

[II. 3. 6]

固体推進剤の基本的性能の計算と、物性 および燃焼安定性の測定法について

岩間彬・青柳鐘一郎
祖父江照雄・山崎毅六

On the Procedure of the Performance Calculation and Measurement
of Physical, Mechanical and Ballistic Properties, and
Combustion Stability of Solid Propellants

By

Akira IWAMA, Shoichiro AOYAGI, Teruo SOFUE and Kiroku YAMAZAKI

Abstract: A important problem in the present-day rocket motor research is the rapid evaluation of new propellant properties and correlation of laboratory-scale measurement results with the combustion instability and undesirable phenomena that occur in the combustion chamber. This report outlines the method of performance calculation programming and experimental procedure for measuring physico-chemical properties of the solid propellants, which are being conducted in Propellant Research Division at ISAS. In them, there are some new techniques that have been successfully applied to the composite propellants; rapidly convergent approximation process appropriate to an electronic computer programming for the determination of both composition and temperature of combustion products, apparatus for linear burning rate measurement of solid propellants, simple method of measuring specific impulse and transparent burner for combustion-instability evaluation by means of initiating a pressure disturbance. As an illustrated application, the data of an extremely slow burning polyurethane~ammonium perchlorate-based propellant for SSR motors are presented.

概要

ロケットモータの研究においては、実験室で合成・発見された推進剤をすみやかに実用化するために、推進剤の弾道性能、物理的・機械的性質、および燃焼安定性について広範なデータが要求される。この報告は、東大宇宙航空研推進剤工学担当部門でとりあげている、固体推進剤の理論性能の計算法、物性の測定法および燃焼安定性の評価法を述べている。その中には、燃焼温度と燃焼生成物の計算プログラミングの方法、線燃焼速度測定装置、比推力の迅速測定法、燃焼安定性観察用の透明ミゼットモータなど、新しく開発され、改良されたものが含まれている。これらの計算および計測例として、SSRに用いられた、低燃速ポリウレタン系推進剤のデータが報告されている。

1. 緒 言

実験室で新しく合成され、あるいは発見されたロケット推進剤は、それを用いて実機モータの開発にとりかかる前に、理論性能の計算と基礎的物性の測定がなされなければならない。固体推進剤について定例的に行なわれている計算と試験事項をあげてみると、断熱火炎温度、比推力の計算、グレインの物理的・機械的性質の測定、ミゼットモータその他の燃焼器による弾道性能の計測および燃焼安定性の評定の四つに大別されよう。いずれもモータの設計と推進剤の採否を決定する資料として十分役立つデータを提供するためには、相当な量にのぼる計算と実験が必要である。

最近、巨大な固体ロケットモータの開発が相次いで計画され、これに伴い推進剤の製造設備はますます大型化し、地上燃焼実験の規模も非常に大きくなっている。米国では最近、直径 156 in, 推力 3,250,000 lbs に及ぶモータの燃焼試験が行なわれたことが伝えられている [1]。このような巨大ロケットモータになると、組立て後に故障か所を発見することは困難で、モータの非破壊検査技術の現状からみて、推進剤グレインに欠陥がある場合には、その発見はことにむづかしい。

もし、地上燃焼の際に爆発事故を起こすようなことになれば、莫大な資金と労力が無駄となるばかりでなく、人命にかかる事態ともなりかねない。それゆえ、地上燃焼実験を行なって重大な故障に直面してから、対策を樹てて、また地上燃焼実験を繰り返すといった試行錯誤的な開発研究の進め方は、極力避けたいのである。地上燃焼実験の回数を最少限度にとどめるためには、推進剤の実験室における成果を受けついで、実用モータの開発実験へひき渡すまでに行なう、推進剤グレインの性能、物性の計算と測定を通じて、推進剤に対し、いろいろの角度から検討を加え、情報を多く集めることが、モータ開発を能率よく運ぶ近道となるであろう。また、この過程は実験室で育った推進剤をスムースに開発研究へバトンを渡す役割を果たすとともに、推進剤のもつ問題点を明らかにし、それを基礎研究の分野へ伝え、その進歩を促す原動力ともなるであろう。この意味で、かなりの手間と経費を必要とする、既成の性能計算と物性測定方法に改善を加えて、能率の向上をはかるとともに、推進剤物性の在り方を考え、新しい測定分野を開拓して一層有意義なデータを生み出すことは、推進剤に対し十分な信頼性を持ってモータの開発に着手するためには是非必要なことである。

本稿は、SSR 計画で用いられたポリウレタン～過塩素酸アンモニウム系混成推進剤を主な適用例として、著者らが現在行なっている推進剤性能、物性の計算と測定法について略述したものである。

2. 混成系固体推進剤の理論性能の計算法

推進剤性能を評価する基礎は、主として理論比推力におかれる。往時は、この計算にはかなりの時間と労力を要し、相当熟練している人でも、混成固体推進剤の 1 組成の性能計算に 20～25 時間かかるのが普通であった。今では、電子計算機の利用がすすみ、比較にならないほど速く結果が入手できるようになり、一度計算プログラムを作つておけば、組成、燃焼条

