

細い金属線で強化した固体推進剤*

岩間 彬・青柳 鐘一郎・祖父江 照雄
船木 秀雄・山崎 毅六

概 要

一次元および二次元網状のアルミニウム、ニッケル、銅および銀線を含む混成推進剤グレインを試作し、その構造性能、機械的性質および燃焼性を評価するための初歩的な実験を行なった。構造性能はポリイソブテン-過塩素酸アンモニウムからなる端面燃焼形グレインに加速度を軸方向に与えたのちの、表面の偏位によって知ることができた。金属線を埋入させたグレインは、50 g程度の加速度をうけても、その変形を問題にする必要がないほど小さくさせることができる。

機械的性質は金属線を含むグレイン試験片によって、引張りおよび圧縮試験を行ない、最大公称応力、じん性、弾性係数などから評価した。これらの値は、金属線を含まないものと比べて、それぞれ 1.3~4, 1.5~5 および 2~1000 倍にもなる。

金属線を含むグレインは著しく高い線燃焼速度を示すが、さらに注目すべきことは線燃焼の圧力指数がほぼ 1/3 になることである。網状金属線を埋入した推進剤は燃焼面と平行に位置している横線が線燃速と無関係であり、燃焼安定性も一次元配列の金属線を含む場合より低下するおそれはない。

1. はじめに

固体推進剤ロケットでは推進剤グレインも強度構材の一部である。グレインの機械的性質に欠陥があれば、着火衝撃、高加速度、高温高压の燃焼ガスによる攻撃に耐えられず変形、圧壊、接着部のはく離が起り、燃焼面積が異常に増大して異常燃焼の原因にもなり、ひいては機体が予定した飛しょう軌道からはずれたりしかねない。また、貯蔵中には昼夜、四季の移り変わりにしたがってグレインは当然温度サイクルをうけ、それによってひき起こされる接着部のはく離やクリープを防止することも重要な問題となっている。

本来、固体推進剤の物性に対する要求は、音響的振動燃焼の発生を抑制するため、引張伸度と柔軟性に重点がおかれてきた。しかし、最近固体ロケットの大形化が進み、製造から発射まで長時日を要するようになり、また貯蔵期間も長くなる傾向も顕著になってきたので、グレインに強い応力がかかる機会もふえてきた。それに加えて機体の飛しょう加速度も 50~100 g にも達するものが現われ、グレインに対しても金物と同じく強靱さが要求されるようになった。このことはグレインの引張伸度や柔軟性を高い値に保持しなければならないという主張と矛盾する。というのは有機高分子材料を燃料結合剤として用いる限り、一般的にあって、引張伸度を高めるように原料の配合を選ぶとグレインの寸法安定性の劣化を招く

* この研究の一部は 1967 年 5 月東京で開催された The Seventh International Symposium on Space Technology and Science にて発表された。

のは避け得ないからである。

そこで、母体の推進剤には燃焼安定性の立場から要望される弾性と柔軟性に富む燃結剤を用い、金属または非金属ファイバによってグレインを強化し、寸法安定性の不足を補なおうというのが本研究の目的である。もともと、この方法は線燃焼速度の増加を主眼として考えられたもので[1]~[5]、とくに端面燃焼方式のブースタを実用化する途を開いた意義は大きい。

金属ファイバによって強化したグレインの内部応力については Freudenthal [6], Alexander [7] による実験と解析、燃焼速度については Caveny [8], [9] の解析があるけれども、実験データを発表したものは見当たらないのが現状である。

この報文は列状(一次元)および網状(二次元)の金属線を埋めた混成固体推進剤の構造性能、機械的性質および燃焼性について簡単な実験の結果とそれに対する考察を述べている。

2. 実験方法およびその結果

2.1 グレインの変形試験

内面燃焼形グレインの軸方向に慣性力が加わったときの変形については既にいくつかの理論的、実験的研究がなされている[10]~[13]。しかし、ファイバを含むグレインは非等方性物質であるために、これら解析結果をそのまま適用することはむづかしいので、ファイバがどの程度グレインの物性の改善に役立っているかを実験的に評価することとした。

