

ADN 系高エネルギーイオン液体のキャピラリーチューブ内における消炎

井出 雄一郎^{*1}, 高橋 拓也^{*2}, 岩井 啓一郎^{*2}, 野副 克彦^{*2}, 羽生 宏人^{*1}, 徳留 真一郎^{*1,*3}

Quenching of ADN-Based Energetic Ionic Liquid in the Capillary Tube

Yuichiro Ide^{*1}, Takuya Takahashi^{*2}, Keiichiro Iwai^{*2}, Katsuhiko Nozoe^{*2}, Hiroto Habu^{*1}
and Shinichiro Tokudome^{*1,*3}

ABSTRACT

Ammonium dinitramide-based energetic ionic liquid propellant (ADN-based EILP) is studied as low-toxic and high performance monopropellant instead of hydrazine. It is made by mixing three solid powders of ADN, monomethylamine nitrate, and urea. The theoretical specific impulse is 1.1 times higher than that of hydrazine and the density is 1.5 times higher at a composition of ADN/MMAN/urea=40/40/20 wt.%. In the viewpoints of the effect of the viscosity to the propellant feed pressure and weight of the tank and atomization in the chamber of a thruster, there are some problems for application to the thruster due to the high viscosity. We focus the capillary tube has relatively high pressure drop in the propellant feed system. The objective of this paper is to confirm the realistic design of the capillary which prevent a flashback to the propellant tank. According to results of strand burning tests with SUS cylinder imitating capillary tube, it is deduced that the flashback can be prevented in the capillary tube after steady combustion of the thruster in case of capillary tube diameter of no more than 3mm and combustion pressure of 1MPa. Realistic design of capillary tube is confirmed in range of the diameter, around 1 to 2 mm, in the consideration that a total pressure drop of capillary tube and injector is restricted to be 10-30% of combustion pressure for pressure oscillation of combustion chamber.

Keywords: Ammonium dinitramide, capillary tube, flashback, EILPs

概要

ヒドラジンに替わる高性能な低毒性推進剤としてアンモニウムジニトラミド系高エネルギーイオン液体推進剤(ADN 系 EILP)が研究されている. 本推進剤は ADN, モノメチルアミン

doi: 10.20637/JAXA-RR-17-008/0006

^{*} 平成 29 年 11 月 27 日受付 (Received November 27, 2017)

^{*1} 宇宙科学研究所

(Institute of Space and Astronautical Science)

^{*2} カーリットホールディングス株式会社

(Carlit Holdings Co., Ltd.)

^{*3} 総合研究大学院大学

(SOKENDAI (The Graduate University for Advanced Studies))

硝酸塩、尿素の固体粉末を混合することで生成される液体であり、配合比率 $\text{ADN/MMAN/urea}=40/40/20 \text{ wt.}\%$ において理論比推力と密度はそれぞれヒドラジンの 1.1 と 1.5 倍である。ADN 系 EILP は高粘性であることから、供給圧力や推進剤タンク重量、微粒化特性に対して影響することが考えられ、スラスタへの応用には多くの課題がある。本研究では、推進剤供給系において比較的高い圧力損失を生じるキャピラリーチューブに着目し、逆火防止可能な現実的な設計解が存在することを検証することを目的とした。キャピラリーチューブを模した SUS 円筒を用いてストランド燃焼試験を実施した結果、燃焼室圧力 1MPa においてキャピラリーチューブ内径が 3mm 以下であれば定常燃焼後にキャピラリーチューブで消炎可能であることが推定された。また、燃焼室における圧力振動を考慮して、キャピラリーチューブとインジェクタを合わせた圧力損失が燃焼室圧力の 10-30% とすることで、キャピラリーチューブ内径が 1-2mm 程度であることを推定し、現実的な設計解を示した。