件などが変わってもデータと定数を差し換えるだけで、改めて計算をやり直す必要はなくなった。したがって、計算プログラミングの巧拙が、計算時間の長短に響くことになる。

性能計算の律速段階は燃焼生成物の平衡組成の計算である。これについて電子計算機に適した幾つかの計算方法が提案されている[2]～[4]。ここでは著者らが開発した最小値法[5]による計算プロセスについて述べる。適用範囲は、有機ポリマ、過塩素酸アンモニウム、アルミニウム粉末および燃焼による解離や反応を無視できる無機添加物からなる混成固体推進剤のみであるが、この計算法を他の成分を含む推進剤へ拡張して用いることは容易である。

(1) 仮 定

計算にあたって次の仮定をおく。

- a) 生成ガスは理想気体とする。
- b) 化学反応は平衡状態に達している。
- c) 熱損失は無視する。
- d) アルミニウム粉は完全燃焼をする。ただし、すべて化学量論の酸化アルミニウムとなり、その解離は考慮しない。
- e) 燃焼ガスはノズル通過のとき断熱膨張をする。
- f) ノズルにおける固体生成物を含むガス流—2層流の影響を無視する。

上記の仮定に従えば、e)を除き、断熱燃焼温度、比推力はともに実際より高い方向へ逸脱する。最近東京大学計算センタで稼動を開始したHARP 5020のように記憶容量が大きい計算機を使用すれば、現実に近い条件におき換えて計算ができるであろう。たとえば、実際には Al_2O_3 は一部 AlO および AlO_2 へ解離するといわれ[6]、燃焼生成物の中には AlCl_3 も見出されている[7]。また、アルミニウム粒子の径が大きくなるとともに、推力へ寄与せずに未反応のままノズルからそとへ排出する割合がふえる。更にまた、 Al_2O_3 はノズル膨張過程で液体から固体へ転移し[8]、[9]、ガスの流れの様相を変えるなど、ここでは無視した重要な問題がある。このような金属粒子の燃焼性と2層流が性能におよぼす影響については後日報告されるであろう。

(2) 計 算 式

質量保存式：

$$(\text{H}_0) = 2(\text{H}_2) + 2(\text{H}_2\text{O}) + (\text{HCl}) + (\text{OH}) + (\text{H}) \quad (1)$$

$$(\text{C}_0) = (\text{CO}_2) + (\text{CO}) + (\text{C})_s^* \quad (2)$$

$$(\text{O}_0) = (\text{H}_2\text{O}) + 2(\text{CO}_2) + (\text{CO}) + 2(\text{O}_2) + (\text{NO}) + 3(\text{Al}_2\text{O}_3)_l^{**} + (\text{OH}) + (\text{O}) \quad (3)$$

$$(\text{Cl}_0) = (\text{HCl}) + 2(\text{Cl}_2) + (\text{Cl}) \quad (4)$$

$$(\text{N}_0) = 2(\text{N}_2) + (\text{NO}) + (\text{N}) \quad (5)$$

$$(\text{Al}_0) = 2(\text{Al}_2\text{O}_3)_l \quad (6)$$

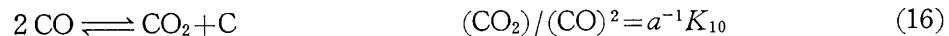
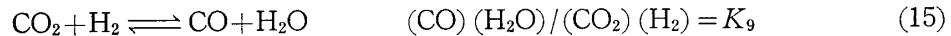
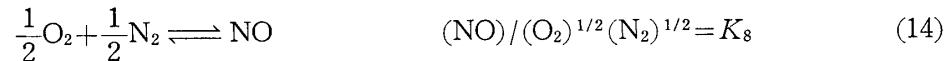
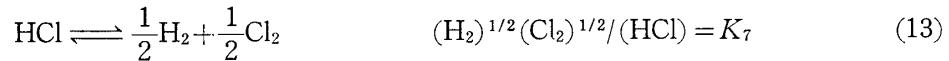
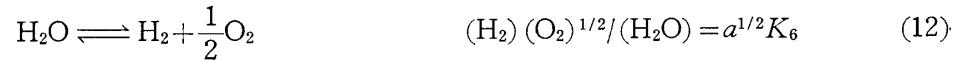
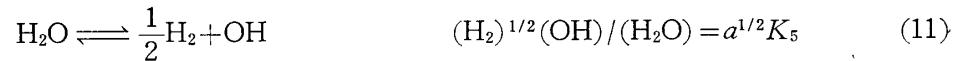
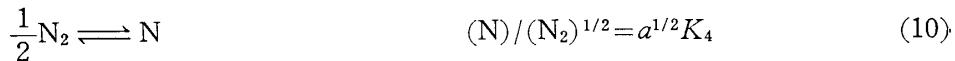
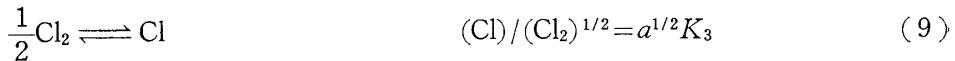
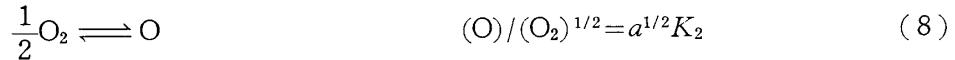
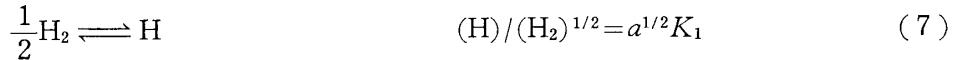
酸化アルミニウムは融点 2,303°K で、これ以上に燃焼温度が高い場合には液態とし、ガス状酸化アルミニウムの存在を、この計算では考慮しないこととする。もし、燃焼温度が