両端が拘束され、線形非圧縮性材料とみなし得る内面燃焼形および端面燃焼形グレインを垂直に立てたとき、図1に示すような変形が起こる。図1(2)の場合について考えると、そのグレイン表面の偏位は次式で与えられる。

$$u = \left(\frac{3\rho g a^2}{4E} \right) \left(1 - \frac{r^2}{a^2} \right) \quad (1)$$

ここに a , E および g はそれぞれ推進剤グレインの半径、ヤング率および重力加速度を示す。 ρ はグレインの密度、 r は半径方向の座標を表わす。式(1)はグレインが直径に対して十分な長さをもつことを前提とし、ここでは曲げによる変形は考慮されていない。

変形試験の試料として過塩素酸アンモニウム75%、ポリイソブテン(PIB)25%からなる可塑性推進剤を用いた。100mmφ×500mmLの円筒容器に、この推進剤のドウを注形し、小形遠心器にのせて軸方向に加速度慣性力を加え、自由端面の偏位を測定した。ポリイソブテンは非硬化性の重合体で変形後の弾性回復はきわめて小さく、スランプ試験に適した材料といえよう。

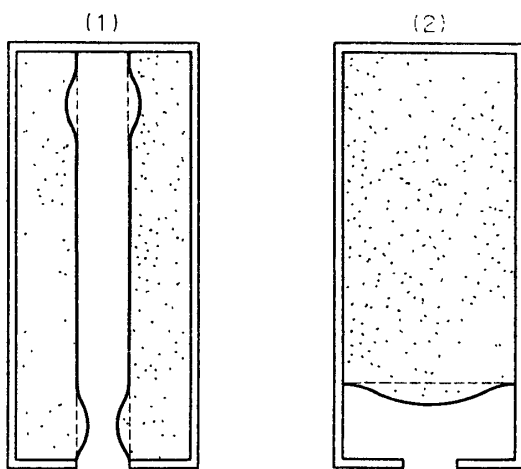


図1 垂直に立てた固体推進剤グレインの変形

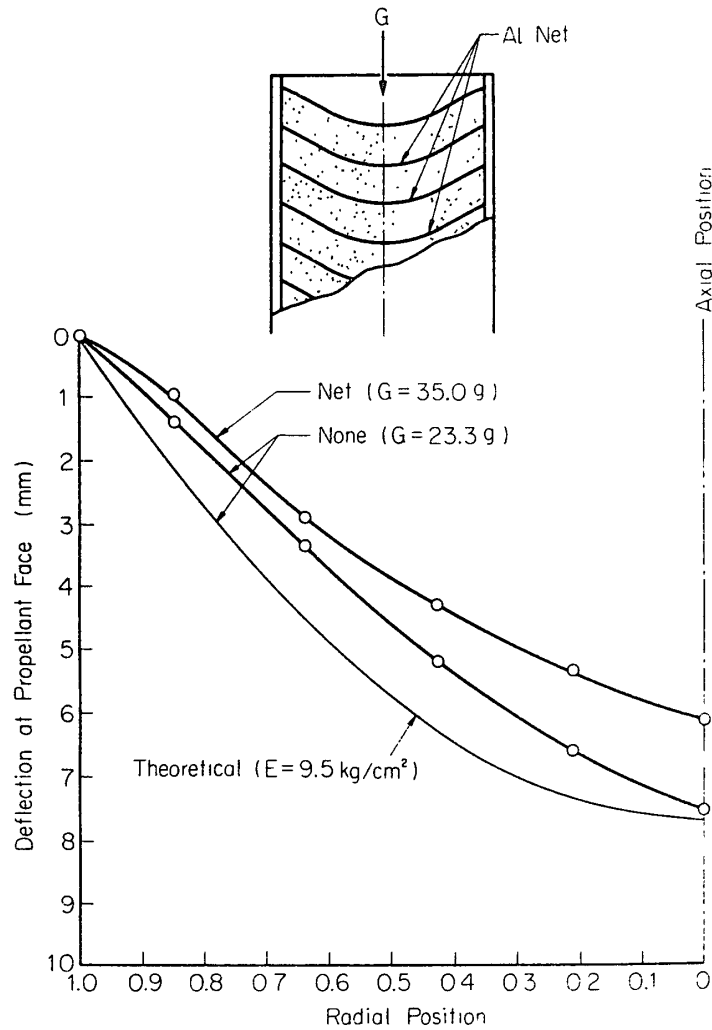