1 はじめに

現在、宇宙機の軌道および姿勢制御用スラスタの一液式推進剤としてヒドラジンが使用されているが、発がん性や腐食性が高いことから低毒性推進剤に代替することで取扱性の向上と共に宇宙機の運用コストの削減が求められている¹⁾。高性能な低毒性推進剤としては、ヒドロキシルアンモニウム硝酸塩(HAN)やアンモニウムジニトラミド(ADN)などの高エネルギー酸化剤を水やメタノールなどの溶媒に溶かして生成した一液式推進剤が世界各国において研究されている^{2,3)}。一方、近年溶媒を用いずに ADN を液化することで従来の低毒性推進剤より高密度な一液式推進剤の生成が報告されている⁴⁾。この ADN 系高エネルギーイオン液体推進剤(ADN系 EILP)は、ADN、モノメチルアミン硝酸塩(MMAN)、尿素(urea)の固体粉末を混合することで生成され、 $\text{ADN/MMAN/urea}=40/40/20 \text{ wt.}\%$ において理論比推力と密度はヒドラジンに比べて 1.1 倍と 1.5 倍である⁵⁾。一般にイオン液体とは 100℃以下で融点を持つ塩のことであり⁶⁾、ADN 系 EILP は ADN や MMAN のイオンを含み高粘性かつ難揮発性であることからイオン液体と類似している。筆者らの既往研究によれば、窒素ガスの加圧環境下において ADN 系 EILP のストランド燃焼試験を行うことで自立燃焼性や線燃焼速度等の基礎燃焼特性を把握し、その温度分布と燃焼画像の比較から燃焼波構造を分析した^{5,7)}。しかし、ADN 系 EILP は高粘性であることから微粒化特性の低下やタンク圧力ひいてはタンク重量の増加などが懸念され、ADN 系 EILP をスラスタへ適応するには多くの課題がある。

本研究では、ADN 系 EILP の粘性が推進剤供給系へ与える影響を評価するため、供給系部品の中で比較的高い圧力損失を生じるキャピラリーチューブに着目し、逆火防止可能なキャピラリーチューブの設計解が存在することを検証する。スラスタの供給系単純計算モデルを Fig. 1 に示す。本モデルでは簡単なモデルとするためインジェクタはキャピラリーチューブと同じ内径を持つ単一孔ノズルとした。ここでキャピラリーチューブとインジェクタを合わせた長さとその内径を l_1 と d_1 とし、燃焼室圧力を P_c とする。Fig. 1 は定常燃焼後の状態を

示しており、推進剤の供給が停止することで燃焼室から火炎が逆火しインジェクタやキャピラリーチューブを通過して推進剤タンクへ伝播する可能性がある。そこで、定常燃焼後に逆火した火炎がキャピラリーチューブ内において消炎するように、キャピラリーチューブ内径 d_1 を定量評価する。ただし、逆火した際にインジェクタを通過することになるがこれは許容する。また、本モデルには次の仮定が含まれる。推進剤タンク温度は 0°C とし、比較的高い圧力損失が生じる厳しい条件とした。燃焼室からインジェクタヘッドへの熱移動は考慮せず、キャピラリーチューブとインジェクタおよびその内部の推進剤は推進剤タンクと同じ温度 0°C とする。ただし、キャピラリーチューブやインジェクタへ火炎が逆火した場合は火炎から管内壁面への熱損失は考慮する。定常燃焼後は推進剤の流量がゼロであることから、キャピラリーチューブとインジェクタの内部圧力は燃焼室圧力と同じであり、その圧力は燃焼室圧力の低下と追従して減少する。初期の燃焼室圧力はヒドラジンスラスタと同程度の 1MPa とする。

以上の供給系単純計算モデルにおいて定常燃焼後にキャピラリーチューブ内圧力は燃焼室圧力と共に減少しており、この圧力範囲 (1MPa 以下) において消炎するキャピラリーチューブ内径を推定する。そこで、最初に消炎直径の圧力依存性を実験的に把握し、消炎直径未満の内径を持つキャピラリーチューブの圧力損失を定量評価することで現実的な設計解が存在するかを検証する。