* 固体炭素

** 液状酸化アルミニウム

2, 303°K 以下になるときは、液状アルミニウムが、固態の酸化アルミニウム膜で包まれている状態であると推測されるので、均質反応系として取扱うことは無理である。

化学平衡式：



カッコは推進剤 100g 当たりの燃焼生成物のモル数、または原子数、そして(1)～(5)式の左辺は 100g の推進剤を構成する元素の原子数を表わす。(2)～(16) 式を用いて、 $x = (\text{H}_2) / (\text{H}_2\text{O})$ 、ガス比容 (α , l/kg) および濃度平衡定数 ($K = K(T_c)$) の関数で燃焼生成物のモル数、原子数を書くと次の(17)～(31)式のようになる。

$$(\text{O}_2) = \alpha K_6^2 / x^2 \quad (17)$$

$$(\text{O}) = \alpha^{1/2} K_2 (\text{O}_2)^{1/2} \quad (18)$$

$$(\text{NO}) = \frac{K_8 (\text{O}_2)^{1/2}}{4} \{ [(\alpha^{1/2} K_4 + K_8 (\text{O}_2)^{1/2})^2 + 8(\text{N}_0) - [\alpha^{1/2} K_4 + K_8 (\text{O}_2)^{1/2}]] \} \quad (19)$$

$$(\text{N}_2) = \frac{\alpha K_4^2 + 4[(\text{N}_0) - (\text{NO})] - K_4 \{8\alpha[(\text{N}_0) - (\text{NO})]\}^{1/2}}{8} \quad (20)$$

$$(\text{N}) = \alpha^{1/2} K_4 (\text{N}_2)^{1/2} \quad (21)$$

$$(\text{CO}) = B \left[1 - \frac{1}{(\text{C}_0)} \left(\frac{K_{10}}{\alpha} \right) B^2 + \frac{2}{(\text{C}_0)^2} \left(\frac{K_{10}}{\alpha} \right)^2 B^4 - \dots \right], \text{ただし } B = \frac{K_9 x (\text{C}_0)}{1 + K_9 x} \quad (22)$$

$$(\text{CO}_2) = (\text{CO}) / K_9 x \quad (23)$$

$$(\text{C})_s = \frac{K_{10}}{\alpha} (\text{CO})^2 \quad (24)$$

$$(\text{H}_2\text{O}) = (\text{O}_0) - 2(\text{CO}_2) - (\text{CO}) - 2(\text{O}_2) - (\text{NO}) - \frac{3}{2}(\text{Al}_0) - (\text{O}) + \alpha K_5 / 2x$$

$$-\alpha K_5/x [O_0 - 2(CO_2) - CO - 2(O_2) - (NO) - \frac{3}{2}(Al_0) - (O) \\ + \alpha K_5/4x]^{1/2} \quad (25)$$

$$(H_2) = x(H_2O) \quad (26)$$

$$(OH) = \alpha^{1/2} K_5 x^{-1/2} (H_2O)^{1/2} \quad (27)$$

$$(H) = \alpha^{1/2} K_1 x^{1/2} (H_2O)^{1/2} \quad (28)$$

$$(HCl) = \frac{1}{4K_8^2} \{ (H_2)^{1/2} [\alpha K_3^2 K_8^2 + 2\alpha^{1/2} K_3 K_8 (H_2)^{1/2} + (H_2) + 8K_8^2 (Cl_0)]^{1/2} \\ - [\alpha^{1/2} K_3 K_8 (H_2)^{1/2} + (H_2)] \} \quad (29)$$

$$(Cl) = \alpha^{1/2} K_3 K_8 (HCl) / (H_2)^{1/2} \quad (30)$$

$$(Cl_2) = (Cl)^2 / \alpha K_3 \quad (31)$$

上記の燃焼生成物のモル数または原子数は、質量保存則により(1)式を満足しなければならない。すなわち、

$$f_1(\alpha, x, T_c) = (H_0) - 2(H_2) - 2(H_2O) - (HCl) - (OH) - (H) = 0 \quad (32)$$

