

パルスレーザーを用いた低毒一液推進剤の点火に関する実現可能性評価

勝身 俊之^{*1}, 古澤雅也^{*1}

Feasibility study on ignition of green monopropellant using a pulse laser

Toshiyuki Katsumi^{*1}, Masaya Furusawa^{*1}

ABSTRACT

Monopropellant thruster has been widely used as a reaction control system of a satellite, spacecraft and so on. Currently, HAN-based and ADN-based green monopropellants have been researched and developed as an alternative of conventional hydrazine monopropellant because hydrazine has high toxicity. These monopropellants cause combustion because these contain an oxidizer and fuel, and flame temperatures are higher than the hydrazine. For a ignition and combustion methods, high resistance to such combustion environment as high temperature and oxidation atmosphere is necessary. We focused on laser ignition which has high durability in a combustion environment. As one of feasibility studies, ignition tests of a HAN-based monopropellant droplet were performed in a closed chamber using a pulse laser. We measured inside pressures of the chamber and analyzed product gases with several different laser energies. As the result, it was found that propellant droplet can decompose and gasify partially by pulse laser.

Keywords: Hydroxylammonium nitrate, Green monopropellant, Laser ignition, Droplet, Pulse laser

概要

宇宙機の姿勢制御などに用いられる 1 液スラスタでは、現在、推進剤としてヒドラジンが使用されているが、高い毒性を有することから、近年、Hydroxylammonium Nitrate (HAN) や Ammonium Di-nitramide (ADN) を主剤とする低毒 1 液推進剤の研究開発が活発に進められている。これらの低毒 1 液推進剤は酸化剤成分と燃料成分を含み燃焼を伴うことから、高温酸化雰囲気において高い耐久性を有する点火方法・燃焼制御方法が必要である。そこで、高温酸化雰囲気において劣化や損耗のほとんどないレーザー一点火に着目した。本研究

doi: 10.20637/JAXA-RR-16-006/0003

* 平成 28 年 11 月 24 日受付 (Received 24 November, 2016)

^{*1} 長岡技術科学大学大学院 機械創造工学専攻
(Department of Mechanical Engineering, Nagaoka University of Technology)

では、HAN を主成分とする低毒 1 液推進剤を対象とし、パルスレーザーを用いた点火の実現可能性を評価することを目的とし、HAN 系低毒 1 液推進剤液滴の点火実験を実施した。実験では、レーザーのパルスエネルギーの測定、圧力測定、ガス分析により、点火特性の取得に取り組んだ。また、点火特性に基づき、パルスレーザーによる点火の実現可能性について検討を行った。

1. はじめに

宇宙空間においてロケットや人工衛星の姿勢や軌道の制御のため、RCS (Reaction Control System) として 1 液スラスタが使用されている。1 液スラスタでは、推進剤を触媒によって分解し、発生した高温ガスを噴射し推進力を得る。また、推進剤には、多くの実績があり信頼性が高いことから、専らヒドラジンが使用されている。しかし、ヒドラジンは高い毒性と発がん性を有するため、地上でヒドラジンを取り扱う作業においては、作業防護服の着用、空間濃度の監視、立ち入り制限など、厳重な安全管理が必要である。近年、ヒドラジンの高い毒性、および厳重な安全管理に要するコストが問題視され、世界的にヒドラジンに替わる低毒性 1 液推進剤の研究が進められている。さらに、ヨーロッパでは、欧州化学品庁が 2011 年にヒドラジンを高懸念物質リスト¹⁾に追加したことから、近い将来、ヒドラジンが使用できなくなることが懸念されている。

現在、ヨーロッパでは、ADN 系低毒 1 液推進剤の研究開発が進められており、2010 年には ADN 系 1 液推進剤を用いたスラスタを搭載した人工衛星 (PRISMA) が打ち上げられ、技術実証を果たした²⁾。アメリカでは、1980 年代より HAN 系低毒 1 液推進剤の研究開発が進められており^{3,4)}、2014 年に新しい HAN 系 1 液推進剤 AF-M315E を開発し、実用化に向けた検討を進めていることが報告されている⁵⁾。また、日本では、宇宙航空研究開発機構 (JAXA) が中心となり、日本独自の HAN 系 1 液推進剤や ADN 系 1 液推進剤の研究が進められている⁶⁻⁸⁾。これら多くの研究者によって低毒 1 液推進剤の燃焼に関する研究は進められているが、低毒 1 液推進剤を用いた 1 液スラスタは未だ開発途上である。現在、ヒドラジン 1 液スラスタに倣い、主に触媒を用いたシステムの研究開発が進められているが、化学反応を開始させるために 280 °C 以上の初期加熱が必要であることがわかっている^{2,5,6)}。ヒドラジン 1 液スラスタの場合、初期加熱は必要なく、室温においても触媒による発熱分解反応を生ずる。低毒 1 液推進剤のように初期加熱が必要であると、即時作動ができず、ヒータやバッテリーの搭載が必要であるため、ヒドラジン 1 液スラスタと比べて利便性、軽量性に欠ける。また、低毒 1 液推進剤が一般的に燃料と酸化剤の混合液であることから、燃焼反応を生じ、燃焼器内が高温 (約 2000 °C) かつ酸化雰囲気になるため、触媒は酸化しやすく、破碎されやすい。触媒の酸化や破損によってスラスタの性能は低下するため、ヒドラジン 1 液スラスタと比べて作動寿命が短くなる。このように、触媒を用いたスラスタ

