

# 熱分析および分光分析によるアンモニウムジニトラミドの経時変化機構の検討

松永 浩貴<sup>\*1</sup>, 吉野 悟<sup>\*2</sup>, 熊崎 美枝子<sup>\*1</sup>, 三宅 淳巳<sup>\*1</sup>, 羽生 宏人<sup>\*3</sup>

Study of aging mechanism of ammonium dinitramide using thermal analysis and spectrometry

Hiroki Matsunaga<sup>\*1</sup>, Satoru Yoshino<sup>\*2</sup>, Mieko Kumasaki<sup>\*1</sup>, Atsumi Miyake<sup>\*1</sup>, and Hiroto Habu<sup>\*3</sup>

## ABSTRACT

To get better information about aging mechanism of ammonium dinitramide (ADN) during storage, thermal analysis and spectrometry were carried out. The infrared, Raman, ultraviolet spectrometry and the sealed cell differential scanning calorimetry (SC-DSC) of ADN (1998) which has been stored for 11 years in a dark place suggested that ADN has degraded to ammonium nitrate (AN) during the storage. The amount of ADN in ADN (1998) was determined to be 57 wt.% at the surface region and 89 wt.% at the bulk region. The extent of aging was greater at the surface region than at the bulk region. The thermal decomposition behavior and kinetics of ADN were analyzed from the results of the isothermal test of ADN (2009) using thermal activity monitor (TAM) and the infrared and ultraviolet spectrometry of products. From comparison between decomposition ratio of aging and reaction ratio from the isothermal test, it was possible that aging mechanism of ADN was similar to that of the isothermal condition. The results of the SC-DSC and the isothermal test using TAM showed the aging influences on thermal decomposition of ADN.

Keywords: ammonium dinitramide, aging, thermal decomposition

## 概要

新規高エネルギー物質であるアンモニウムジニトラミド（ADN）の貯蔵時における経時変化の機構について知見を得るため、熱分析および分光分析を行った。ADN（2009）と暗所にて11年間保存されたADN（1998）の赤外、ラマン、紫外分光分析および密封セル-示差走査熱量測

---

\*1 横浜国立大学大学院 環境情報学府

(Graduate School of Environment and Information Sciences, Yokohama National University)

\*2 横浜国立大学 安心・安全の科学研究教育センター

(Center for Risk Management and Safety Sciences, Yokohama National University)

\*3 宇宙航空研究開発機構 宇宙科学研究所 宇宙輸送工学研究系

(Division for Space Propulsion and Propellants, Institute of Space and Astronautical Science, Japan Aerospace Exploration Agency)

定 (SC-DSC) 昇温試験より, ADN は貯蔵中に硝酸アンモニウム (AN) に分解することが示された. ADN (1998) 中の ADN 量は, 内部では 57 wt.%, 表面では 89 wt.% であると決定された. 経時変化は内部よりも表面の方が進行していることが明らかとなった. また, 高感度熱量計 (TAM) による ADN (2009) の等温試験と生成物の赤外および紫外分光分析より, ADN の熱分解挙動の検討および速度解析を行った. 経時変化による ADN の分解率と等温試験の結果より求めた ADN 分解の反応率の比較より, ADN の経時変化は, 等温条件における ADN の分解と同様の機構で進行する可能性が示された. さらに, ADN (2009) と ADN (1998) の DSC 昇温試験および TAM による等温試験より, ADN の熱分解に及ぼす経時変化の影響が示された.

## 1. はじめに

固体ロケット推進薬の酸化剤には高い酸素バランス, エネルギー密度を有することが求められる. 現在の固体ロケット推進薬は, これらの条件を満たし低価格であることから, 過塩素酸アンモニウム (AP,  $\text{NH}_4\text{ClO}_4$ ) を酸化剤として用いた AP 系推進薬が主流となっている<sup>1)</sup>. AP 系推進薬は優れた燃焼特性を有するが, AP は分子内に Cl 原子を含むため, 燃焼生成ガスとして酸性雨の原因物質である HCl が生成する. 近年, ロケット推進薬の更なる高性能化および排出ガスの低公害化に関心が高まっている. そのため, 高性能で低環境負荷である推進薬の開発に向け多くの研究が行われている<sup>1-5)</sup>. アンモニウムジニトラミド (ADN,  $\text{NH}_4\text{N}(\text{NO}_2)_2$ ) は新規高エネルギー酸化剤として期待されている物質の一つである. ADN の構造を Fig.1 に, 主な物性を Table1 に示す. ADN は高い酸素バランス, エネルギー密度を有し, ハロゲンフリーであることから, 現在 ADN 系固体推進薬の実用に向け研究が進行している<sup>6-11)</sup>.

固体ロケット推進薬に求められる性質の一つとして, 原料貯蔵時, 製品製造時, 製品貯蔵時, 使用時における安定性が挙げられる. 安定性に影響を及ぼす因子としては熱や光, 水分などが想定される. ADN を実用化するためには, これらの因子による分解挙動および分解速度の解明が必要である. 本研究では原料貯蔵時における ADN の経時変化に注目し, ADN の分解メカニズムおよび経時変化が性能に与える影響について知見を得ることを目的とした. 熱分析および分光分析を行い, ADN の分解挙動の検討および速度解析を行った. さらに, 経時変化が ADN の熱分解に及ぼす影響について検討した.

