

ポリブタジエン／過塩素酸アンモニウム推進薬の 炭酸ガス・レーザによる低圧着火（第2報）

—ヘリウム，アルゴンおよび酸素雰囲気における
着火特性地図の作成と振動着火現象について—

斉藤猛男*，青柳鐘一郎*，岩間彬*

CTPB/AP推進薬についてヘリウム，アルゴンおよび酸素雰囲気における炭酸ガス・レーザ着火挙動を正常着火，放射支援着火，振動着火および不着火に分類し，それぞれの発生領域を決定した着火特性地図を作成した。振動着火現象は走査電顕観察によりCTPBの分解反応が低圧，低放射熱流束条件のもとではAPのそれより遅れ，その上炭素質殻をつくり，未反応部推進薬への熱伝達が一時的に妨害され，その分解反応が周期的に変動する結果もたらされると推定した。

1. はじめに

前報¹⁾²⁾で筆者らは減圧雰囲気にてコンポジット推進薬をレーザ着火させると，推進薬の組成と寸法，雰囲気の種類，圧力，放射強度および放射時間によって決定される領域でそれぞれ異なる着火挙動が現われることを指摘した。この結果をわかりやすくまとめるために，代表的な雰囲気を選んで着火特性地図を試製してみた。また，その間になされた実験を通じて新たに発見された振動着火領域を地図上に示すとともにその生成原因についても言及する。

2. 着火特性地図の作製

炭酸ガス・レーザを用いCTPB/AP推進薬について低放射熱流束と低雰囲気圧条件下で着火実験を行ない，アルゴン，ヘリウムおよび酸素雰囲気の3種における着火時間と雰囲気圧との関係を放射熱流束をパラメータにして示したのが図1である。区別されるべき着火挙動の種類は次の4つで，本図にはそれぞれの発生領域が分けられている。ただし，その境界は隣り合う領域において固有の着火挙動が非連続的に起こることを意味するものではなく，各領域でその現象が優越していることを表わしている。

(I) 定常着火領域

ここでは推進薬はいったん着火すればただちにレーザ照射を打切っても必ず定常燃焼へと展開する。

(II) 放射支援着火領域

発端火炎が現われた時点で直ちにレーザ照射を打切ると消火してしまう。ただし領域(I)に近い条件のもとでは，着火後暫くの間レーザ照射を続けければ消火

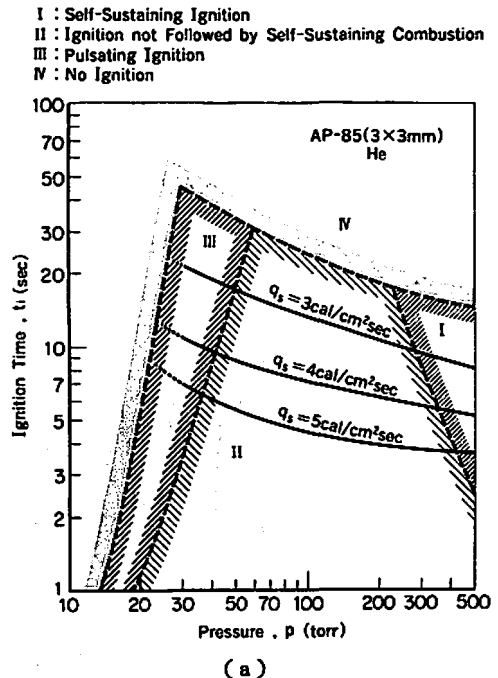
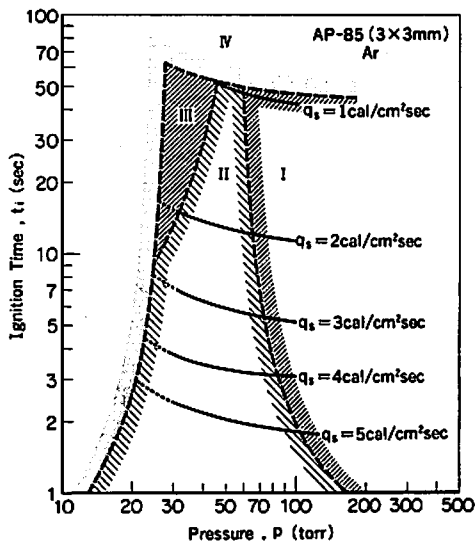


Fig. 1 Ignition characteristic map in helium, argon and oxygen environments.