には未だ課題が多く、現時点ではヒドラジンと同等以上の性能が達成されていない。上記のような触媒の課題を克服するため、日本国内では、HAN系低毒1液推進剤を対象とし、点火および燃焼制御方法について様々な取り組みが進められている。高い触媒効果と高い耐久性を有した触媒の研究開発が進められている⁹⁾とともに、触媒を使用しないスパーク放電やアーク放電を用いた点火についても検討が進められている^{10,11)}。これらの方法によってHAN系低毒性1液推進剤の点火および燃焼制御が可能であることが報告されているが、それぞれにまだ課題が残されており実用化には至っていない。

一方で、自動車用エンジンやガスタービンエンジンなどにおいて、近年、「レーザー点火」が注目されている。レーザー点火は、点火のタイミングと位置が任意に設定可能であることから、従来型のスパーク放電のような点火遅れ（電圧印加からスパークが生ずるまでの遅れ）がなく、燃焼室中心で点火したり、複数箇所点火したりすることによってエンジンの効率を向上させることが可能である。また、燃焼室内部に電極などの構造物がなく、劣化や損耗による性能低下がないため、スパークプラグより寿命が長いことも利点である。このようにレーザー点火は優れた特長を有するが、レーザー装置は一般に大型であり振動に弱い精密な機器であるため、工業製品として実用化されることはなく、実験室レベルの研究にとどまっていた。しかし、近年のマイクロチップレーザー技術の発達により小型・軽量かつ高出力のレーザーが実現可能となり、2011年には自動車用エンジンのスパークプラグと同程度のサイズの多点点火可能なレーザープラグが開発され¹²⁾、実用化に向けた取り組みが進められている。

高温酸化雰囲気における耐久性の面から、我々はレーザーによる点火に着目した。HAN系1液推進剤のレーザー点火については、いくつか検討結果が報告されている^{13,14)}。しかしながら、日本国内での報告例はなく、日本独自のHAN系低毒1液推進剤（SHP163）を対象としたものは前例がない。そこで、我々は日本国内で入手可能なHAN系1液推進剤（SHP163）を対象とし、自動車用エンジンと同様、パルスレーザーを用いた点火方法の実現可能性評価に着手した。これまでに、入射レーザーのエネルギーが20 mJ以上の場合に顕著なガス化を確認しており、パルスレーザーによって化学反応を誘起できる可能性が示されている¹⁵⁾。本研究では、これまでの成果を踏まえ、レーザーエネルギーの影響およびレーザーの複数回照射の影響について評価することを目的として点火実験を実施した。

2. 点火実験の方法および条件

2.1 低毒1液推進剤

日本国内でJAXAによって独自に開発されたHAN系低毒1液推進剤（SHP163）¹⁶⁾を対象として点火実験を実施した。HAN系低毒性1液推進剤の組成をTable1に示す。また、Table2にSHP163とヒドラジンの各種特性値を示す。

Table1 SHP163 の組成 (質量比)

HAN	硝酸アンモニウム	H ₂ O	メタノール
73.6 mass%	3.9 mass%	6.2 mass%	16.3 mass%

Table2 SHP163 とヒドラジン (N₂H₄) の各種特性値の比較

※ 計算条件：圧力 $P_c=0.7$ MPa, 推力係数 $C_F=1.875$ (NASA-CEA¹⁷⁾)

		SHP163	N ₂ H ₄
密度 ρ [g/cc] @20°C		1.4	1.0
凝固点 [K]		<243	274
比推力 I_{sp} [s] *		276	233
断熱火炎温度 [K]*		2394	871
毒性	LD50 経口 [mg/kg]	500-2000	60
	LD50 経皮 [mg/kg]	>2000	91