生成ガスは理想気体式に従うと仮定しているから、

$$f_2(\alpha, x, T_c) = \alpha - \left(\frac{T_c}{273.16} \right) (22.414) (1/p_c) \sum m = 0 \quad (33)$$

ただし、固体炭素と液体酸化アルミニウムの容積は無視する。ここに、

$$\sum m = (H_2O) + (HCl) + (H_2) + (CO_2) + (CO) + (NO) + (N_2) \\ + (O_2) + (Cl_2) + (OH) + (H) + (N) + (O) + (Cl) \quad (34)$$

となる。

エネルギー保存則により、

$$f_3(\alpha, x, T_c) = \sum m (H^\circ_{Tc} - H^\circ_{298.16}) + \sum_{X, F, A} n (-\Delta H_f^\circ) - \sum m (-\Delta H_f^\circ) \quad (35)$$

ここで $H^\circ_{Tc} = T^\circ K$ における熱含量、 ΔH_f° = 生成熱、 n = 推進剤 100g 当たりの構成成分のモル数、脚符 X, F および A はそれぞれ酸化成分、燃料成分および添加成分を表わす。

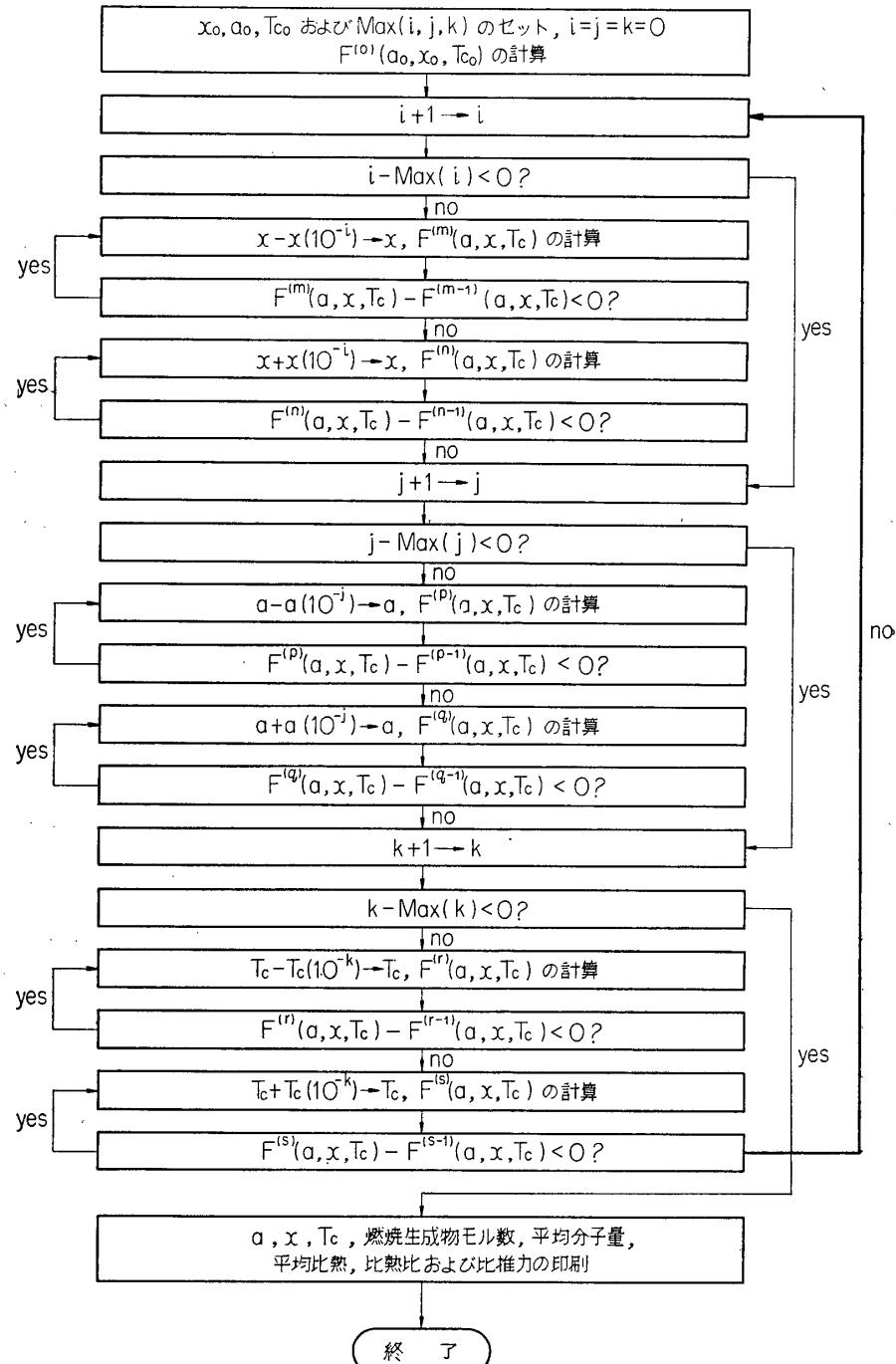
(3) 計算方法

燃焼生成物の平衡組成の計算は(32), (33)および(35)式を連立させて、 α, x および T_c の 3 变数を求めることにほかならない。しかし、これらの高次方程式を、代数解法にしたがってまともに解こうとしても、まず不可能であろう。