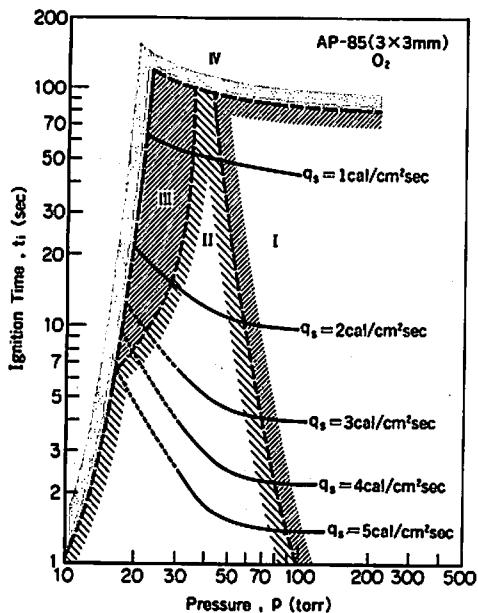
昭和55年7月14日受理
*東京大学宇宙航空研究所
〒153 東京都目黒区駒場 4-6-1

- I : Self-Sustaining Ignition
- II : Ignition not Followed by Self-Sustaining Combustion
- III : Pulsating Ignition
- IV : No Ignition



(b)

- I : Self-Sustaining Ignition
- II : Ignition not Followed by Self-Sustaining Combustion
- III : Pulsating Ignition
- IV : No Ignition



(c)

が起こらないことがある。一方、領域(Ⅲ)および(Ⅳ)に近い条件のもとではレーザー照射を打切ると必ず消火が起こる。この問題については着火エネルギーの項で論ずる。

(Ⅲ) 振動着火領域

着火後さらに一定強度を保ちレーザー照射を続けているにもかかわらず着火と消火が 0.3~1.5Hz の低

周波数で交互に繰返される。ここでは被着火面から発散する放射熱流束の相対値は図2のように変化し、現象としては燃焼圧が低い固体ロケット・モータで見られる息つき燃焼に似ている。振動着火は第二着火限界圧付近で発生するが放射熱流束を増すと消滅し、着火特性地図上ではデルタ地帯を形成する。しかし、振動着火は雰囲気の種類を問わず、支燃性、非支燃性、不

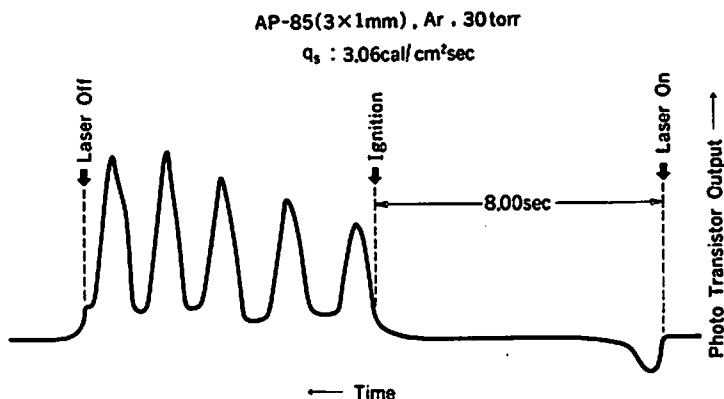


Fig. 2 Relative variation of the radiative heat flux emitted from the propellant surface in the region of pulsating ignition.