2.2 実験方法

スラスタにおいてインジェクタより噴射された推進剤の液滴に点火することを想定し、密閉容器中で単一液滴を対象とした点火実験を実施した。実験装置の概略を Fig.1 に示す。密閉容器内に2本の石英線（直径 $\phi 0.1$ mm）を交差させて設置し、その交点に HAN 系 1 液推進剤（SHP163）の液滴を懸垂させた。このとき、液滴のサイズは直径約 $\phi 1.5$ mm（約 1.8 μ L）とした。また、密閉容器内の雰囲気は空気、初期圧力を 101.3 kPa、初期温度を 25 °C とした。

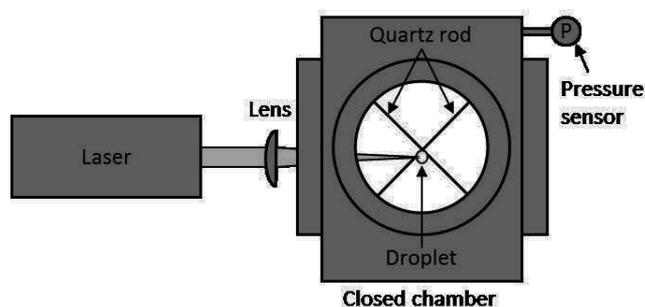


Fig.1 レーザー点火実験装置の概略図

また、点火用のパルスレーザーとして Quantel 製 EverGreen 145 (Nd:YAG) を用いた。レーザーの波長は 532 nm, パルス幅は 10 ns 以下である。実験では、Fig.1 に示すように、レーザー光を平凸レンズ（焦点距離：170 mm）で絞り、SHP163 の液滴に照射した。それと同時に、密閉容器内の圧力とレーザーエネルギーを測定した。圧力センサ（Honeywell 製

FP2000 FPG2AN1AJ2G5G6A) とレーザーパワーセンサ (OPHIR 製 PE50BF-DIF-C) を用い、データロガー (National Instruments 製 NI 9205) によって周期 1 kHz で記録した。さらに、窒素酸化物用および二酸化炭素用のガス検知管 (窒素酸化物用 : GASTEC 11L, 二酸化炭素用 : GASTEC 2LC) を用い、実験後の密閉容器内のガスの簡易的な分析を行った。

3. 点火実験の結果および考察

3.1 パルスレーザーエネルギーの影響

パルスレーザーのエネルギーを 20, 30, 40, 50, 60, 80 mJ と変更して点火実験を行い、密閉容器内圧力の時間履歴を取得した。結果を Fig.2 に示す。t=0 s のとき、パルスレーザーを SHP163 液滴に照射している。全ての条件において、レーザーを照射すると同時に急激に圧力が上昇していることがわかる。この急激な圧力上昇はレーザー誘起ブレイクダウンによるものと考えられる。その数秒後、圧力は安定し、およそ一定値を保っている。この一定な圧力は SHP163 液滴のガス化によって生じていると考えられる。パルスレーザーのエネルギーが 20 mJ から 40 mJ へ増加するにつれて最終的な圧力値は高くなっている一方で、エネルギーが 40 mJ 以上では大きな変化はないように見える。このことから、SHP163 液滴のガス化に寄与するパルスレーザーのエネルギーには上限があることが予想される。

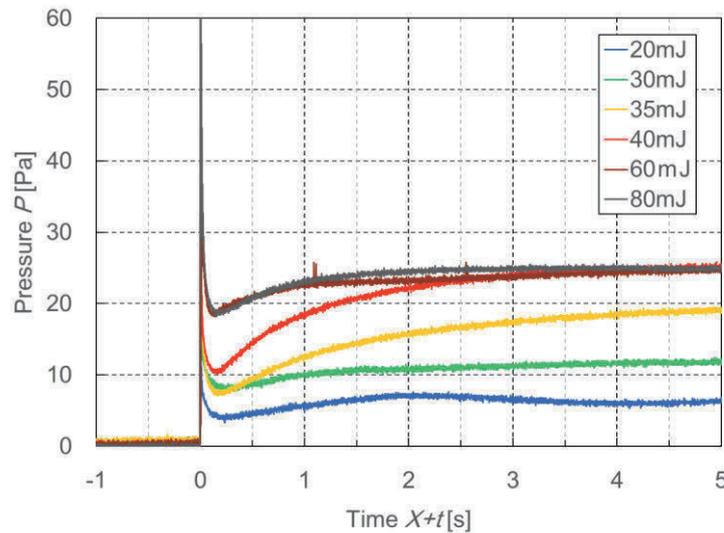


Fig.2 Time histories of chamber pressure

3.2 パルスレーザーの複数回照射の影響

パルスレーザーを連続して 2 回照射した場合の結果について示す。このとき、1 回あたりのパルスレーザーのエネルギーを 30 mJ とし、1 回目と 2 回目のパルスレーザーの時間間隔