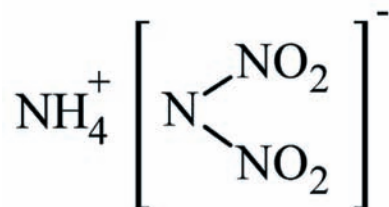


Fig.1 Molecular structure of ADN

Table1 Physical properties of ADN

Molecular Weight	124.07 <sup>6)</sup>
Density [g cm <sup>-3</sup> ]	1.82-1.84 <sup>6)</sup>
Melting point [°C]	91.5-92.5 <sup>6)</sup>
Heat of formation [kJ mol <sup>-1</sup> ]	-148 <sup>10)</sup>
Oxygen balance	+25.8
Water solvent (20 °C) [wt.%]	78.1 <sup>11)</sup>

## 2. 実験方法

試料として細谷火工株式会社製の ADN (ADN (2009)) および 1998 年に合成された ADN (ADN (1998)) を用いた。ADN (1998) については Fig.2 に示すような因子の影響を検討するため、表面と内部に分けてそれぞれ分析した。また、工業用粉状硝酸アンモニウム (AN) を比較対象として用いた。

表面状態の確認のため、走査型電子顕微鏡 (SEM) による観測を行った。観測には株式会社島津製作所製の SUPERSCAN-220 を用いた。

化学構造確認のため、赤外、ラマン、紫外分光分析を行った。赤外分光分析は日本分光株式会社製 FT/IR-420 を使用した。ラマン分光分析は Kaiser 社製 RXN (半導体レーザー、波長：785 nm) を使用した。紫外分光分析には株式会社島津製作所製 UV-1800 を使用し、各試料を水溶液として Starna 社製石英セル (光路長：1 cm) に入れ測定を行った。

熱特性把握のため、Mettler Toledo 社製 HP DSC827e を用いた密封セル - 示差走査熱量測定 (SC-DSC) による昇温試験および Thermometric 社 (現 TA インストルメンツ社) 製の高感度熱量計 TAMIII による等温試験を行った。SC-DSC 昇温試験については、Seiko 社製 SUS303 セルに試料を約 1.5 mg 秤量して密封し、温度範囲を 30-350 °C、昇温速度を 5 K/min とした。等温試験については大気雰囲気中で SUS 製セルに試料を約 100 mg 秤量し密封し、測定温度は 115, 110, 105, 100 °C とした。

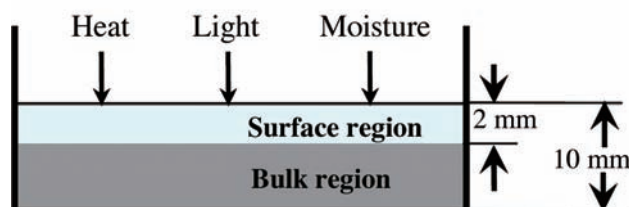


Fig.2 The definition of the surface region and the bulk region of ADN (1998)

### 3. 結果と考察

#### 3.1. ADN (2009) と ADN (1998) の表面状態

ADN (2009) および ADN (1998) の SEM 画像を Fig.3 に示す. ADN (2009) の粒子はプレート状であった. 一方 ADN(1998)は小さな針状の結晶の凝集したような形状であった. ADN(1998)では ADN の粒子が凝集していることが考えられた.

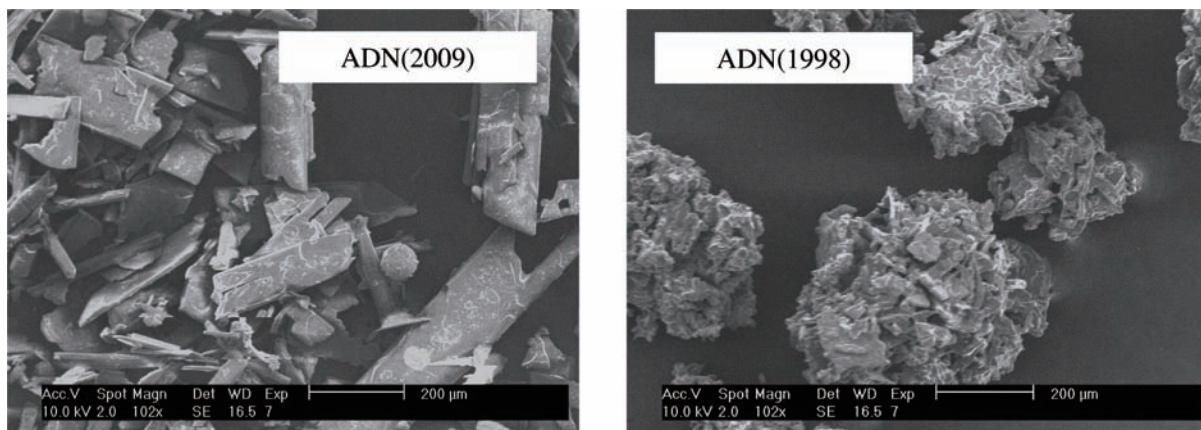


Fig.3 SEM images of ADN (2009) and ADN (1998)

#### 3.2. ADN の経時変化生成物

ADN (2009), ADN (1998), AN の赤外およびラマンスペクトルを Fig.4, 5 に示す. ADN (1998)では,  $\text{NO}_3^-$  に由来する赤外吸収 ( $1380 \text{ cm}^{-1}$ ) およびラマン散乱 ( $1040, 710 \text{ cm}^{-1}$ ) の存在が確認された. これらは ADN (2009) では存在しなかった. この結果より, ADN (1998) には  $\text{NO}_3^-$  原子団を含む物質が含まれていることが考えられた.