活性ガスのいずれの場合でもみられる。

ここは無炎着火領域でもあり、ここでいう着火とは熱分解が進んで表面が一部炭化して黒色を帯びた後、無数のホット・スポットが現われた瞬間を指す。ただし図3に示す流しカメラ写真からわかるように、酸素雰囲気中では瞬間的には気相火炎が生成することがあり、また着火と消火を何度か繰返していくうちに周期が次第に短くなり遂には定常燃焼になることもある。これに対し、ヘリウム雰囲気中の振動着火領域では図4に示すように灼熱表面の出現と消滅が交互に発生するのみで火炎はみられない。

実機ロケット・モータで真空着火させた場合に、このような振動着火が発生するか否かは不明であるが、極低圧燃焼における不安定現象の一つとして考慮すべき問題であろう。

(IV) 不着火領域

この領域の存在は、与えられた雰囲気中でそれ以上に放射熱流束を増さないと着火できない限界値があること、低放射熱流束の条件下では放射熱流束をかなり高めても雰囲気圧がある限界値を越えなければ同様に着火を果たし得ないことを意味している。

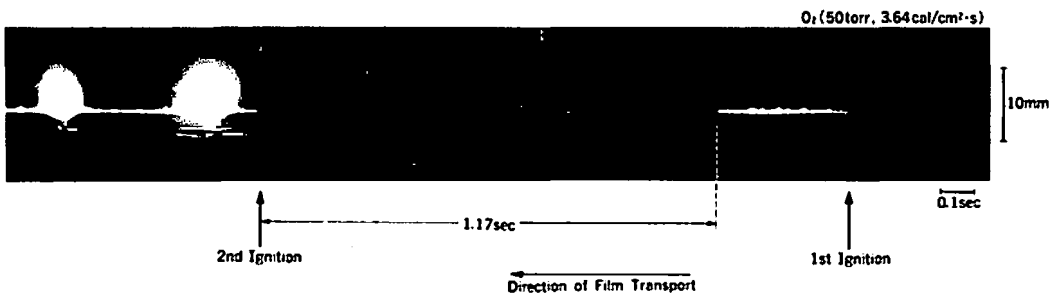


Fig.3 Singular ignition behavior in oxygen enviroment, photographed with streak camera in the region of pulsating ignition (sample dimension 3 × 1 mm).

AP-85(3×3mm) , He , 30 torr
 $q_s : 3.66 \text{ cal/cm}^2\text{sec}$
 Frame Speed : 100 fps

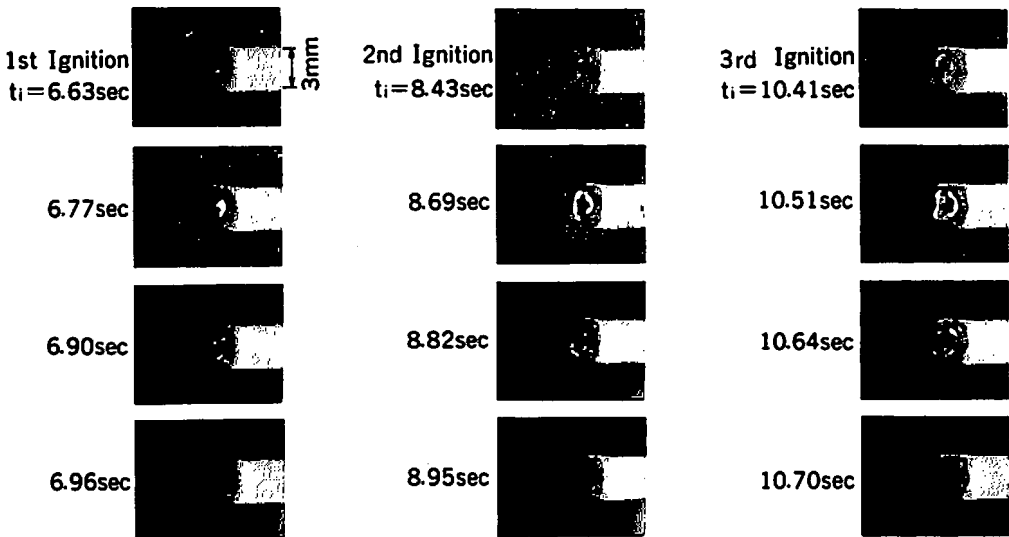


Fig.4 Middle speed movie showing a pulsating ignition behavior in helium atmosphere.

