

X線CTを用いたコンポジット推進薬捏和における充填構造の可視化

寺嶋 寛成^{*1}, 細見 直正^{*2}, 岩崎 祥大^{*3}, 松本 幸太郎^{*4}, 羽生 宏人^{*4}, 山口 聡一朗^{*1}

Visualization of packing structure in kneading process of composite propellant by using X-ray CT

Kansei Terashima^{*1}, Naomasa Hosomi^{*2}, Akihiro Iwasaki^{*3}, Kotaro Matsumoto^{*4}, Hiroto Habu^{*4}
and Soichiro Yamaguchi^{*1}

Abstract

In order to put a peristaltic artificial mixer to practical use, it is necessary to understand the kneading mechanism at the same time as developing the device. However, the kneading mechanism by peristaltic motion has not been understood through various fields. In this study, the thickness of pre-blended slurry (mixture of terminal hydroxyl group polybutadiene, aluminum powder and small particle size ammonium perchlorate particles) wrapped around the oxidizer particles of the propellant in detail is visualized using X-ray CT scanning. When the thickness of the dispersion medium exceeds a threshold value in the range of 20 to 40 μm , the dispersion medium penetrates into the propellant.

Keywords: X-ray CT, composite propellant, packing structure, wettability

概要

蠕動運動型混合器を実用化するには、装置開発と並行して捏和メカニズムの詳細な解明が不可欠である。しかし、蠕動運動による捏和メカニズムは様々な分野を通して解明されていない。本研究では、X線CT撮像を用いて詳細に推進薬の酸化剤粒子に纏う予捏和スラリ（末端水酸基ポリブタジエン、アルミニウム粉末、小粒径の過塩素酸アンモニウム粒子の混合物）の厚さを可視化した。分散媒の厚さが20～40 μm の間にある閾値を超えると、推進薬内部に分散媒が浸透する。

1. 緒言

固体推進薬の連続捏和技術は、大量生産・製造性向上を目的としており、将来獲得すべき技術の一つとして挙げられている¹⁾。既存のニーダを用いたブリプラント開発が進む中²⁾、推進薬製造の安全性を抜

doi: 10.20637/JAXA-RR-17-008/0010

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

^{*1} 関西大学 理工学部 物理・応用物理学科

(Department of Pure and Applied Physics, Faculty of Engineering Science, Kansai University)

^{*2} 関西大学大学院 理工学研究科 システム理工専攻

(Engineering Science Major, Graduate School of Science and Engineering, Kansai University)

^{*3} 総合研究大学院大学 物理科学研究科 宇宙科学専攻

(Department of Space and Astronautical Science, School of Physical Sciences, The Graduate University for Advanced Studies)

^{*4} 宇宙科学研究所 宇宙飛行工学研究系

(Division for Space Flight Systems, Flight Systems, Institute of Space and Astronautical Science, Japan Aerospace Exploration Agency)

本的に改善するという新たな切り口で、蠕動運動型混合器を用いた連続製造システムの検討が進んでいる。既存のロータ回転による捏和では製造効率と推進薬製造の安全性はトレードオフの関係であったが、蠕動運動型混合器ではソフトアクチュエータとゴム伸縮(収縮動作)による捏和によってこれらの問題を解決できる³⁾。一方で、この全く新しい捏和機構を持つ蠕動運動型混合器を実用化するには装置開発と並行して、捏和による推進薬組成の分散過程を評価する技術と捏和メカニズムの詳細な解明が不可欠である。

捏和過程における推進薬中の成分分散を評価する手法として、我々は X 線 CT 撮像による推進薬内部の非破壊測定に着目して研究を行ってきた⁴⁾。X 線 CT 画像中の輝度値は構成材料の化学種や密度に依存するため、推進薬捏和における推進薬成分の分散を輝度値の分散と置き換えて評価できる。CT 撮像実験では、推進薬捏和において推進薬成分の分散が CT 画像から確認でき、また輝度値の分散も理論値とほぼ一致することが確認された。しかし、蠕動運動型混合器というアクチュエータや機構すら既存と異なった混合器の捏和メカニズム理解には、輝度値分散と組成分散の定性的な一致では不十分である。