著者らは電子計算機がそなえている論理演算を利用して、(36)式に示されるように、(32), (33)および(35)式の 3 個の式の絶対値の和が最小となる α, x および T_c を電子計算機に探させる方法をとった。

$$F(\alpha, x, T_c) = |f_1| + |f_2| + |f_3| \leq \varepsilon \quad (36)$$

計算プログラムの原則は、第 1 図の計算流れ図に示されている。三つの未知数は細線で示す小ループで、計算が繰り返されるにしたがい順次修正されていく。たとえば、 x は F が小さくなる方向へ $x + (10^{-i})x \rightarrow x$ または $x - (10^{-i})x \rightarrow x$ と動く。この補正指数 i に対して最初は小さい値を与え、太線で示した大ループを通って元へもどったとき、 $i+1 \rightarrow i$ と順次増加させていく。もちろん、要求精度に応じてその最大値をあらかじめ指定してお



第1図 計算の流れ図

く。このようにして、初期推定値から近似解へ至る計算過程は、ほぼ最短距離をたどることになるので、計算に要する時間は比較的短かくてすむ。

次に、平均定圧比熱 (C_p) と比熱比 (κ) は (37) および (38) 式によって求め、比推力 (I_{sp}) を (39) 式によって算出する。

$$\bar{C}_p = \frac{\sum(m C_p)}{\sum m} \quad (37)$$

$$\kappa = \frac{1}{1 - R/\bar{C}_p} \quad (38)$$

$$I_{sp} = \frac{1}{g} \sqrt{\frac{2\kappa gRT_c}{(\kappa-1)\bar{M}}} \left\{ 1 - \left(\frac{p_j/p_c}{\kappa} \right)^{\frac{\kappa-1}{\kappa}} \right\} \quad (39)$$

ここに、 g : 重力加速度、 \bar{M} : 燃焼ガスの平均分子量、 R : 万有ガス定数、 p_c : 燃焼室圧力、 p_j : ノズル出口静圧、および T_c : 絶対燃焼温度である。

(4) 計算例

SSR 計画に用いたポリウレタン～過塩素酸アンモニウム系推進剤の特性値を第1表に示す。これらの計算には電子計算機 OKITAK 5090 A (東京大学計算センタ) を使用した。

第1表 SSR 推進剤グレインの比推力

組成	燃焼温度 (°K)	平均分子量 (g/mole)	比熱比	比推力 (sec)
Y-1	3010	24.47	1.234	254
Y-2	2980	23.45	1.234	253
Y-3	2955	23.49	1.234	252
Y-7	3340	24.86	1.219	263
Y-8	3100	23.94	1.230	256
Y-9	2945	23.54	1.235	251