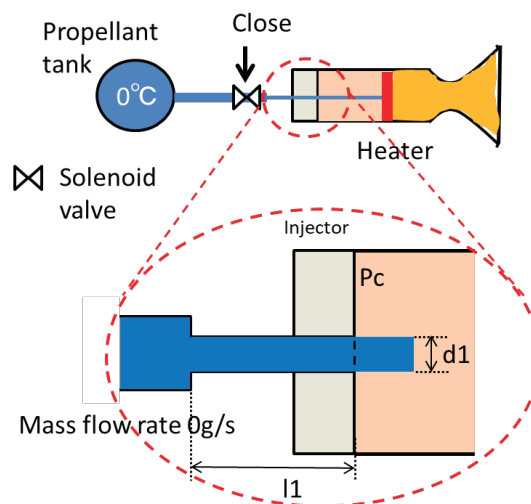


Fig. 1 定常燃焼後の供給系単純計算モデル

2 実験方法

2.1 試料

実験に用いた試料の配合比率は $\text{ADN/MMAN/urea}=40/40/20 \text{ wt.}\%$ の 1 種類とした。筆者らの既往研究⁵⁾において有望な配合比率として $\text{ADN/MMAN/urea}=30/50/20 \text{ wt.}\%$ を選定したが、これは推進剤の断熱火炎温度が SiC/SiC 複合材料を用いた燃焼器の耐熱温度 (約 1873K) を下回ることを選定条件に設けているためである。しかし、この配合比率に比べて

高比推力で断熱火炎温度が 1976K となる配合比率 ADN/MMAN/urea=40/40/20 wt.% においても、放射冷却により燃焼器の壁面温度は断熱火炎温度より低下することから実質的に使用可能であることが期待される。そこで、耐熱材料の高性能化も視野に入れて将来的に有望な配合として、ADN/MMAN/urea=40/40/20 wt.% を検討している。また、この配合比率は ADN/MMAN/urea=30/50/20wt.% に比べて高い燃焼速度を持つこと⁷⁾からより逆火しやすい厳しい条件となっている。

2.2 ストランド燃焼試験

ADN 系 EILP における消炎直径の圧力依存性を把握するため、圧力範囲 0.5-3MPa においてストランド燃焼試験を実施した。Fig.2 にストランド燃焼試験に用いたサンプルの概略図を示す。ガラス管の底に SUS 円筒をエポキシ樹脂で接着し、シリコンゴムで蓋をした。SUS 円筒の寸法に関しては、長さ 15mm、内径 1, 3, 5mm、外径 7, 15mm の計 6 パターンとした。推進剤は SUS 円筒の上面から 20mm の高さまで充填した。サンプルの温度は室温 23℃ 付近であり、上述したモデルの推進剤に比べて高温で逆火しやすい厳しい条件とした。このサンプルをストランド燃焼器内に設置し、窒素加圧環境下において推進剤の液面をニクロム線ヒータで着火した。燃焼の様子はストランド燃焼器の窓を通してビデオカメラで撮影し、燃焼室圧力も計測した。

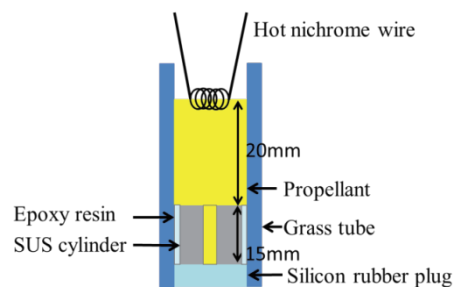


Fig.2 推進剤と SUS 円筒
付きガラス管

次に SUS 円筒内への火炎伝播の判定方法について説明する。液面で発生した火炎は後退し、SUS 円筒内径が消炎直径以上であれば火炎は SUS 円筒内部へ通過すると推測される。そこで、火炎が SUS 円筒の上面まで達した後、SUS 円筒内から内径程度の細い火炎が発生した場合、SUS 円筒内部を火炎伝播したと判定した。一方、SUS 円筒の上面で消炎した場合、SUS 円筒内へ火炎伝播しないと判定した。また、燃焼試験後に回収した推進剤残量を計測して SUS 円筒内の容積に対する推進剤充填率を算出したが、SUS 円筒内から細い火炎が観測された場合も 60% 以上の値を示すことがあった。これは SUS 円筒内の途中で消炎した可能性や SUS 円筒の底面とシリコンゴムの隙間に残留していた推進剤が見かけ上数値を大きくした可能性が考えられ、細い火炎の観測と推進剤充填率 100% 以上を同時に満たす場合が起こり得ることから推進剤充填率は SUS 管内への火炎伝播の判定基準にはならないと判断した。以上から、上述した火炎の観測に基づく方法で火炎伝播の有無を判定することとした。