は $20 \mu\text{s}$ とした。パルスレーザーを2回照射した場合の密閉容器圧力の時間履歴を Fig.3 に示す。比較のため、1回照射の場合 (30 mJ, 60 mJ) も同時に示す。パルスレーザーを2回照射した場合 (Fig.3 中 30 mJ (Double)) の圧力上昇は、30 mJ のパルスレーザーを2回照射した場合の合計エネルギーと同じ 60 mJ のパルスレーザーを1回照射した場合よりも高いことがわかる。このことから、パルスレーザーを2回連続して照射することはガス化を促進する効果があることが伺える。

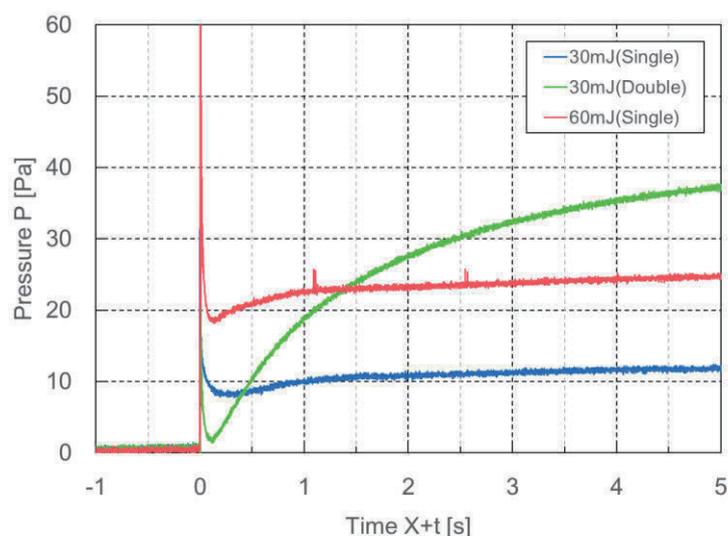


Fig.3 Pressure time histories in the cases of single and double pulse laser

SHP163 液滴の量より熱平衡状態における理論的な圧力上昇量を求めると、完全燃焼した場合には約 1.15 kPa、溶媒の蒸発のみの場合には約 248 Pa であるが、実験値は1回照射の場合に最大約 25 Pa、2回照射の場合に最大約 38 Pa であり、完全燃焼と溶媒の蒸発のどちらの場合よりも小さいことがわかる。過去に行った高速度カメラ撮影において、レーザー照射後に液のまま飛び散っている様子が観察されたことから、レーザー照射によるガス化は局所的であるということが言える。

3.3 簡易ガス分析

ガス検知管を用いて点火実験後の密閉容器内のガスを簡易的に分析した結果、二酸化炭素は検出できなかったが、窒素酸化物 (NO_x) は微量ながら検出された。パルスエネルギーが 30 mJ のときの密閉容器内ガスの NO_x 濃度を Table3 に示す。レーザーを照射することによって NO_x が生成していることから、SHP163 に含まれる HAN および AN の分解反応が生じていることが推測される。しかし、二酸化炭素が検出されなかったことから、SHP163 に含まれるメタノールの燃焼反応は生じなかった可能性がある。

Table3 NO_x concentration of product gas with laser energy of 30mJ

Single shot	Double shot
1.8 ppm	2.2 ppm

4. まとめと今後の展望

パルスレーザーによる HAN 系 1 液推進剤 SHP163 の点火の実現可能性を評価することを目的とし、点火実験を実施し、圧力測定および簡易的なガス分析を行った。その結果、パルスレーザーのエネルギーが 20 mJ~40 mJ の範囲では、エネルギーの増加とともにガス化量が増えることがわかった。一方、エネルギーが 40 mJ 以上においてはガス化量に大きな変化はみられなかった。また、パルスレーザーを 2 回連続で照射することによって、ガス化は促進されることがわかった。ただし、圧力上昇量は理論値に達しておらず、ガス化は局所的であることが推測された。さらに、簡易的なガス分析によって NO_x が検出されたことから、HAN もしくは AN の分解反応が生じていることが推測された。以上より、パルスレーザーによって化学反応を誘起し、ガス化させることは可能と言える。しかし、液滴を完全に燃焼させるには至っておらず、新たなパラメータの影響について検討し、完全燃焼する条件を明らかにする必要があると考える。