図2 軸方向に加速度を受けた PIB-NH₄ClO₄ 推進剤グレインの変形

図2は網状金属線を加速度を与える方向と直角に埋めた PIB 推進剤と、金属線を含まない場合について自由端面の変形プロファイルと比較したもので、後者に対しては式(1)に基づいた計算値もあわせて示した。アルミニウム網の目幅は 100 mesh、線径は 0.3 mm で網間距離は 20 mm である。このように線末端が器壁に拘束されていない金網を加速度と直角方向に配列した場合でも構造性能にかなりの向上が認められるが、前端側に線末端を接着させ、加速方向と平行に配位すると、その効果は更に顕著となる。たとえば、線径 0.3 mm、線間隔 5 mm の添加密度の銅線で強化したグレインは表面の偏位が全く無視できるほどに小さい。とくに、金網を埋入し、その表面に接着剤を塗って、母体の推進剤との接着力を高めると、グレインの寸法安定性は一層高くなる。

図3は 0.3 mmφ の銅線にエポキシ樹脂を被覆して、燃焼面と直角に埋めた内面燃焼形グレインの一例である。

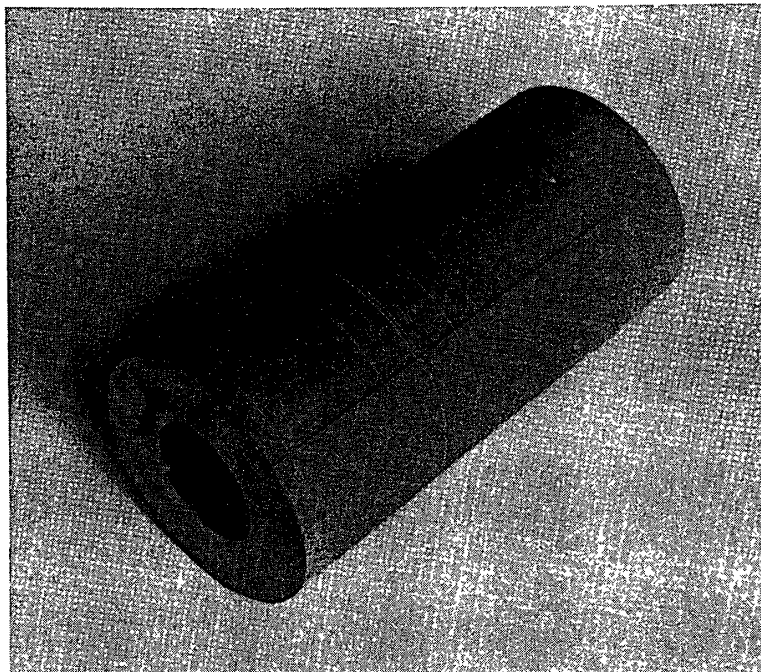


図3 金属ファイバで強化した内面燃焼形固体推進剤グレイン

2.2 機械的性質

ポリブタジエン 25%、過塩素酸アンモニウム 75% からなる推進剤グレインにアルミニウム、ニッケル、銅および銀の細線を埋め、図4に示すようなダンベル試験片を調整して応力とひずみとの関係を求めた。