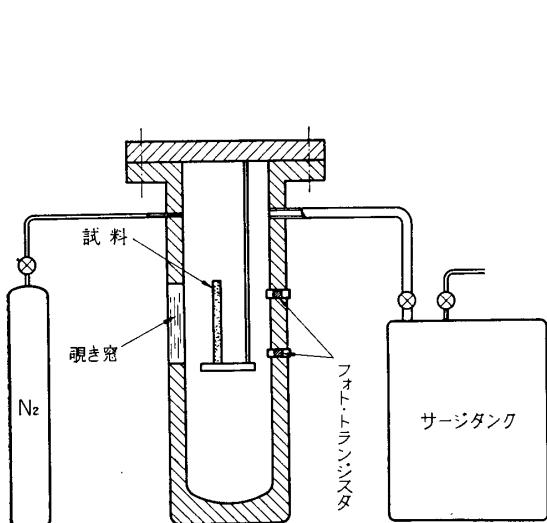
3. 線燃焼速度と弾道性能の測定

3.1. 線燃焼速度の測定

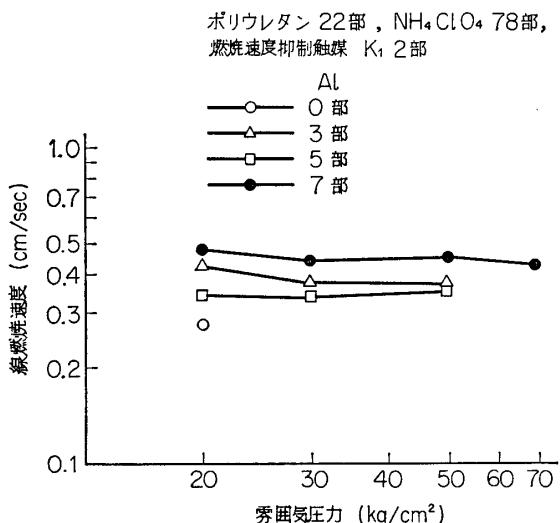
ふつう、線燃焼速度は古典的な Crawford 法[10]で測定される。整圧器付の耐圧ボンベのなかに、棒状試料を垂直に立て、あらかじめ相互の間隔を測って、試料の長さ方向に 2, 3 か所、軸と直角方向にヒューズを巻きつけるかあるいはそう入して、両端を電気回路に接続する。試料の頂点に着火し、上方から燃焼面が押し寄せヒューズが次々と溶断する。この信号を記録器へ送って、線燃焼速度が算出される。この装置は、その後多くの研究者によって改良され[11]、現在では耐圧ガラス材料の進歩のおかげで透明燃焼器がつくられ、燃焼面の刻々の位置と、燃焼状況の観察ができるようになった。

著者らは、第2図に示すように、火炎面の検出に光トランジスタを用い、推進剤グレインとヒューズとの接触が原因となって測定誤差が生ずる Crawford 法の欠点を除き、測定作業の能率を上げることに貢献した[12]。

第3図は、この装置で計測した、ポリウレタン～過塩素酸アンモニウム系推進剤の線燃焼



第2図 直視型燃焼速度測定装置の概略図



第3図 ボンベ法による線燃焼速度の測定例

速度の測定例を示す。この結果からもわかるように、燃焼ガスの吹き出し方向が燃焼面と直角方向となるストランド・ボンベ法によったのでは、低燃焼速度の推進剤は高圧になると立ち消えの傾向が強まり、満足なデータが得られない。著者らの経験によれば、直径 28 mm とかなり太い試料を使用してもこの傾向は改善されない。燃焼速度抑制触媒を含まないポリウレタン推進剤もその例外ではないが、アルミニウムの添加量を増すとともに、立ち消えの傾向が薄らぐ。

このような場合には、ボンベ法による線燃焼速度の測定は放棄し、ミゼットモータ燃焼試験によって得られる燃焼圧力-時間曲線を利用して間接的に線燃焼速度を知る方法がとられる[13]。

第4図 代表的な燃焼圧力-時間曲線
第4図 代表的な燃焼圧力-時間曲線

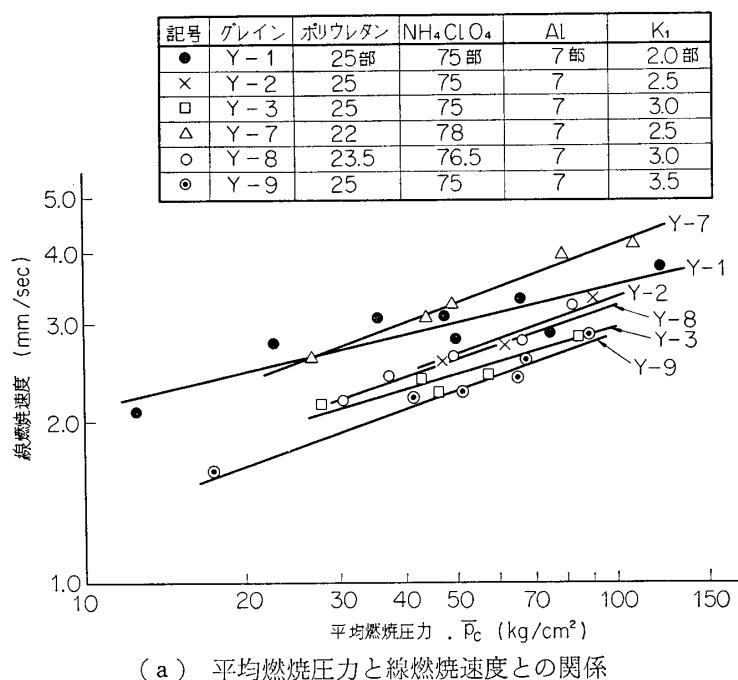
内径 10 mm、外径 54 mm、長さ 160 mm、重量約 600 g のグレインをつくり、両端面に燃焼制限剤を被覆して、両面燃焼式の燃焼試験を行なう。第4図に示すように、燃焼圧力が最高圧力の 10% をとる時間の間隔を作動時間 (t_a) と定め、次式より平均線燃焼速度 (\bar{r}_B) を算出する。