3 結果と考察

3.1 火炎伝播条件の結果と考察

ストランド燃焼試験における火炎伝播の判定により、SUS 円筒の内径と圧力に関する火

炎伝播条件を取得した。SUS 円筒の外径における影響を考慮して外径 7mm および 15mm における火炎伝播条件をそれぞれ比較したところグラフの傾向が同様であったことから、双方の火炎伝播条件の結果をまとめて Fig. 3 に示した。SUS 円筒の内径と試験時の最大圧力において火炎が SUS 円筒内を伝播したかを判定した。赤及び青のプロット点は、それぞれ火炎伝播したことおよび火炎伝播しなかったことを示す。緑のプロット点は火炎伝播したか判定できなかった点である。その理由は、線燃焼速度が速く、SUS 円筒の上面での消炎と SUS 円筒内からの細い火炎を識別できなかったためである。

この実験条件の範囲内においては、ある圧力および内径において火炎伝播している場合、それ以上の圧力および内径においても火炎伝播している。また、ある圧力および内径において火炎伝播していない場合、それ以下の圧力および内径においても火炎伝播していない傾向がある。この考えを押し進めると、Fig. 3 のように赤及び青の領域はそれぞれ火炎伝播領域と非火炎伝播領域であると推定される。従って、消炎直径の圧力依存性はこの 2 つの領域の間に存在すると考えられる。供給系単純計算モデルにおいては、定常燃焼後にキャピラリーチューブ内圧力は燃焼室圧力と共に減少し、初期圧力 1MPa 以下となる。この圧力範囲において火炎伝播しないようにキャピラリーチューブ内径を設定すれば逆火した火炎は消炎可能であることから、Fig. 3 よりキャピラリーチューブ内径は 3mm 以下に設定することが求められる。また、このことは室温の推進剤において成立するが、本モデルの推進剤温度 0°C においては火炎による推進剤の予熱や壁面への熱損失の影響が大きくなり、消炎直径が拡大すると考えられることから、キャピラリーチューブ内径の上限を 3mm に設定することはより安全であると推察される。

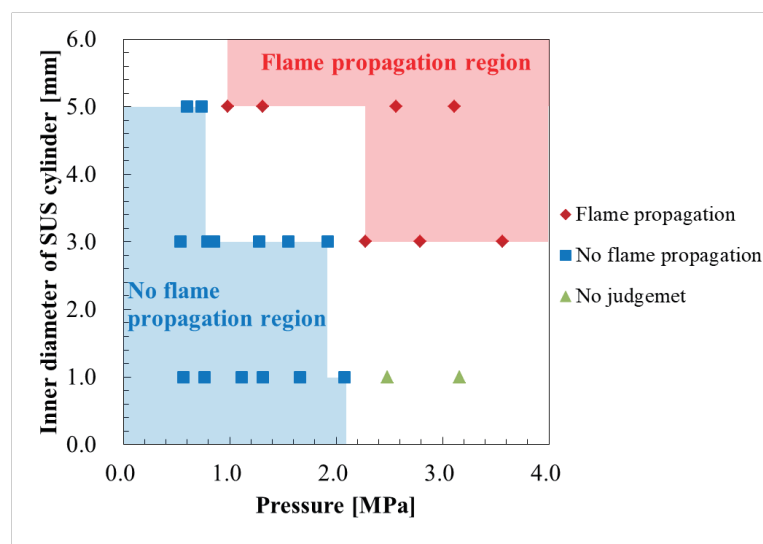


Fig. 3 外径 7mm と 15mm の SUS 円筒における火炎伝播条件

3.2 キャピラリーチューブ内径の推算

前節では消炎可能となるキャピラリーチューブ内径を推定した。ここでは、燃焼室圧力 1MPa においてスラスタが定常燃焼することを想定して、キャピラリーチューブとインジェクタを合わせた圧力損失を推算し、この結果に基づいて適切にキャピラリーチューブ内径を選定する。