3. 着火エネルギー

前述のように領域(Ⅱ)では高圧側でも着火後暫くの間レーザー照射を続けないと立消えをする。これは表面下の熱層が十分発達する前にレーザー照射を打切ったからで、その瞬間表面温度が自己維持燃焼を続けることができる温度以下に落ちこむことに起因すると思われる。熱層の発達には放射熱流束が高く着火時間が短いほど不十分であるから、着火特性地図上で領域(Ⅰ)と(Ⅱ)の境界線は負のこう配をもっている。

図5は着火過程における推進薬表面から発散する放射熱流束の相対変化を記録した例であるが、(A)は火炎発現後それまでの照射エネルギーが不足していたためにレーザー照射と同時に消火が起こっており、これに対し着火前十分な照射エネルギーが与えられた(B)では自己維持燃焼をしている。しかし、(B)においてもレーザー照射を打切ると表面温度は僅かながらも低下している。

着火から定常燃焼への展開を保証するにはレーザー放射熱流束(q_s)と照射時間(t_0)との積で定義される着火エネルギー(E_i)をもとにして、着火基準を決定

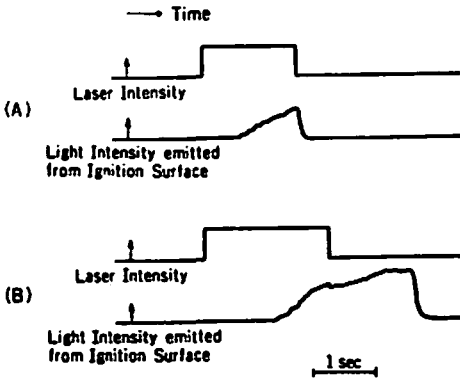


Fig. 5 An illustration of the extinction.

しなければならぬ。図6は着火エネルギーと放射熱流束との関係を求めた一例である。○印は低放射熱流束の場合でもそれまでに自己維持燃焼をするに足る着火エネルギーが与えられていることを示し、一方、×印では放射熱流束が高くても発端火炎が見えたと同時にレーザー照射を打切ると着火エネルギーが十分でなかったために立消えが起こっている。この実験条件では、限界着火エネルギーは約18cal/cm²である。

4. 走査電子顕微鏡観察による振動着火の原因

図7は領域(Ⅱ)の条件で着火寸前にレーザー照射を中断した後、試料をレーザー照射面と垂直にカットして斜め上方から撮影した走査電顕写真(a)と同じ試料

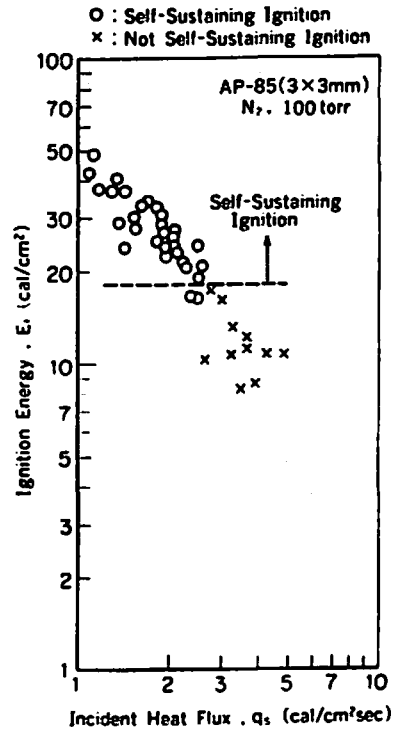


Fig. 6 Effect of ignition energy on self-sustaining ignition.

