Chemistry, Faculty of Engineering, Tokai University, 117 Kitakaname, Hiratsuka, Kanagawa 259-1292

^{**}Technical Development Center, Hosoya Kako Co., Ltd., 1847 Sugao, Akiruno, Tokyo 197-0801

^{***}The Institute of Space and Astronautical Science, 3-1-1 Yoshinodai, Sagami-hara, Kanagawa 229-8510)