以下、キャピラリーチューブとインジェクタを合わせた圧力損失 ΔP_1 を算出する。長さ l_1 の管内において ADN 系 EILP をニュートン流体と仮定すると、 ΔP_1 はよく知られるハーゲン・ポアズイユ流れの圧力損失となる：

$$\Delta P_1 = \frac{64}{\text{Re}_1} \frac{l_1}{d_1} \frac{\rho v_1^2}{2} \quad \cdots \text{Eq. 1}$$

$$\text{Re}_1 = \frac{\rho v_1 d_1}{\mu} \quad \cdots \text{Eq. 2}$$

ただし、管内流れは層流であるとする。ここで v_1 は管内の平均流速である。また、 ρ と μ はそれぞれ ADN 系イオン液体の密度と粘度である。 Re_1 はキャピラリーチューブからインジェクタまでの流路の内径 d_1 に対応するレイノルズ数である。 v_1 は比推力 I_{sp} の定義 (Eq. 3) と質量流量 m の式 (Eq. 4) から算出される。

$$F = I_{sp} mg \quad \cdots \text{Eq. 3}$$

$$m = \rho v_1 \frac{\pi d_1^2}{4} \quad \cdots \text{Eq. 4}$$

ここで、 F は推力、 g は海面上の標準重力加速度 (9.80665m/s^2) である。ここで、推力については比較的小推力のスラスタへの応用を想定し、1, 3, 10N の 3 水準に設定した。以上により、Table 1 と Table 2 の計算条件および Eq. 1・Eq. 4 を用いることで、圧力損失 ΔP_1 を算出することができる。ただし、比推力 I_{sp} は化学平衡計算ソフト NASA-CEA⁸⁾ を用いて算出した。計算条件は、準一次元断熱凍結流、燃焼室圧力 1MPa、ノズル開口比 50 である。また、は現実的に取り得る長さを選定した。ただし、SUS 円筒長さ 15mm よりも長い値を 3 つパラメータに取った。一方、内径 d_1 は前節の結果に基づいて消炎可能となるキャピラリーチューブ内径となるように 3mm 以下とした。

Fig. 4 に各推力におけるレイノルズ数の計算結果を示す。この結果より Re_1 は円管内流れにおいて乱流に遷移する臨界レイノルズ数 2300 より低い値であることから、流れは層流であると判断できる。従って、ADN 系 EILP をニュートン流体と仮定すると、管内流れはハーゲン・ポアズイユ流れとなり、圧力損失 ΔP_1 は Eq.1 で表せる。