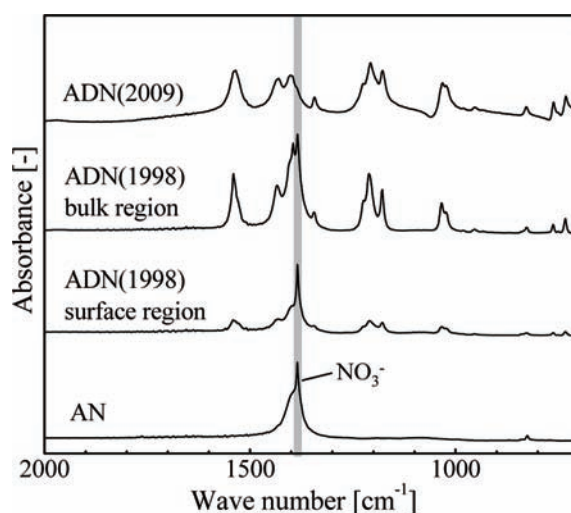


Fig.4 IR spectra of ADN (2009), ADN (1998), and AN

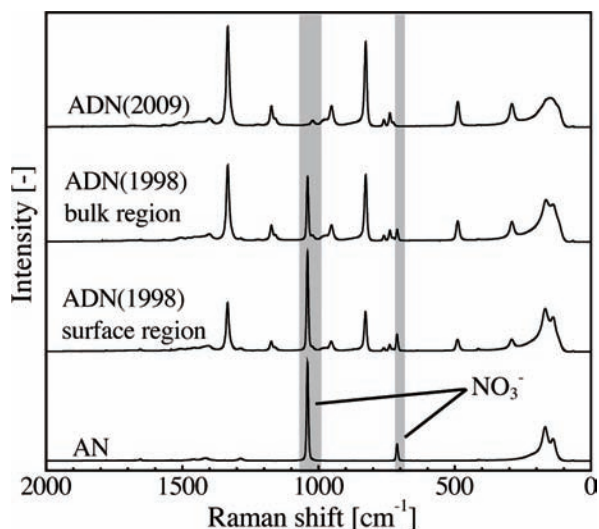


Fig.5 Raman spectra of ADN (2009), ADN (1998), and AN

ADN (1998) をアセトンに溶解させ、ろ液と残留物に分離した。ADN (2009)、ADN (1998)、AN および ADN (1998) の分離により得られた残留物の赤外スペクトルを Fig.6 に示す。ADN の  $\text{N}(\text{NO}_2)_2$  原子団の赤外吸収は分離前では確認できたが、残留物では確認できなかった。また残留物では、 $\text{NH}_4^+$  原子団 ( $3150 \text{ cm}^{-1}$ ) および  $\text{NO}_3^-$  原子団 ( $1380 \text{ cm}^{-1}$ ) の赤外吸収が確認された。残留物と AN の DSC 曲線を Fig.7 に示す。AN では、約  $55$ ,  $130$ ,  $170^\circ\text{C}$  で相転移による吸熱ピークが、約  $260^\circ\text{C}$  から AN の分解による発熱ピークが観測された。これらの吸熱および発熱ピークは残留物においても同様の温度で観測された。この結果より残留物における吸熱は AN の相転移、発熱は AN の熱分解であると同定された。分光分析、熱分析の結果から、ADN (1998) には ADN のほかに AN が含まれることがわかった。ADN (1998) は保存の間に時間とともに AN へ分解したと考えられる。