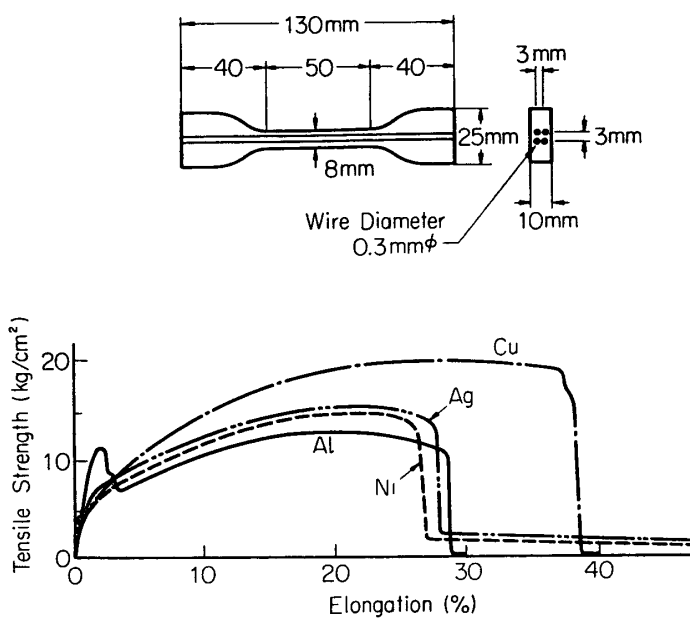


図4 一次元配列の金属線を含む推進剤ダンベル形状と引張り応力-伸び曲線

一次元的に配列した金属線を含むダンベルを引張ると、金属線の種類、太さおよび添加密度によってその効果はまちまちであるが、最大公称応力、弾性係数およびじん性において、それぞれ 1.3~4, 2~1000 および 1.5~2.5 倍の増加をみた。また、引張り途中におけるグレインの外観の変化、応力-ひずみ曲線の様態も金属線の種類によって著しい相違がある。アルミニウム線は引張強度が小さく、もろいので比較的ひずみが少ない時点で最大公称応力に達しそこで切断してしまう。その後の応力-ひずみ曲線の経緯は金属線を含まない場合と同じ形になる。これに対し他の三種はまず金属線から離れたところのグレイン・マトリックスが壊れ、ひずみの増加とともにその白色化した部分が縦方向に広がり、かつ金属線に近づいてゆき、線表面に達した後に金属線が母体の推進剤と離れてすべり始め、あるいは切断する。