の平面写真(b)である。表面は既に熱分解が進み大部分は液状生成物となり、一部炭化した燃焼剤分解生成物で覆われている。燃焼剤の分解層の厚さは40~50 μmでAP粒子はほぼ原形のまま残っている。一方、同条件で着火後レーザー照射を中断した試料は図8に示すように150 μmの深さまで炭素質殻が生長し、APの粒度に見合う径をもつ噴出口が無数存在している。噴出口のなかには反応が不完全で泡や磁をもつAP粒子を底に残しているものがある。これらのAP粒子は高温反応段階(>350°C)へ到着する前に反応が中断したための残渣であろう。

着火直前にレーザー照射を打切った試料はヘリウム雰囲気においても同様に表面の薄い燃焼剤分解層を通して、まだ原形をとどめているAP粒子が確認できる。しかし、領域(Ⅲ)でいったん着火と消火過程を経て再着火する直前にレーザー照射を打切った試料は、図9に示すように表面にはもちろん、噴出口の底にもAP粒子の残渣は認められない。AP粒子は炭素質層表面から約100 μmの深さのところまで存在が確認されている。

以上の観察結果から振動着火は次に述べる機構によって起こると推定した。

領域(Ⅲ)では着火点は表面に位置しており¹⁾、燃

焼も気相よりはむしろ多孔性炭素質殻のなかをCTPB 一反応, および着火後のレーザー照射の続行による炭素
とAPのガス状分解生成物が通過する間に起こる不均 質殻表面の熱分解反応が重要な役割を演じている。そ

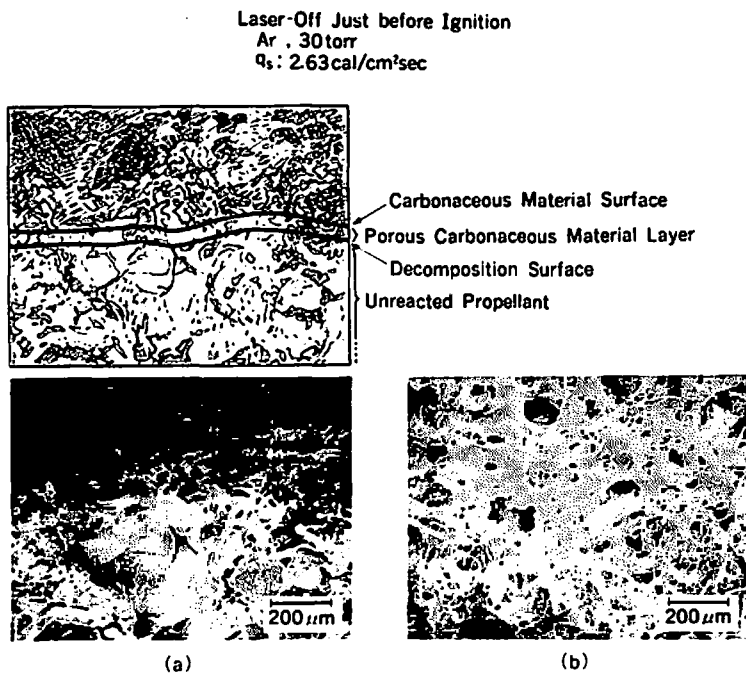


Fig.7 SEM micrographs, cutting off the laser irradiation just before ignition.