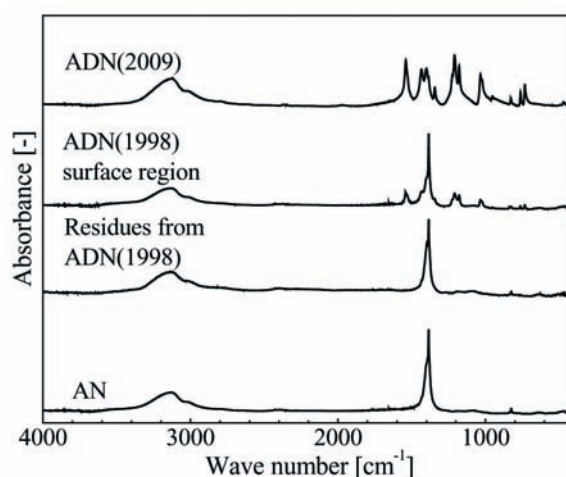


Fig.6 IR spectra of ADN (2009), ADN (1998), residues from ADN (1998), and AN



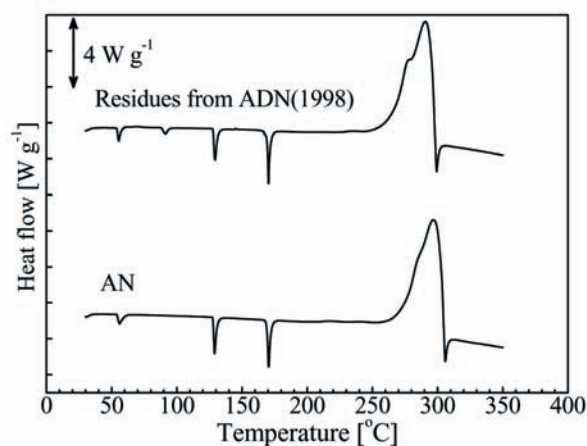


Fig.7 DSC curves of the residue from ADN (1998), and AN

### 3.3. 経時変化による ADN 分解量の定量

ADN の分解量の定量のため、ADN (2009) および ADN (1998) 水溶液について紫外分光分析を行い、 $\text{N}(\text{NO}_2)_2$  (284.8 nm) の吸光度から ADN 量を決定した (Fig.8). ADN (1998) に含まれる ADN は内部で 89 wt.%, 表面で 57 wt.% と算出された. ADN (1998) では ADN と比較して ADN 量が減少しており、表面の方が経時変化が進行していることがわかった.

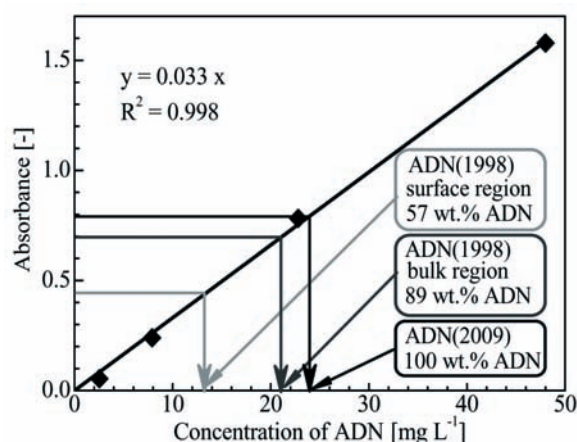


Fig.8 The amount of ADN in aqueous of ADN (2009) and ADN (1998)

ADN (2009), ADN (1998), AN の DSC 曲線を Fig.9 に示す. ADN (2009) および ADN (1998) では 2 段階 (130-220 °C および 220-290 °C) の発熱ピークが観測された. 220-290 °C の発熱ピークは AN の分解と同様の温度範囲で観測された.

既往の研究<sup>12, 13)</sup>より, ADN は AN と  $\text{N}_2\text{O}$  に熱分解することが報告されている. 反応式を (1), (2) 式に示す. 1 段階目に ADN が AN および  $\text{N}_2\text{O}$  に分解し, 2 段階目に AN がさらに  $\text{N}_2\text{O}$  および  $\text{H}_2\text{O}$  に分解するとされている.



ADN (1998) の 130-220 °C における発熱量は ADN (2009) より小さかった。一方、220-290 °C の発熱量は ADN (1998) の方が大きかった。

Fig.10 に ADN (1998) における、紫外分光分析より求めた ADN の割合と 130-220 °C の発熱量  $Q_{\text{DSC-1st}}$  の関係を示す。ADN (2009) と比較して、ADN (1998) における  $Q_{\text{DSC-1st}}$  は内部で 89 %, 表面で 61 % であった。 $Q_{\text{DSC-1st}}$  は ADN 量の低下と共に減少し、 $Q_{\text{DSC-1st}}$  の割合は紫外分光分析より求めた ADN の割合とほぼ等しくなった。

以上の結果より ADN (1998) では、1 段階目の発熱では ADN が分解し、2 段階目の発熱では 1 段階目における分解性生物および経時変化生成物である AN が分解していることが考えられた。熱分析の結果からも経時変化による ADN の減少および AN の増加が示された。また、ADN の量は熱分析を用いても決定可能であることが示された。

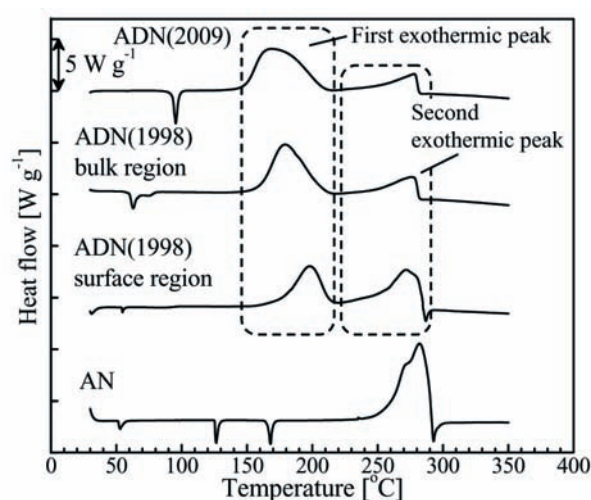


Fig.9 DSC curves of ADN (2009), ADN (1998), and AN

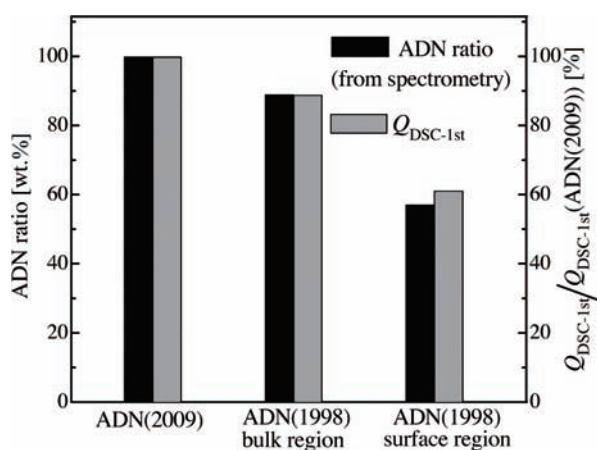


Fig.10  $Q_{\text{DSC-1st}}/Q_{\text{DSC-1st}}$  (2009) and ADN ratio of ADN (2009) and ADN (1998)