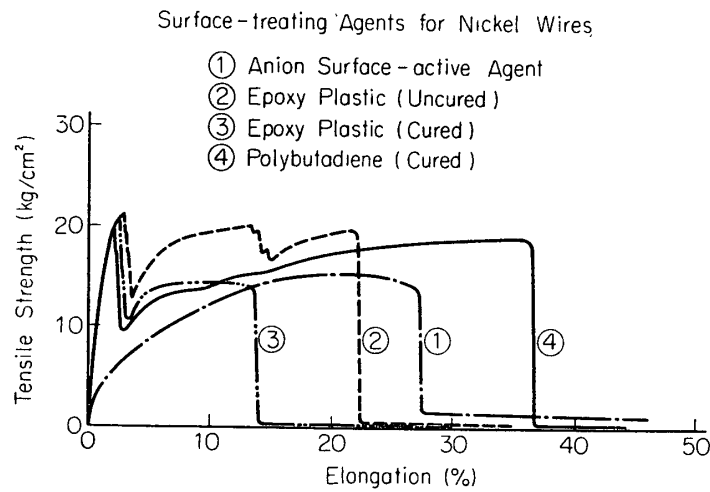


図 5 表面処理を施した一次元配列のニッケル線を含む推進剤ダンベルの引張り応力-伸び曲線

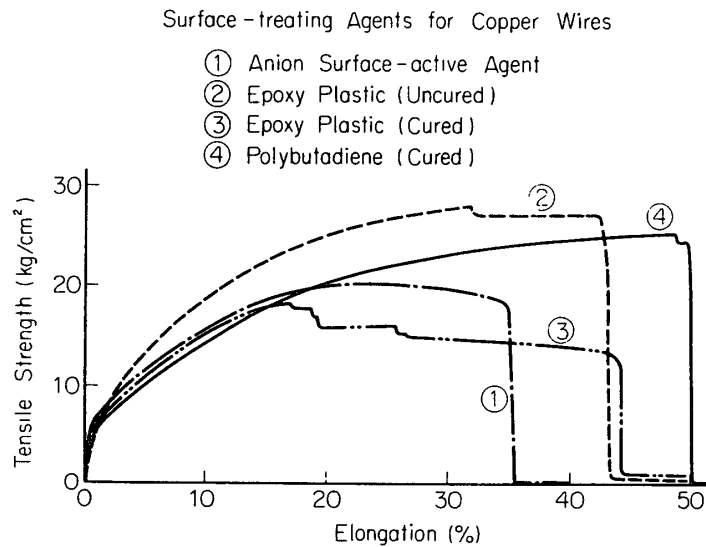


図 6 表面処理を施した一次元配列の銅線を含む推進剤ダンベルの引張り応力-伸び曲線

図4にダンベルの軸方向に金属線を埋入し、引張試験を行なった結果から、代表的なものを選んで引張応力-ひずみ曲線を示した。ニッケル、銀、銅は比較的破断強度が高く、その表面に母体の推進剤に対して強い接着力をもつ境界層をつくると、見掛けの弾性率、最大公称応力ともに一段の増加を期待することができる。図5および図6にエポキシ樹脂、ポリブタジエンを被覆した金属線を含むグレインおよび原料に表面活性剤を配合したグレインの引張り応力が示されている。エポキシ樹脂は金属線に塗布して、一たん硬化後に推進剤ドウを注形するより、未硬化のまま注形した方が好成績を収めた。金属線に表面処理をする効果は、たとえば銅線の場合最大公称応力において 20~30%、引張り応力-ひずみ曲線下の積分値で定義されるじん性については 10~30%、表面処理をしない金属線を埋入したものよりも向上する。

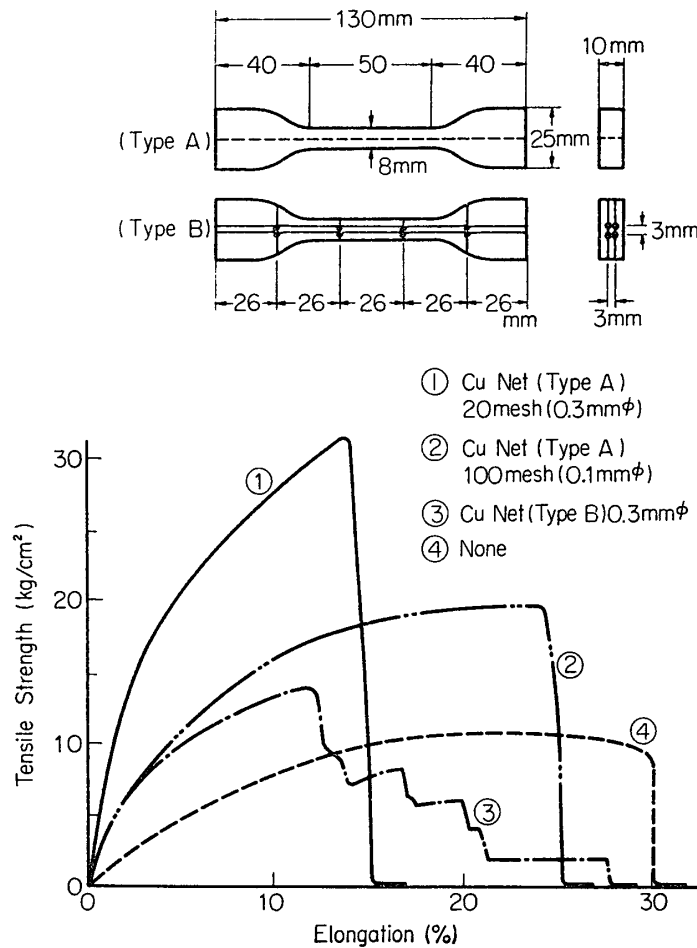


図7 金網を埋入した推進剤ダンベルの形状と引張り応力-伸び曲線

図7は網状の金属線を長さ方向に埋入した推進剤ダンベルの引張り応力-ひずみ曲線を示している。ここで目立つことは、グレインの破断伸びは減少するが、じん性および最大公称応力が 3~4 倍にも増大することである。もちろん、網目のメッシュが細かいほど母体の推