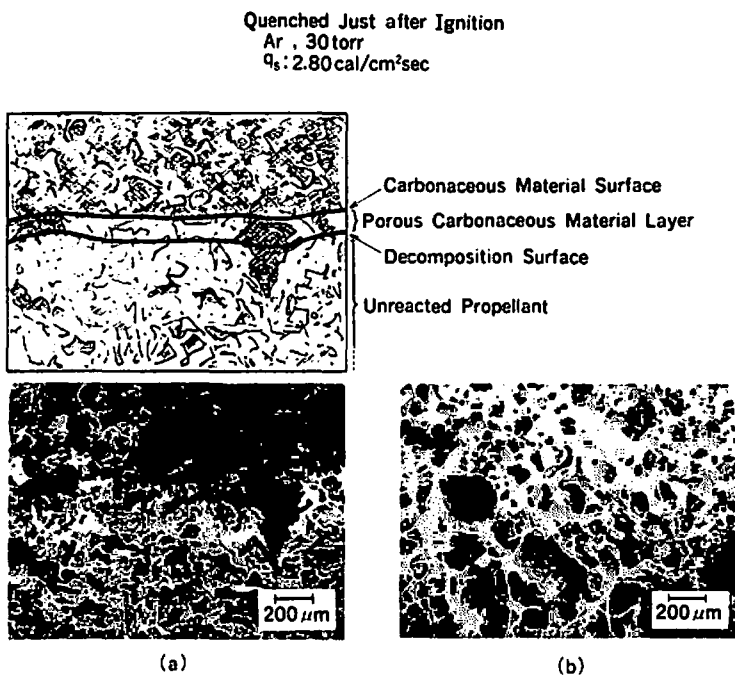


Fig.8 SEM micrographs, cutting off the laser irradiation just after ignition.

Quench Just before Re-Ignition
 He : 30 torr
 q_s : 3.77 cal/cm²sec

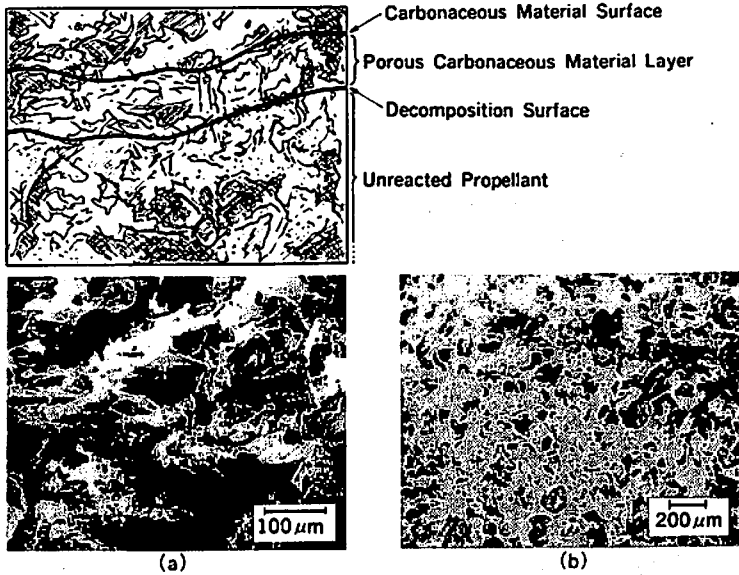


Fig.9 SEM micrographs, cutting off the laser irradiation just before re-ignition.

の証拠に、図4の写真にみるように燃焼しているとき灼熱面が表面全体を覆っているのではなく、表面温度は一様ではない。一時的に消火が起こるのは炭素質殻が生長してある程度の厚さになるとレーザービームが未反応部推進薬面へ届かなくなりCTPBとAPの分解が阻まれるからである。とくに、APの分解が阻止されることが消火を決定づけていると思われる。しかし、引続きレーザー照射はなされているので炭素質殻表面は熱分解が進み、再びレーザービームが未反応部推進薬へ届くようになり再着火となる。振動着火はこれらの過程の繰返しによるものである。

5. 結論

以上、多数行なわれたCTPB/AP推進薬の炭酸ガスレーザーによる着火実験から、着火挙動を正常着火、放射支援着火、振動着火および不着火の4種に分類し、それらが優越して発生する領域を着火特性地図として示した。さらに仔細に観察すると(Ⅲ)の放射支援着火領域は発端火炎がみえてから任意の時にレーザー照射を打切ると必ず消火が起こる領域とその後ある時間放射を続ければ定常燃焼への移行が約束される領域とに分けることができる。しかし、両者の境界はきわめてあいまいで地図上に区分けすることは難しい。