蠕動運動型混合器の収縮動作によるコンポジット推進薬捏和の中でも、混合物が流動性を得るための酸化剤の粒子隙間へバインダ浸透は粉体に関する研究開発の分野でも解明されていない。消化管収縮動作およびその生体模擬動作による混合操作はロボティクス・医科工学に目を向けても対象は流動体に限られていたためである^{5) 6)}。粉体を対象としたものは Yoshioka ら⁷⁾の蠕動運動に乾式粉体の搬送のみであり、ポリマーバインダの湿式粉体が対象ともなれば、その捏和メカニズムの理解には、X 線 CT 撮像を用いて詳細に充填構造遷移を追っていく必要がある。X 線 CT 撮像技術を用いれば、推進薬中の酸化剤粒子のバインダ濡れ状態やバインダの厚さまで可視化し、定量評価することが期待できる。

2. 模擬推進薬充填構造に関するバインダ比率と物理特性の相関

2.1 模擬推進薬の作製

プラネタリミキサで模擬コンポジット推進薬を捏和した。模擬コンポジット推進薬の材料には、塩化カリウム (KCl) 粒子 (精製塩化カリウム, ダイヤソルト製), 粒径 5 μm アルミニウム (Al) 粉末 (TFH-A05P, 東洋アルミニウム製), 末端水酸基ポリブタジエン (HTPB, P-41, JSR 製)を用いた。KCl 粒子に関しては篩を用いて粒径 425 - 300 μm のものを分粒して用いた。まず、材料をすべて真空脱気処理し、HTPB と Al 粉末を 10 分真空予捏和した。得られた予捏和スラリと KCl 粒子を 30 分真空捏和した。プラネタリミキサのバッチ内は 65 $^{\circ}$ C の温水で加温した。プラネタリミキサの攪拌ブレードは公転速度 7.8 rpm, 自転速度 15.0 rpm とした。予捏和スラリ : KCl の重量組成比が 10 : 90, 20 : 80, 30 : 70 の 3 組成を作製し、予捏和スラリにおける HTPB : Al 粉末の重量組成比は 2 : 3 の実用推進薬と同等比率で統一した。それぞれの模擬推進薬に関して流動性や塑性を調べた。

2.2 予捏和スラリの割合に依存した物理特性

各組成比に対して光沢、流動性、塑性の有無をまとめた表を Table.1 に示す。予捏和スラリ割合が高ければ液体の性質により光沢や塑性が生じ、予捏和スラリ割合が 30%程度では流動性は出なかった。

Table.1 予捏和スラリ組成比と推進薬の物理特性

予捏和スラリ : KCl	10:90	20:80	30:70
光沢	無し	無し	有り
流動性	無し	無し	無し
塑性	無し	無し	有り

2.3 X線CTを用いた充填構造の可視化

模擬推進薬はスライドガラス上にエポキシ接着剤を用いて固定した (Fig.1). これらのサンプルを TOSCANER 32300 μ FPD (TOSHIBA) を用いて X 線 CT 画像を撮像した. 撮像条件は Table.2 の通りである.

Table.2 TOSCANER 32300 μ FPD 撮像条件

管電圧	130	kV
管電流	300	μ A
画素数	1024 x 1024	pixel
画素サイズ	44.4	μ m
ダイナミックレンジ	16	bit

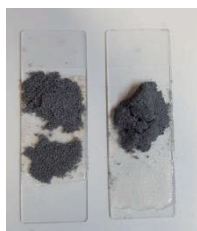


Fig.1 実験試料

撮像した CT 画像を Fig.2 に示す. CT 画像における明るく多角形に映る粒子は KCl 粒子, KCl 粒子周囲にある暗い領域が予捏和スラリ, 最も暗い領域が空気である. 予捏和スラリの割合が 10%の試料は粒子同士が粘結するほどの予捏和スラリが無い. また推進薬内外で空気成分が連続している. 20%の試料では粒子同士が粘結している部分もあるが, そうでない部分もあり, 空気成分が推進薬内外で連続している. 30%の試料では粒子同士が粘結し推進薬内外で空気成分が不連続である. このように予捏和スラリの割合が高くなると粒子同士が粘結するほど予捏和スラリが粒子に纏う.