進剤と金属線との間がすべりにくくなり、引張り方向の応力に対する横線の抵抗が強く現われてくる。網目が粗な金網では最大公称応力は大きくなるが、じん性は高くない。金網入りダンベルを引張るとマトリックスの破壊する場所が応力方向と直角の一面に集中する傾向が認められる。金網はそれが網の反対側に進むのをくい止め、長さ方向に伝ばするのを防ぐ役割を果たしている。

このように金網入り推進剤は網面と平行に加わる応力にはきわめて強いが、反面それと直角方向の引張り応力には金属線を含まない場合よりもかえって弱いこともある。三次元的に金属線をグレインに埋入することができれば理想的であり、実際に多軸応力をうける固体推進剤の物性の強化のためにこのようなグレインの製造が望まれている。

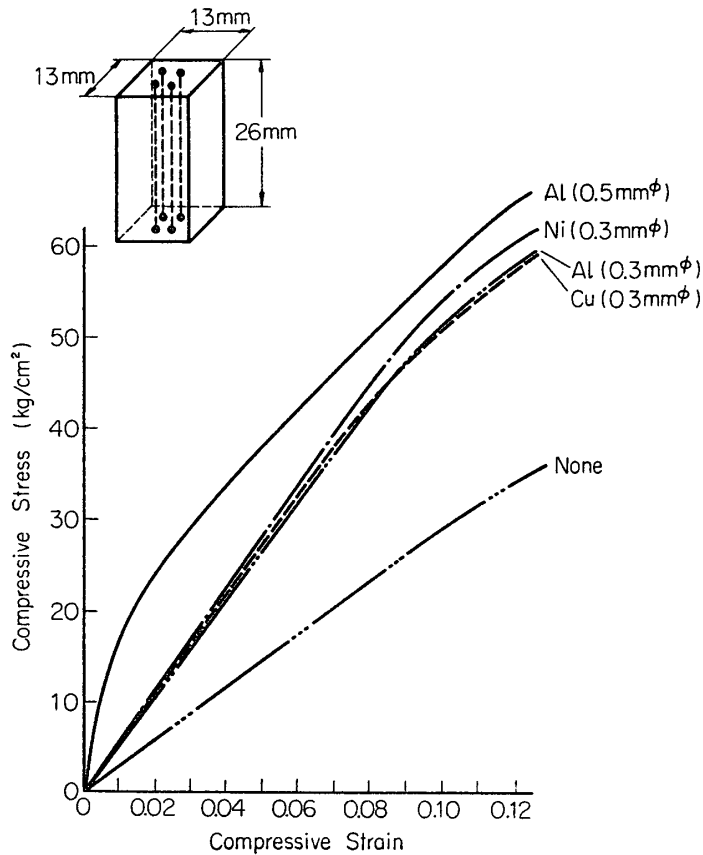


図8 一次元配列の金属線を含むグレインの圧縮応力-ひずみ曲線

図8は金属線を埋めた推進剤試料を圧縮したときの応力-ひずみ曲線を示している。見掛けの圧縮弾性係数は金属線の種類よりはむしろ太さや添加密度と密接な関係をもっている。0.3~0.5mmφの金属線を4本、5mm間隔で埋めた13×13×26mmの試料によって、圧縮弾性係数は金属線を含まない場合と比べて2~7倍にもなることがわかった。大形固体ロケットでは底部推進剤に強い圧縮応力がかかるので、これにあてる推進剤グレインは高水準

の弾性係数をもつものでなければならない。金属線を推進剤に埋入することは、このような要求に応える一つの方法である。

2.3 燃 焼 性

金属線を含むグレインの見掛けの線燃焼速度は著しく高い値を示し、なかでも銀、銅を含む推進剤は 60~100 mm/sec @ 70 kg/cm² にも達する。これによって、固体推進剤の線燃速の可変範囲は大幅に拡大し、モータ設計の融通性が高められたことは特筆に値する。