### 3.4. ADN の熱分解機構

#### 3.4.1. ADN の熱分解挙動

TAM による ADN (2009) の等温試験 (110 °C) の結果を Fig.11 に示す。まず測定開始後 0.4 日から発熱量約 0.84 kJ g<sup>-1</sup> の鋭い発熱ピーク (第 1 ピーク) が観測され、7.8 日から発熱量約

$0.66 \text{ kJ g}^{-1}$  の緩やかな発熱ピーク（第2ピーク）が観測された。

次に、ADN の分解挙動を解明するため、それぞれの発熱が終了した時点で測定を終了し、生成ガスおよび残留物を採取して分析を行った。

残留物についての赤外分光分析の結果、 $\text{N}(\text{NO}_2)_2$  の吸光度が第1ピーク後、第2ピーク後の順で減少した。さらに残留物では、 $\text{NH}_4^+$  および  $\text{NO}_3^-$  に由来する吸収が確認された (Fig.12)。紫外分光分析の結果、等温試験で得られた発熱ピークのうち、第1ピーク後では ADN の約 70 % が、第2ピーク後では ADN のほぼすべてが分解していることが確認された (Fig.13)。残留物の分析結果より、いずれの発熱ピークにおいても ADN が減少していることがわかった。また、残留物に AN が含まれていることが考えられた。これらの結果より、本等温試験では、DSC 昇温試験で得られた ADN 分解の発熱ピークが2段階に分かれて観測されたことが考えられる。

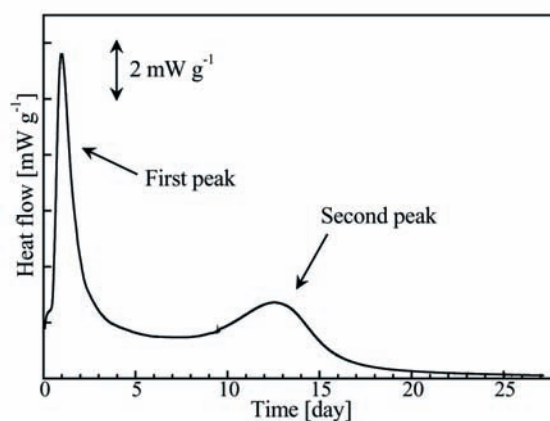


Fig.11 Heat flow from ADN at 110 °C

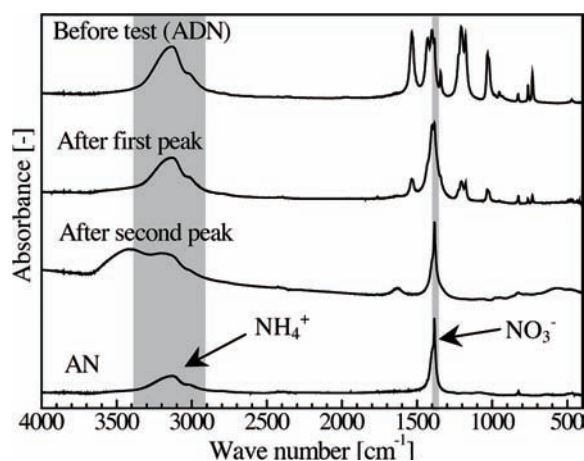


Fig.12 IR spectra of samples before test, after tests, and AN



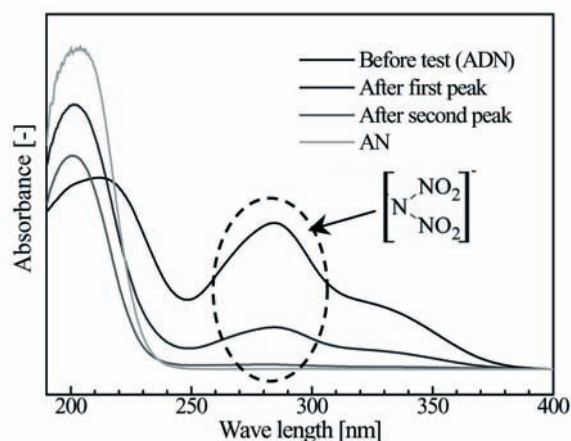


Fig.13 UV spectra of samples before test, after tests, and AN

105 °Cで6日間および115 °Cで12日間等温保持した後、セルからシリンジで生成ガスを採取し、赤外分光分析を行ったところ、 $N_2O$  が生成していることが確認された (Fig.14)。 $N_2O$  は ADN の熱分解生成物の主成分である<sup>12, 13)</sup>。

以上の結果より、第1ピークでは約70 %の ADN が AN や  $N_2O$  などへ分解していることがわかった。また、第2ピークでは ADN と第1ピークにおける生成物が反応していることが考えられる。