$$\bar{r}_B = d/2t_a \quad (40)$$

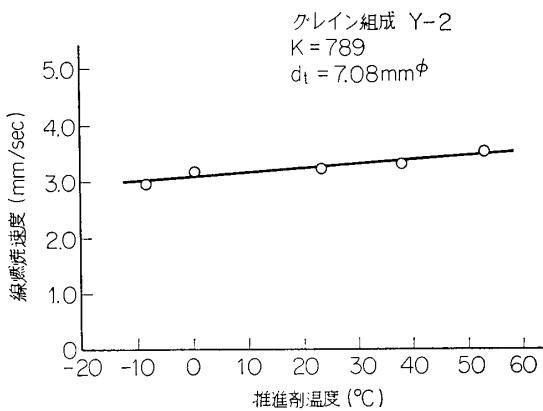
ここに d はウエップの厚さである。

このミゼットモータ法で得た SSR グレインの線燃焼速度と平均燃焼圧力との関係は第5図(a)に示される。線燃焼速度と平均燃焼圧力との間に $\bar{r}_B \propto \bar{p}_c^n$ の関係が成立つとすれば、第5図より圧力指数は 0.22~0.37 と求められる。低燃速推進剤の一般的特長は、線燃焼速度の圧力依存性が小さいことである。これは推進剤として好ましい性質ではあるが、必ずしも燃焼安定性が高いことを意味しない。むしろ、後述するように燃焼速度を抑えた推進剤グレインは音響振動燃焼を発生しがちである。

ミゼットモータ法による SSR 推進剤グレインの線燃焼速度の温度依存性を第5図(b)



(a) 平均燃焼圧力と線燃焼速度との関係



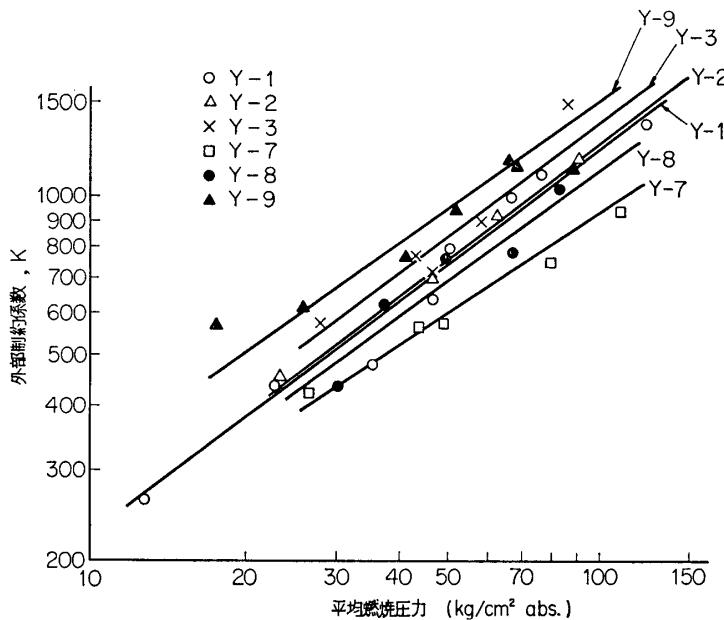
(b) ポリウレタン系推進剤の線燃焼速度の温度依存性の測定例

第5図

に示す。この程度の温度感度ならば、気温によって飛しょう性能にそう大きな差異が生ずることはないであろう。SSR 1/1 モータでは 45°C にグレイン温度を上げて地上燃焼試験に成功している。

3.2. 外部制約係数 (K) 試験

ミゼットモータ燃焼試験で最も重要なのは、外部制約係数（燃焼面積とスロート面積の比）と燃焼圧力との関係を求める実験である。その理由は、このデータが、スロートの径の決定など実機モータの最も重要な所の設計に活用されるからである。推力測定とは異なり、燃焼圧力を正確に測定することは、ミゼットモータでも大きな誤差が入りこむおそれがある、そう困難ではない。第6図は、3.1. に記した両面燃焼型グレインによって、 K を変



第6図 平均燃焼圧力と外部制約係数の関係

え、燃焼圧力の測定を多数行ない、両者の関係を示したものである。

平均燃焼圧力と外部制約係数の間には、燃焼面積が時間によって変わらない条件が保たれるとき次の関係が成立つ。

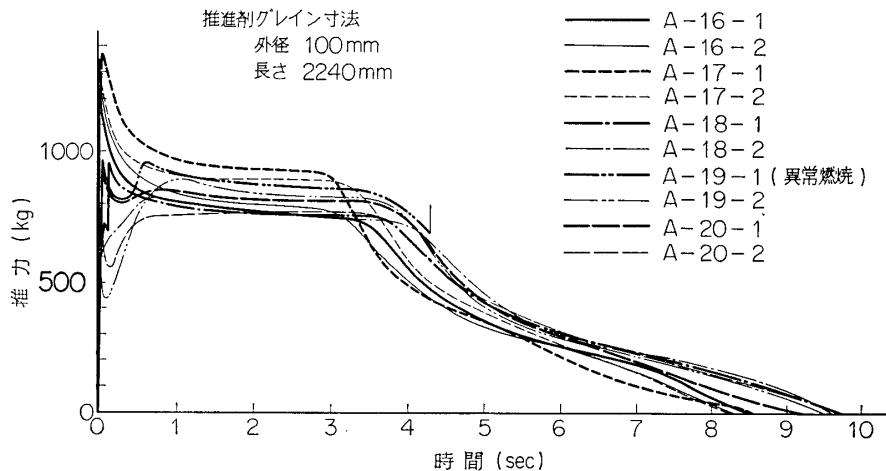
$$K \propto \bar{p}_c^{(1-n)} \quad (41)$$