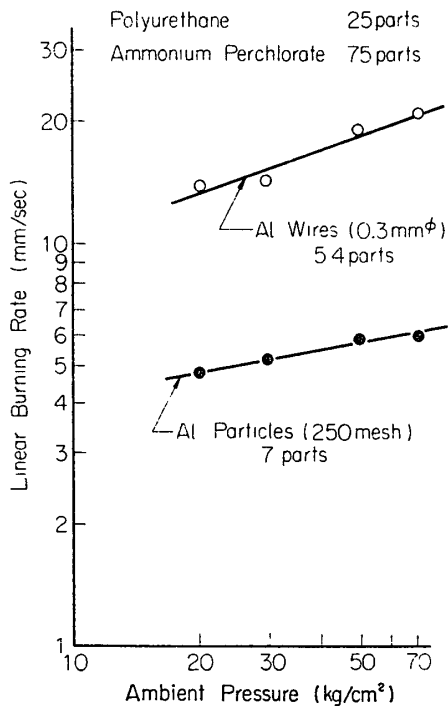


図9 アルミニウム線を埋入した推進剤とそれを含まない推進剤との線燃焼速度の比較

図9には一例として燃焼面と直角方向に0.3mmφのアルミニウム線を埋めたポリウレタン推進剤と、金属線の代わりにアルミニウム粉を含む推進剤について、定常燃焼速度が示されている。金属線を添加することによってどの程度見掛けの線燃速が増加するかは、金属の種類はむろんのこと、線径、添加密度、添加方法によってかなりの開きがあるが、その増加率の範囲は200~1000%にわたっている。最大燃速を与える線径は0.05~0.2mmφの間にあり、また添加密度が高いものほど定常燃速に達するまでの誘導期間は短くなる。もちろん、線燃速の増加に寄与するのは燃焼面と直角に配列した金属線である。

一次元的に金属線を埋入した推進剤グレインの燃焼面には金属線の位置を底として円錐状のくぼみができ、その母線と金属線のなす角度は次式で与えられる[14]。

$$\frac{r_2}{r_1} = \sin \theta \quad (2)$$

ここに r_1 は金属線に沿う推進剤の線燃速、 r_2 は母体の推進剤が単独で燃焼するときの線燃速である。式(2)は定常燃焼におけるグレインの見掛けの線燃速が燃焼面と直角に埋入されている金属線に沿った推進剤の線燃速、すなわち、金属線自体の後退速度に等しいことを意味する。

金属線で強化した推進剤の燃焼のもう一つの特徴は線燃速の圧力指数にある。物質拡散と熱拡散速度で律速される金属線の燃焼は、ある条件範囲において線燃速 (r_1) とふん囲気圧力 (p_c) との間に次の関係が導かれる。

$$r_1 = a p_c^{1/3} \quad (3)$$

ここに a は定数である。式(3)はアルミニウム、ニッケル、銅および銀を一次元的に配列した、燃結剤を異にする推進剤によって、その妥当性が確かめられた。またこの式は線燃速の圧力指数が1/3よりも大きい推進剤に対しては、金属線を埋入すると1/3まで圧力指数を下げるができるが、一方それよりも小さい場合には、1/3まで圧力指数が増大することを示唆している。一般的に燃焼触媒を加えて線燃速を増した推進剤は、その圧力指数が大

きくなる傾向をもち、比較的線燃速が高い過塩素酸カリウムを酸化剤成分とする推進剤の線燃速は圧力指数が $1/3$ をはるかに越えている。金属線を含む推進剤はこのような欠点がなく、燃焼安定性もすぐれている。

燃焼面と直角に網状金属線を埋めた混成推進剤の燃焼速度は一次元的に金属線を配列したものと目立って変わったところはない。すなわち、燃焼面と平行に並んでいる金属線はグレインの線燃速と関連が薄いとみなしてさしつかえない。またそれが未燃焼のまま排出される割合は $0.3\text{mm}\phi$ 内外の金属線を使用した場合、予想外に少ないことがわかったので、ノズル・スロートを狭くしたり、異常燃焼を起こすきっかけをつくることを心配する必要はない。なお、燃焼性に関する詳しい議論はこの論文の主題ではないので、稿をあらためて報告する。