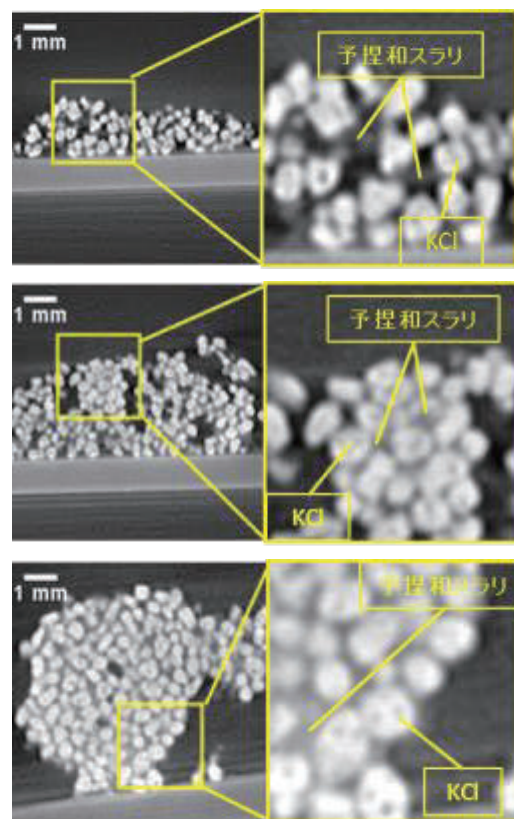


Fig.2 予捏和スラリ割合の異なる推進薬の CT 画像

(上)10%, (中央)20%, (下)30%

3. 蠕動運動型混合器による捏和

3.1 実験試料の作成方法

混合器に中央大学中村研究室が製作した蠕動運動型混合器 Mk. II を用いて, コンポジット推進薬を捏和した. 混合器のサーキュレータから温水 (サーキュレータ設定温度 80 $^{\circ}$ C) を供給することで温度調整を行い, 駆動用圧縮空気はコンプレッサから供給, 圧力調整弁を用いて 50 kPa に変圧し印加することで混合器を稼働させた. 混合器の駆動周期は 6 秒である.

捏和する推進薬材料には AP 粒子 (粒径 400, 200, 50 μ m), Al 粉末 (粒径 5 μ m), HTPB, アジピン酸ジオクチル(DOA), イソホロジイソシアネート(IPDI) を用いた. 組成は AP: Al: HTPB: DOA: IPDI = 68: 18: 12: 1: 1 である.

3.2 撮像試料の特徴と撮像条件

予捏和スラリ量の異なる試料を X 線 CT 撮像するために, 推進薬を 30 分捏和した推進薬から特徴的なサンプルを採取した. Fig.3 に採取したサンプルを示す. Fig.3(左)のサンプルは塑性, 流動性, 光沢といった物理特性を持たない. このサンプルは, Table.1 から HTPB(予捏和スラリ)量の少ないサンプルだと考えられる. 一方で, Fig.3(右)のサンプルにはこれらの物理特性