Table 1 計算条件 1：スラスタと推進剤の特性値

F	I_{sp}	P_c	ρ	$\mu@273\text{K}$
N	s	MPa	g/cc	mPa・s
1, 3, 10	249.9	1.00	1.49	332

Table 2 計算条件 2：推進剤供給系における配管サイズ

d_i	l_i
mm	mm
0.1-3.0	30, 50, 100

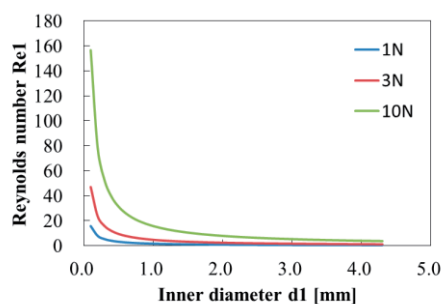


Fig. 4 各推力 1, 3, 10N でのレイノルズ数 の管内径 に対する依存性

推力 1, 3, 10N における計算結果を Fig. 5・7 にそれぞれ示す. 各グラフに示された 3 つの曲線は $l=30, 50, 100\text{mm}$ における内径 d_i に対する圧力損失 ΔP_i の依存性を示している. 推力 1, 3, 10N において, 内径 d_i の減少に対して $d_i=1.5, 2.0, 3.0\text{mm}$ 付近から指数的に圧力損失 ΔP_i が増加していることが分かる. 従って, この推力レベルでは内径 1・2mm 付近において比較的圧力損失が低く小型軽量のキャピラリーチューブであるといえる. 一般に, 燃焼室における圧力振動により推進剤供給系へ推進剤が逆流することを防止するため, インジェクタの圧力損失を燃焼室圧力の 10-30%程度となるように設定する. そこで, 圧力損失 ΔP_i を 0.1・0.3MPa とすることで, Fig. 5-7 の関係から内径 d_i を選定する. Table 3 に $l_i=50\text{mm}$ におけるキャピラリーチューブ内径の取り得る範囲を示す. 各推力において内径 d_i は 1・2mm 程度であることが分かり, 逆火防止可能で現実的なキャピラリーチューブ内径の設計解が存在することが確認できる.

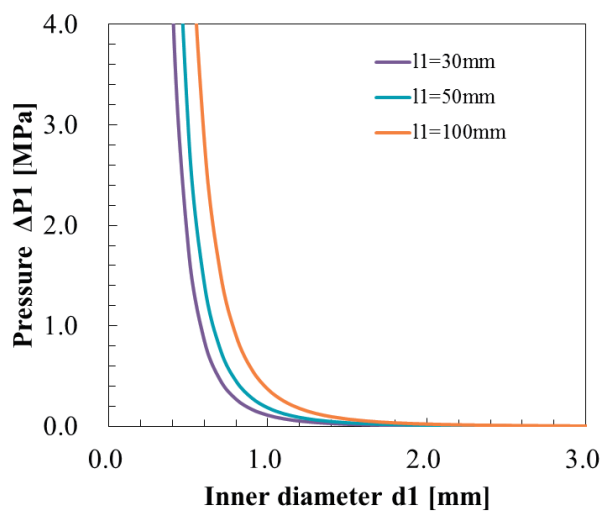
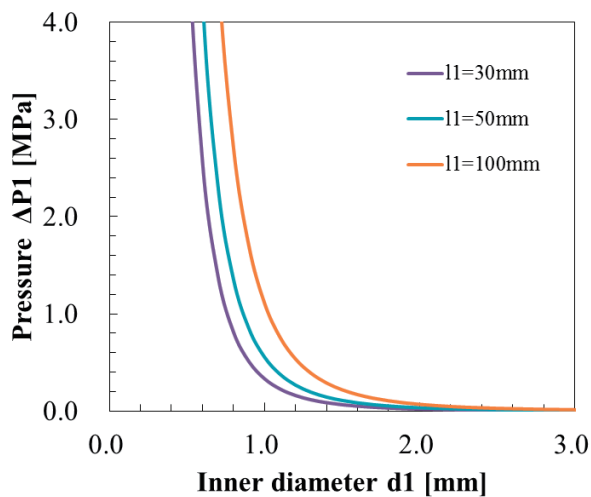
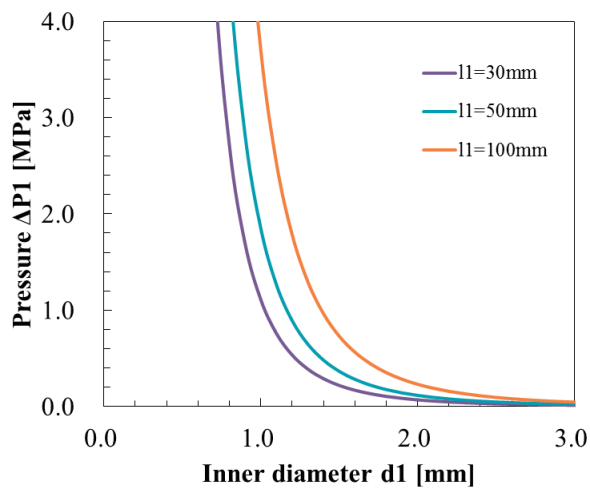
Fig. 5 推力 1N での内径 d_1 に対する ΔP_1 の依存性Fig. 6 推力 3N での内径 d_1 に対する ΔP_1 の依存性Fig. 7 推力 10N での内径 d_1 に対する ΔP_1 の依存性