振動着火は走査電顕観察により低放射熱流束、低雰

囲気圧条件下においてCTPBの分解反応がAPのそれよりも遅れ、しかも多孔性炭素質殻を生成するため、内部へのレーザー放射熱の侵入が妨害され、それにより未反応部推進薬分解反応が周期的に変動することに起因するものと推定した。

謝辞：この研究には東大宇宙航研技官霜田正陸氏の協力を受けた。また、研究費の一部には昭和53年度工業火薬技術奨励会の研究助成金をあてた。ここに記して厚く感謝する。

文 献

- 1) 齊藤猛男, 原山美知子, 岩間彬 : "ポリブタジエン/過塩素酸アンモニウム推進薬の炭酸ガス・レーザーによる低圧着火(第1報) 支燃性, 非支燃性および不活性雰囲気における低放射熱流束条件のもとでの着火挙動" 工業火薬, 41, 131-140 (1980)
- 2) Takeo Saito and Akira Iwama : "Laser Ignition Behavior of Carboxyl-Terminated Polybutadiene/Ammonium Perchlorate Propellants at Subatmospheric Pressures" Proc. of 10th Sym. on Comb. and Det. Process of Propel. and Expl. Fraunhofer-Institut für Treib- und Explosivstoffe 127-151 (1979)

Ignition of Composite Propellant Composed of Carboxyl-Terminated Polybutadiene and Ammonium Perchlorate at Subatmospheric Pressures by Means of Carbon Dioxide Laser (II)

Drawing Up the Ignition Characteristic Maps in Helium, Argon, and Oxygen Environments and Discussion on Pulsating Ignition Phenomenon.

by Takeo SAITO*, Shoichiro AOYAGI* and Akira IWAMA*

Ignition characteristic maps of carboxyl-terminated polybutadiene/ammonium perchlorate propellant in helium, argon, and oxygen environments at subatmospheric pressures were presented. The following four regions where singular ignition behavior is dominant respectively, are depicted on the maps: (I) Development to a steady state combustion is promised once ignited. (II) Combustion followed by ignition is supported by the additional laser irradiation. Otherwise, cutting off laser irradiation immediately after ignition would incur extinction. (III) In spite of a continued laser irradiation, the ignition and extinction are repeated at a low frequency. (IV) No ignition occurs.

The mechanism of the pulsating ignition in Region (III) was presumed on the basis of the observation results for the propellant remainders quenched just before and after ignition by means of a scanning electron microscope that carbonaceous crust impedes the virgin propellant from decomposing steadily due to CT/PB decomposition behind dissociative sublimation rate of AP.

(*Institute of Space and Aeronautical Science, University of Tokyo. 153 Komaba 4-6-1, Meguro-ku, Tokyo, Japan.)

ニュース

猟用発射薬の爆燃事故

スペイン Vizcaya 社ガルダカノ工場において1980年2月14日11.00時狩れう用シングルベース発射薬600~700kgの爆燃事故が発生した。当日の気象17℃, 気圧756.5mmHg, 湿度38%。

パレットトラックのフォークリフトにアルミ製容器をとう載, その中に600~700kgの猟用発射薬を収納し, 移動中道路のカーブの処で, 運転を誤り, 積荷を地上に放り出し付近に発射薬をばらまいた。アルミ容器をトラックに回収する際, これを地上で引きずりその摩擦により発射薬に点火した。

被害, 発射薬爆燃のため現場から6m離れた処に

ある交通標識を破損し, また20m離れた処にある藪にも引火し火災を発生させた。ドライバーは軽度の火傷を手足に受けた。

原因, ドライバーのスピードの出し過ぎによる事故。

今後の対策として, パレットトラックの低速運転の励行, 発射薬を取めた容器をゴムでパレットトラックの柱に固定する。

出典: 国際火薬類事故情報交換会報告 Accident Report No. 359.

(田中俊二)