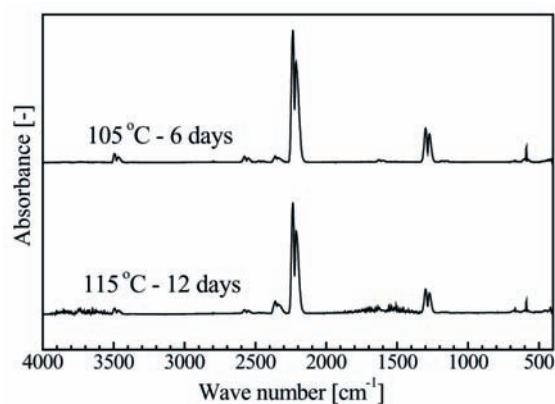


Fig.14 IR spectra of produced gas from ADN

### 3.4.2. ADN の熱分解速度

等温試験における ADN の分解（第1ピーク）について速度解析を行った。反応率  $\alpha = 0.1, 0.3, 0.5$  に達する時間と測定温度との関係を Fig.15 に示す。得られた関係式から活性化エネルギー  $E_a$  および頻度因子  $A$  を求めた (Table2)。ここで、第1ピークにおける ADN の分解は単一の反応過程で進行し、拡散律速（1次元）であると仮定すると反応速度式は (3), (4) 式に示す通りとなる。

$$\frac{d\alpha}{dt} = A \exp\left(-\frac{E_a}{RT}\right) f(\alpha) \quad (3)$$

$$f(\alpha) = \frac{1}{2\alpha} \quad (4)$$

これらの関係を用い、ADN（1998）と同様の保存条件（25℃で11年間保存）における反応率  $\alpha_{11}$  を予測した。3.3の結果より、ADN（1998）表面は11年間で約43%が分解した。経時変化によるADNの分解率と等温試験の結果より求めたADN分解の反応率が近い値をとった。この結果より、ADNの経時変化は、等温条件におけるADNの分解と同様の機構で進行する可能性が示された。経時変化によるADNの分解機構の解明のためには、熱のほかに光や水分といった因子の影響についても詳細な検討が必要である。

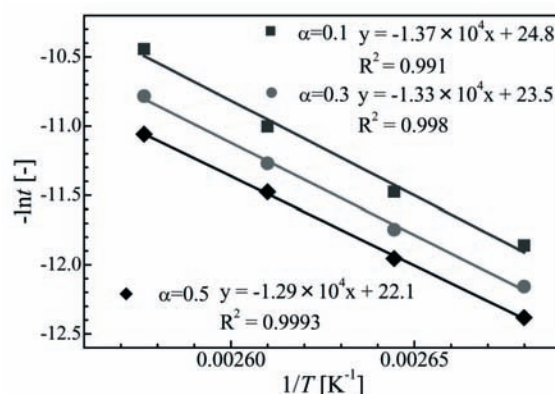


Fig.15 Temperature dependence of ADN decomposition

Table2  $E_a$ ,  $A$ , and  $\alpha_{11}$  of ADN decomposition

$\alpha$ [-]	$E_a$ [kJ mol <sup>-1</sup> ]	$A$ [s <sup>-1</sup> ]	$\alpha_{11}$ [-]
0.1	114	$5.64 \times 10^{10}$	0.48
0.3	111	$1.60 \times 10^{10}$	0.47
0.5	107	$4.04 \times 10^9$	0.49

### 3.5. 経時変化がADNの熱分解に与える影響

DSC 昇温試験より得られた融点  $T_m$ 、発熱開始温度  $T_{DSC-1st}$  および  $Q_{DSC-1st}$  の値を Table3 に示す。ADN（1998）の測定結果では、ADN（2009）と比較して  $T_m$  および  $Q_{DSC-1st}$  が低下し、 $T_{DSC-1st}$  が上昇した。AN は ADN の融点を著しく低下させる<sup>14)</sup>。ADN の熱特性の変化は、経時変化による ADN 量の低下および AN との混合によると考えられる。

ADN（2009）および ADN（2009）/AN 混合試料（6:4）について TAM を用いた等温試験の結果を Fig.16 に示す。ADN/AN 混合試料は ADN（1998）表面を再現した試料である。ADN（2009）では測定開始後 0.4 日から鋭い発熱ピークが観測されたのに対し、ADN（2009）/AN 混合試料では 1.2 日から緩やかな発熱ピークが観測された。ADN（2009）および ADN（1998）についての DSC 昇温試験では ADN の分解が約 130℃で開始したことから、本等温試験で観測された発熱は ADN の分解によると考えられる。これらの結果から、経時変化により熱に対する反応性が低下したことが考えられる。

Table3 DSC results of ADN (2009) and ADN (1998)

Sample	ADN amount [wt.%]	$T_m$ [°C]	$T_{DSC-1st}$ [°C]	$Q_{DSC-1st}$ [kJ g <sup>-1</sup> ]	[%]
ADN(2009)	100	94	132	1.8	100
ADN(1998) bulk region	89	62	136	1.6	89
ADN(1998) surface region	57	56	150	1.1	61

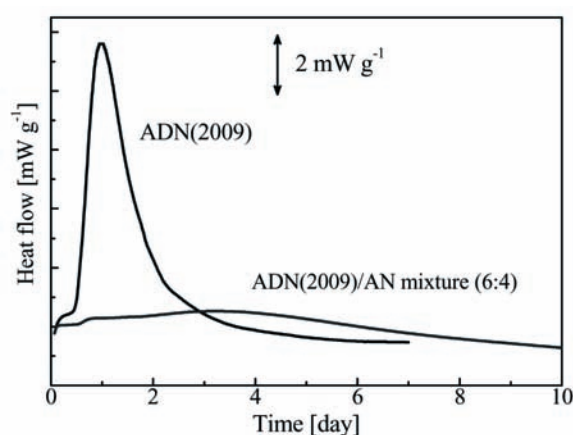


Fig.16 Heat flow from ADN (2009) and ADN (2009) /AN mixture (6:4) at 110 °C

### 3. 6. ADN の経時変化の影響因子

ADN (1998) の分光分析および熱分析より, ADN (1998) は保存の間に AN に分解したことがわかった. さらに,  $N(NO_2)_2^-$  が減少し,  $NO_3^-$  が生成していることから,  $N(NO_2)_2^-$  が  $NO_3^-$  へ分解していることが考えられる.