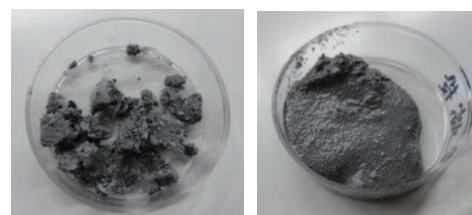


Fig.3 (左) 流動性/光沢が無い試料, (右) 流動性/光沢の有る試料

を持ち予捏和スラリ量の多いサンプルと考えられる。これらのサンプルにラウリン酸ジブチルスズ (DBTDL) を少量添加，急速硬化したものを一辺 4 mm 程度の立方体に加工し，X 線 CT 撮像試料を作製した。撮像条件を Table.3 に示す。撮像実験に用いた X 線 CT 装置は，高い分解能を持つ X 線顕微鏡 nano3DX (株式会社リガク) である。高分解能な X 線 CT 装置を用いることで，推進薬中の詳細な充填構造が可視化・分析ができる。

3.3 予捏和スラリ量の異なる推進薬 CT 画像と粒子間隙の予捏和スラリ厚さの計測

Fig.4, Fig.5 に予捏和スラリ量の異なる推進薬の気泡を映した CT 画像を示す。Fig.4 は予捏和スラリ量が多い試料である。この CT 画像は ImageJ を用いて粒子を強調するような画像処理を行った。Fig.4 において中央に映る黒い球形の部分は気泡である。球形であることは液状である予捏和スラリに対して空気と接触している表面積を小さくしようとする表面張力が働くためである。気泡の形状が球形であることでこの領域は予捏和スラリが浸透し，十分に流動性が有ると判断した。Fig.5 はバインダ量の少ない試料である。Fig.5 中の気泡の形状は多角形である。これは粒子に予捏和スラリが纏っておらず，気泡の形状が粒子の形状の影響を受けている。ポイドが多角形であることでこの領域は Fig.4 の領域に比べ予捏和スラリの浸透量が少ないと推測できる。

“AP 粒子が纏っている予捏和スラリの厚さ”(以下，予捏和スラリ厚さ) を濡れ状態の指標として定量的に測定する。三次元的に予捏和スラリ厚さを測るために三次元画像解析ソフト Vaa3D を用いた。Fig.6 は Vaa3D を用いた三次元画像である。Fig.6 中の白色のプロット間の距離で表されるような最近接粒子間の長さに関して，その半分を一つの粒子が纏う予捏和スラリの厚さとして算出した。なお白色プロットの位置は三次元画像の視点を変えて決めたため，算出された厚さは正確な値ではなく大まかな値である。Fig.4, Fig.5 を含む CT 画像に対して三次元的に粒子間の予捏和スラリの厚さを測定した大まかな数値を Table.4 に示す。

Table.4 光沢の有無と予捏和スラリの厚さ

光沢	有り	無し
粒子間の予捏和スラリの厚さ	40	20

光沢があり予捏和スラリ量の多いと推測される試料では各粒子は 40 μ m 程度の厚さの予捏和スラリを纏っていた。それに比べ光沢のない試料では 20 μ m 程度であり，各粒子に纏う予捏和スラリの厚さが薄いことがわかった。粒子が予捏和スラリを纏うことで推進薬に光沢が生じるような厚さの閾値があるはず

Table.3 nano3DX 撮像条件

管電圧	40	kV
管電流	30	mA
X 線エネルギー	8	keV
画素数	3.300 x 2500	pixel
画素サイズ	4.32	μ m
ダイナミックレンジ	16	bit