Table 3 各推力における逆火防止可能な d_1 の範囲とそれに対応する ΔP_1 の範囲の推算結果 ($l_1 = 50\text{mm}$ の場合)

F	d_1	ΔP_1
N	mm	MPa
1	0.89 – 1.17	0.3 – 0.1
3	1.17 – 1.54	0.3 – 0.1
10	1.58 – 2.07	0.3 – 0.1

4 まとめ

ヒドラジンに替わる高性能な低毒性推進剤としてADN系EILPが研究開発されているが、イオン液体と同様に高粘性（室温で $100\text{mPa} \cdot \text{s}$ 程度）であることから粘性が推進剤供給系へ与える影響や微粒化特性の低下などスラストへの応用について多くの課題がある。本研究では、粘性が推進剤供給系へ与える影響を評価するため、高い圧力損失を生じるキャピラリーチューブに着目し、供給系単純計算モデルに基づいて逆火防止可能なキャピラリーチューブの設計解が存在することを定量的に評価した。逆火を防止するためにはキャピラリーチューブ内径を消炎直径未満に設定する必要がある、消炎直径の圧力依存性を把握するためストランド燃焼試験を実施した。キャピラリーチューブを模したSUS円筒にADN系EILPを充填し、ストランド燃焼試験を行うことで火炎伝播条件を把握した。この結果、キャピラリーチューブ内径を 3mm 以下に選定することで、燃焼室圧力 1MPa の定常燃焼後に推進剤タンクへの逆火を防止できることが推定された。また、キャピラリーチューブとインジェクタを合わせた圧力損失の内径依存性を理論解析し、比較的低い圧力損失を示す内径 d_1 が存在することを確認した。燃焼室内における圧力振動を考慮すると、この圧力損失は燃焼室圧力の10-30%となることからキャピラリーチューブの内径 d_1 はおよそ $1 \sim 2\text{mm}$ であることが分かり、逆火防止可能で現実的なキャピラリーチューブの設計解が存在することを推定した。

参考文献

- 1) Bombelli, V., Simon, D., Marée, T. and Moerel, J. L., Economic Benefits of the Use of Non-Toxic Mono-propellants for Spacecraft Applications, Proc. 39th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference and Exhibit, AIAA 2003-4783, (2003).
- 2) Larsson, A. and Wingborg, N., J. Hall (Ed.), Advances in Spacecraft Technologies, InTech, (2011), pp.139-157.
- 3) Katsumi, T., Kodama, H., Matsuo, T., Ogawa, H., Tsuboi, N. and Hori, K., Combustion Characteristics of a Hydroxylammonium Nitrate Based Liquid Propellant. Combustion Mechanism and Application to Thrusters, Combustion, Explosion, and Shock Waves, Vol.45, No.4 (2009), pp.442-453.
- 4) 松永 浩貴, 羽生 宏人, 三宅 淳巳, 高エネルギー物質を用いたイオン液体推進剤の研究, 宇宙航空研究開発機構研究開発報告, JAXA-RR-14-005, 2015, pp. 1-10
- 5) Ide, Y., Takahashi, T., Iwai, K., Nozoe, K., Habu, H. and Tokudome, S., Potential of ADN-based Ionic Liquid Propellant for Spacecraft Propulsion, Procedia Engineering, Vol.99, (2015), pp.332-337.

- 6) Wilkes, J. S., A Short History of Ionic Liquids—from Molten Salts to Neoteric Solvents, *Green Chem.*, Vol.4, (2002), pp.73-80.
- 7) Ide, Y., Takahashi, T., Iwai, K., Nozoe, K., et al., “Combustion Characteristics of ADN-based Ionic Liquid Propellant” , *Trans. JSASS Aerospace Tech. Japan*, Vol. 14, No. ists30, pp. Pa_89-Pa_94.
- 8) S. Gordon, B. J. McBride, Computer program for calculation of complex chemical equilibrium compositions and applications, NASA Reference Publication, 1311, (1994).