等温試験の結果より求めた ADN 分解の反応率が ADN (1998) 表面の分解率と近い値をとったため, ADN (1998) の経時変化は等温条件における ADN の分解と同様の機構で進行する可能性が示された. しかし, 反応率  $\alpha_{11}$  は反応モデルを仮定して算出した値である. また, ADN(1998) の保存条件では固体の ADN の分解であるのに対し, 本等温試験の条件では融解した状態の ADN の分解について検討している. したがって, 反応モデルの検討や固体についての試験が必要である.

一方, ADN (1998) の分光分析および熱分析より, 表面では分解がより進行していたことから, ADN (1998) の経時変化には光や水分の影響が大きいことが推測される. ADN は潮解性を有する物質であり<sup>11)</sup>, ADN (1998) では結晶が凝集体を形成していたことから, ADN (1998) は保存の間に空気中の水分により吸湿したことが考えられる. ここで, ADN (1998) は光を避けて保存されたことから光の影響は小さいと考えられる. したがって ADN (1998) の保存条件および分析結果から考察すると, 水分が ADN (1998) の経時変化に寄与していることが考えられる. 経時変化による ADN の分解機構の解明のためには, 熱分解に関する詳細な検討を行うとともに, 光や水分といった因子についても分解挙動や分解速度の検討が必要である.

## 4. まとめ

ADN (2009) と ADN (1998) の表面状態について SEM を用いて検討した。ADN (1998) は ADN 粒子が凝集していることが考えられた。

赤外, ラマン, 紫外分光分析および DSC の結果より, ADN は保管の間に AN に分解したことがわかった。また, ADN (1998) の ADN 量は, 内部では 89 wt.%, 表面では 57 wt.% であった。表面の方が内部よりも経時変化が進行していることが明らかとなった。

TAM による等温試験および残留物および生成ガスの分析結果より, 等温試験では DSC 昇温試験で得られた ADN 分解の発熱ピークが 2 段階に分かれて観測されたことが考えられた。第 1 ピークでは ADN が熱分解していることがわかった。また, 経時変化による ADN の分解率と等温試験の結果より求めた ADN 分解の反応率が近い値をとった。ADN の経時変化は, 等温試験における ADN の分解と同様の機構で進行する可能性が示された。

DSC 昇温試験および TAM による等温試験の結果, ADN (2009) と ADN (1998) では熱特性に変化があった。経時変化に伴い ADN が AN に変化することにより, 推進薬の酸化剤に求められる物性が変化する可能性がある。

## 謝辞

産業技術総合研究所の和田有司氏, 和田祐典氏には, 本研究を進める上で多大なるご指導を頂きました。ここに深く感謝の意を表します。

## 参考文献

- 1) J. F. Guerya, I. S. Chang, T. Shimada, M. Glick, D. Boury, E. Robert, J. Napier, R. Wardle, C. Perut, M. Calabro, R. Glick, H. Habu, N. Sekino, G. Vigier, B. D. Andrea, Solid propulsion for space applications: An updated roadmap, *Acta Astronautica*, 66 (2010), pp.201-219
- 2) P. F. Pagoria, G. S. Lee, A. R. Mitchell, R. D. Schmidt, A review of energetic materials synthesis, *Thermochimica Acta*, 384 (2002), pp.187-204
- 3) M. B. Talawar, R. Sivabalan, T. Mukundan, H. Muthurajan, A. K. Sikder, B. R. Gandhe, A. S. Rao, Environmentally compatible next generation green energetic materials (GEMs), *Journal of Hazardous Materials*, 161 (2009), pp.589-607
- 4) K. Okamoto, M. Kohga, K. Hasue, Thermal behavior and tensile property of PTHF/HTPB blend, *Science and Technology of Energetic Materials*, 70 (2009), pp.87-93
- 5) Y. Wada, Y. Seike, N. Tsuboi, K. Hasegawa, K. Kobayashi, M. Nishioka, K. Hori, Combustion mechanism of tetra-ol glycidyl azide polymer, *Science and Technology of Energetic Materials* 69 (2008), pp.143-148
- 6) U. Teipel, T. Heintz, H. H. Krause, Crystallization of spherical ammonium dinitramide (ADN) particles, *Propellants, Explosives Pyrotechnics*, 25 (2000), pp.81-85
- 7) S. Venkatachalam, G. Santhosh, K. N. Nian, An overview on the synthetic routes and properties of ammonium dinitramide (ADN) and other dinitramic salts, *Propellants, Explosives Pyrotechnics*, 29