今後は、パルスレーザーを連続で 2 回照射する際の時間間隔の影響や雰囲気圧力の影響などについて評価を行い、これまでに実施している圧力測定やガス分析に加えて、発光の分光分析などを行うことによって、完全燃焼する条件について評価すると共に、着火特性や着火メカニズムを明らかにしたい。

謝辞

本研究は JSPS 科研費 15K18282 の助成を受けたものである。

参考文献

- 1) European Chemicals Agency, Candidate List of substances of very high concern for Authorisation, <https://echa.europa.eu/candidate-list-table>
- 2) K. Anflo, B. Crowe, In-Space Demonstration of an ADN-based Propulsion System, 47th Joint Propulsion Conference, AIAA 2011-5832 (2011).
- 3) S.R. Vosen, Hydroxylammonium nitrate based liquid propellant combustion interpretation of

- strand burner data and the laminar burning velocity, *Combustion and Flame*, Vol.82 (1990), pp.376–388.
- 4) Y. Chang, K. K. Kuo, Assessment of Combustion Characteristics and Mechanism of Hydroxylammonium Nitrate-Based Liquid Monopropellant, *Journal of Propulsion and Power*, Vol. 18, No. 5 (2002), pp. 1076-1085.
 - 5) R. A. Spores, R. Masse, S. Kimbrel, C. McLean, GPIM Propulsion System Development Status, 50th Joint Propulsion Conference, AIAA 2014-3482 (2014).
 - 6) T. Katsumi, T. Inoue, J. Nakatsuka, K. Hasegawa, K. Kobayashi, S. Sawai, K. Hori, HAN-based green propellant, application, and its combustion mechanism, *Combustion, Explosion and Shock Waves*, Vol. 48, No. 5 (2012), pp.536-543.
 - 7) 松尾哲也, 古川克己, 堀恵一, 澤井秀次郎, 中塚潤一, 岡範全, 前川和彦, 第 59 回宇宙科学技術連合講演会, No. 1B10, 2015 年 10 月.
 - 8) 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.
 - 9) R. Amrousse, T. Katsumi, A. Bachar, R. Brahmi, M. Bensitel, Keiichi Hori, Chemical engineering study for hydroxylammonium nitrate monopropellant decomposition over monolith and grain metal-based catalysts, *Reaction Kinetics, Mechanisms and Catalysis*, Vol. 111, Issue 1 (2014), pp.71-88.
 - 10) 飯塚俊明, 河端駿典, 進藤崇央, 青柳潤一郎, 竹ヶ原春貴, 長田泰一, 低周波プラズマによる HAN 系推進剤の反応誘起の基本特性, *プラズマ応用科学*, Vol.20, No.2 (2012), pp. 85-90.
 - 11) A. Kakami, N. Yamamoto, K. Ideta, T. Tachibana, Design and Experiments of a HAN-Based Monopropellant Thruster Using Arc-Discharge Assisted Combustion, *Trans. of the Japan Society for Aeronautical and Space Sciences, Aerospace Tech. Japan*, Vol.10 (2012), pp.13-17.
 - 12) 高橋栄一, 古谷博秀, レーザー着火研究の基礎と最新動向, *日本燃焼学会誌*, Vol.57 (2015), pp.112-119.
 - 13) F.B. Carleton, N. Klein, F.J. Weinberg, K. Krallis, Initiating reaction in liquid propellants by focused laser beams, *Combustion Science and Technology*, Vol.88 (1993), pp. 33-41.
 - 14) A.J. Alfano, J.D. Mills, G.L. Vaghjiani, Resonant laser ignition study of HAN-HEHN propellant mixture, *Combustion Science and Technology*, Vol.181 (2009), pp.902-913.
 - 15) 勝身俊之, Hydroxylammonium nitrate 系一液推進剤のレーザー点火に関する研究, 宇宙航空研究開発機構研究開発報告, JAXA-RR-15-004 (2016), pp.9-14.
 - 16) S. Togo, H. Shibamoto, H. Hori, Improvement of HAN based liquid monopropellant combustion characteristics, *Proc. International workshop HEMs 2004* (2004).
 - 17) S. Gordon, B. J. McBride, Computer Program for Calculation of Complex Chemical Equilibrium Compositions and Applications, NASA Reference Publication 1311 (1996).