3. ま と め

(1) 一次元方向に $0.1\sim 0.3\text{mm}\phi$ の金属線を埋めた推進剤グレインは最大公称応力、じん性および弾性係数において、金属線を含まない場合と比べると、それぞれ $1.3\sim 2$ 、 $1.5\sim 2.5$ および $2\sim 7$ 倍も増加する。網状金属線を埋めた推進剤グレインの機械的性質は網と平行な応力に対してはまさに強く、最大公称応力で $3\sim 4$ 倍、弾性係数では一挙に $2\sim 3$ けたも上昇する。

(2) 金属線に適当な接着剤、表面処理剤もしくは母体の推進剤の燃結剤を被覆すると、じん性および最大公称応力がかなり増加する。

(3) 加速度をうける方向と平行に配列した金属線を含む推進剤グレインは、 50g 程度の加速度では、その変形を無視してさしつかえない。

(4) 推進剤の見掛けの定常燃焼速度は燃焼面と直角に位置する金属線の後退速度と一致し、燃速の圧力指数は約 $1/3$ となる。

(5) 金属線の代わりにナイロン、ポリエステル、アクリロニトリル、炭素などのファイバを用いても推進剤グレインの物性の改善に役立てることができる。いずれも金属線と比較すればそれらを含むグレインは圧縮弾性率の点で、もの足りない。しかし、線燃速はこれら有機および無機ファイバを加えても大幅には変わらないので、線燃速を高める必要がない場合や、通信障害を起こすために金属燃料の使用ができないときには、強化材料としてこれらファイバが推奨される。

おわりに、本研究の実験に終始助力を得た霜田正隆技官に感謝の意を表します。

1968年8月31日 材料部

参 考 文 献

- [1] G. Golub: Journal Spacecraft and Rocket 2, 4, 593—594 (1965)
- [2] W.S. McEwan, A.S. Gordon and J. Cohen: U.S. Patent 3, 228, 338 (January 1963)
- [3] K. E. Rumbel and M. Cohen: U.S. Patent 3, 109, 374 (November 1963)
- [4] K. E. Rumbel and A.C. Scurlock: U.S. Patent 3, 109, 375 (November 1963)
- [5] K. E. Rumbel, M. Cohen, R.G. Nugent and A.C. Scurlock: U.S. Patent 3, 116, 692

(January 1964)

- [6] A. M. Freudenthal: Proc. of 4th Symp. on Naval Structural Mechanics, Pergamon Press pp. 463—483 (1967)
- [7] E. L. Alexander and A. A. Caputo: *ibid.* pp. 485—502 (1967)
- [8] L. H. Caveny and R. L. Glick Journal. Spacecraft and Rocket 4, 1, pp. 79—85 (1967)
- [9] L. H. Caveny and T. T. Sawyer: AIAA Journal 5, 11, pp. 2004—2010 (1967)
- [10] W. G. Knauss: 20th Meeting Bulletin, JANAFAN Panel on Physical Properties of Solid Propellants, Solid Propellant Information Agency, Johns Hopkins Univ. PP. 14u, Vol. 1, pp. 175—186 (1961)
- [11] M. L. Williams: AIAA Journal 2, 5, pp. 785—808 (1964)
- [12] G. H. Lindsey and M. L. Williams: AIAA Journal 3, 2, pp. 258—262 (1962)
- [13] H. G. Hopkins, F. J. Lockett and J. H. C. Vernon: Journal. Spacecraft and Rocket 3, 9, pp. 1415—1420 (1966)
- [14] A. Iwama, S. Aoyagi, T. Sofue and K. Yamazaki: Proc. of 6th Symp. on Space Technology and Science pp. 57—67 AGNE Publishing Inc. Tokyo (1966)