- (2004), pp.178-187
- 8) K. Menke, T. Heintz, W. Schweikert, T. Keicher, H. Krause, Formulation and properties of ADN/GAP propellants, *Propellants, Explosives Pyrotechnics*, 34 (2009), pp.218-230
  - 9) M. Y. Nagamachi, J. I. S. Oliveira, A. M. Kawamoto, R. C. L. Dutra, ADN-The new oxidizer around the corner for an environmentally friendly smokeless propellant, *Journal of Aerospace Technology and Management*, 1 (2009), pp.153-160
  - 10) H. Östmark, U. Bemm, A. Langlet, R. Sandén, N. Wingborg, The properties of ammonium dinitramide (ADN) : Part 1, basic properties and spectroscopic data, *Journal of Energetic Materials*, 18 (2000), pp.123-138
  - 11) N. Wingborg, Ammonium dinitramide-water: interaction and properties, *Journal of Chemical and Engineering Data*, 51 (2006), pp.1582-1586
  - 12) J. C. Oxley, J. L. Smith, W. Zheng, E. Rogers, M. D. Coburn, Thermal decomposition studies on ammonium dinitramide (ADN) and  $^{15}\text{N}$  and  $^2\text{H}$  isotopomers, *J. Phys. Chem. A*, 101 (1997), pp.5646-5652
  - 13) S. Löbbecke, H. H. Krause, A. Pfeil, Thermal analysis of ammonium dinitramide Propellants, *Explosives Pyrotechnics*, 22 (1997), pp.184-188
  - 14) T. P. Russell, A. G. Stern, W. M. Koppes, C. D. Bedford, Thermal decomposition and stabilization of ammonium dinitramide, 29th JANNAF Combustion Subcommittee Meeting, 593-II (1990), pp.339-345

## 付録

本研究を進めるにあたり、調査した関連文献を以下に示す。

- 1) Z. Pak, Some ways to higher environmental safety of solid rocket propellant application, *AIAA Paper*, 93-1755 (1993)
- 2) K. O. Christe, W. W. Wilson, M. A. Petrie, H. H. Michels, J. C. Bottaro, R. Gilardi, The dinitramide anion,  $\text{N}(\text{NO}_2)_2^-$ , *Inorganic Chemistry*, 35 (1996), pp.5068-5071
- 3) N. F. Fell, J. M. Widder, S. V. Medlin, J. B. Moris, R.A. P. Rodrigues, K. L. McNesby, Fourier transform raman spectroscopy of some energetic materials and propellant formations. II, *Journal of Raman Spectrometry*, 27 (1996), pp.97-104
- 4) J. C. Bottaro, P. E. Penwell, R. Schmitt, 1,1,3,3-Tetraoxo-1,2,3-triazapropene anion, a new oxy anion of nitrogen: The dinitramide anion and its salts, *Journal of the American Chemical Society*, 119 (1997), pp.9405-9410
- 5) S. Vyazovkin, C. A. Wight, Ammonium dinitramide: Kinetics and mechanism of thermal decomposition, *Journal of Physical Chemistry. A*, 101 (1997), pp.5653-5658
- 6) Y. Takishita, Y. Teramoto, Thermal decomposition characteristics of ammonium dinitramide, *Kayaku Gakkaishi*, 58 (1997), pp.23-28
- 7) S. Lobbecke, T. Keicher, H. Krause, A. Pfeil, The new energetic material ammonium dinitramide and its thermal decomposition, *Solid State Ionics*, 101 (1997), pp.945-951
- 8) M. Maslesa, W. Skupinski, Separation of ammonium dinitramide from reaction mixture, *Propellants*,



- Explosives Pyrotechnics, 24 (1999), pp.83-89
- 9) A. I. Kazakov, Y. I. Rubtsov, G. B. Manelis, Kinetics and mechanism of thermal decomposition of dinitramide, Propellants, Explosives Pyrotechnics, 24 (1999), pp.37-42
  - 10) A. S.Tompa, Thermal analysis of ammonium dinitramide (ADN), Thermochemica Acta, 357 (2000), pp.177-193
  - 11) I. B. Mishra, T. P. Russel, Thermal stability of ammonium dinitramide, Thermochemica Acta, 384 (2002), pp.47-56
  - 12) S. Venkatachalam, G. Santhosh, K. N. Ninan, An overview on the synthetic routes and properties of ammonium dinitramide (ADN) and other dinitramide salts, Propellants, Explosives Pyrotechnics, 29 (2004), pp.178-187
  - 13) R. Yang, P. Thakre, V. Yang, Thermal decomposition and combustion ammonium dinitramide (review), Combustion, Explosion, and Shock Waves, 41 (2005), pp.657-679
  - 14) D. E. G. Jones, Q. S. M. Kwok, M. Vachon, C. Badeen, W. Ridley, Characterization of ADN and ADN-based propellants, Propellants, Explosives Pyrotechnics, 30 (2005), pp.140-147
  - 15) A. Pettersson, B. Brandner, H. Östmark, Decomposition Studies: solid and liquid phase decomposition of ADN, FOI-R--2060--SE (2006)
  - 16) G. Santhosh, R. P. C.Tien, A. H. Gee, Thermal decomposition kinetics of ammonium dinitramide-guanylurea dinitramide mixture analysed by isoconversional method, Thermochemica Acta, 480 (2008), pp.43-48
  - 17) K. Menke, T. Heintz, W. Schweikert, T. Keicher, H. Krause, Formulation and properties of ADN/GAP propellants, Propellants, Explosives Pyrotechnics, 34 (2009), pp.218-230