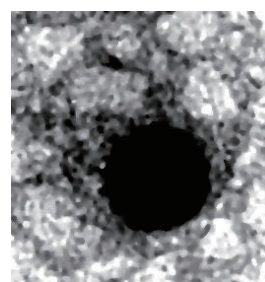


Fig.4 流動性をもつ試料の CT 画像

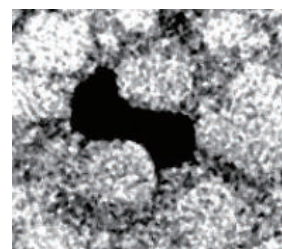


Fig.5 流動性を持たない試料の CT 画像

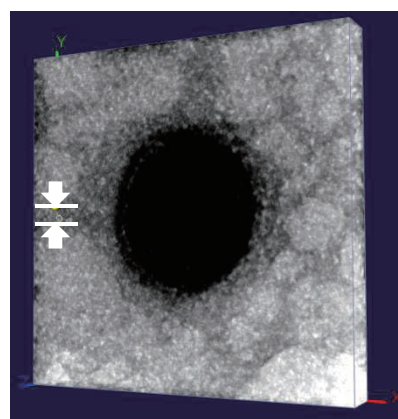


Fig.6 Vaa3D を用いた三次元画像

である。その閾値は20~40 μm の間にあると考えている。

4. まとめ

AP/HTPB系コンポジット推進薬において予捏和スラリの割合によって推進薬の物理特性が異なる。捏和途中の推進薬において流動性が異なる試料の分析を行った。CT画像を三次元的に解析することで粒子間にある予捏和スラリの厚さを測ることができた。気泡の形状が球形になるようなAP粒子(粒径400, 200 μm)に纏う予捏和スラリ(HTPB, Al粉末, 小粒径AP粒子)の厚さにおける閾値は20~40 μm の間にある。この値は粒子間の距離に置き換えると40~80 μm となる。この範囲は予捏和スラリ中で最も小さい粒径のAP粒子(粒径50 μm)の粒径を含む範囲である。粒子間距離が短いと大径AP粒子間を小径AP粒子が塞ぐ。そのためこの範囲は予捏和スラリがAP粒子間を浸透できるかどうかを示す値であると考えている。

<謝辞>

X線顕微鏡 nano3DXの使用でお世話になりました関西大学 化学生命工学部 電気化学研究室の山縣雅紀准教授、および、山本博文研究員に感謝申し上げます。また、高分解能マイクロCT TOACANER-32300 μhd を使用した実験でご協力くださいましたJAXA航空技術部門構造/複合材技術研究ユニット杉本直様に感謝申し上げます。

<参考文献>

- 1) J. Guery, I. Chang, T. Shimada, M. Glick, D. Boury, E. Robert, J. Napior, R. Wardle, C. Perut, M. Calabro, R. Glick, H. Habu, N. Sekino, G. Vigier and B. Andera; "Solid propulsion for space applications: An updated roadmap", *Acta Astronautica*, 66, 2010, pp.201-209
- 2) D. Soccimarro, P. Parugini and M. Fabrizi; "FUTURE LANCH – NEW TECHNOLOGIES FOR SOLID PROPULSION", *Proceedings of the 63rd International Astronautical Congress, IAC-12.C4.9.4* (October, 2012)
- 3) A. Iwasaki, S. Yoshihama, K. Otake, N. Hosomi, N. Uegaki, K. Matsumoto, Y. Yamada, S. Yamaguchi, T. Nakamura and H. Habu; "PERFORMANCE EVALUATION OF COMPOSITE PROPELLANT SLURRY MIXING BY PERISTALTIC CONTINUOUS MIXER", *Proceedings of the 67th International Astronautical Congress, IAC-16.C4.2.7* (September, 2016)
- 4) N. Hosomi, K. Otake, N. Uegaki, A. Iwasaki, K. Matsumoto, H. Habu and S. Yamaguchi; "Analyzing Dispersion of Particles and Void in AP/HTPB Composite Propellant by X-ray Computed Tomography", *Proceedings of the 31st International Symposium on Space Technology and Science*, a-29 (June, 2017)
- 5) 梅谷陽二, 伊能教夫; 「蠕動運動の生物工学研究—腸管運動と内容物の関係—」, 20, 1984, pp.548-553
- 6) T. Miyagawa, Y. Imai, S. Ishida and T. Ishikawa; "Relationship between gastric motility and liquid mixing in the stomach", *American Journal of Physiology - Gastrointestinal and Liver Physiology*, 311, G1114-1121
- 7) N. Yoshioka and H. Hayakawa; "Phase transition in peristaltic transport of frictionless granular particles", *PhysRevE*, 85, 031302