第6図より n を求めると 0.23~0.32 で、第5図から得られた線燃焼速度の圧力指数とよく一致している。

3.3. 比推力の測定

3.3.1. ミゼットモータ法

ロケットモータの比推力は、モータ前部に推力計をつけ、発生推力の摩擦損失を最小限度



第7図 推力-時間曲線 (SSR 1/1 モータ)

に抑えるようモータ支持の方法に工夫をこらし、第7図に示すような推力-時間曲線を記録して、これを図式積分すれば、次式によって求められる。

$$I_{sp} = \frac{\int_0^{t_a} I dt}{W} = \frac{\bar{I} t_a}{W} \quad (42)$$

ここに、 I : 推力、 t_a : 有効作動時間、および W : 推進剤グレイン重量である。

実機モータの性能を論ずるときには、この方法によって得られたデータが活用されることは当然である。しかし、ミゼットモータでは、熱損失と2層流の推力に対する影響が強く現われ、ノズル形状の不適正、推力ベクトルの misalignment などがあると推力損失の割合が高い。したがって、推進剤グレインの比推力を正確に求めることはかなり困難で、たいてい大きいロケットモータで得られる比推力より低い値となり、燃焼性能を正当に評価できる信頼性の高い数値として用いがたい。著者らは、第2章の理論性能の計算法の項で得られた比熱比を使って、次のように比推力を求めている[13]。

適正膨張を仮定すれば、推力係数 (C^o_F) は次式で与えられる。

$$C^o_F = \Gamma \sqrt{\frac{2\kappa}{\kappa-1}} \left[1 - \left(\frac{p_j}{\bar{p}_c} \right)^{\frac{\kappa-1}{\kappa}} \right] \quad (43)$$

ただし、
 $\Gamma = \sqrt{\kappa} \left(\frac{2}{\kappa+1} \right)^{\frac{\kappa+1}{2(\kappa-1)}}$

平均推力 (\bar{I}) とノズルスロート断面積 (A_t) との間には、

$$\bar{I} = C^o_F A_t \bar{p}_c \quad (44)$$

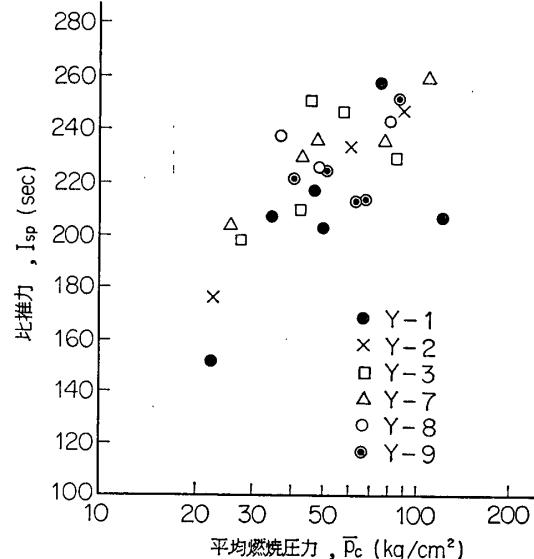
(42)～(44) 式によって求めた SSR 推進剤グレインの比推力は第8図に示されている。

3.3.2. 密閉爆発ポンベ法

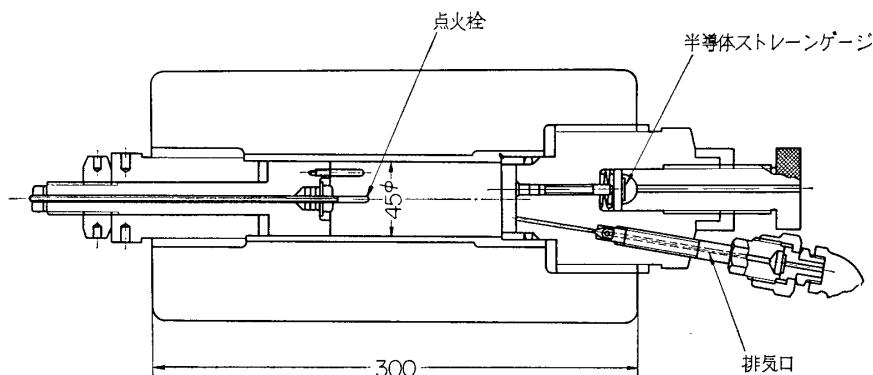
密閉爆発ポンベ (Büffer bomb) は従来火薬類の猛度の測定によく用いられてきたものである。Griffin[14] は液体一元推進剤の性能測定にもこれを用いることを試み、この研究がきっかけとなって爆発ポンベはロケット推進剤の分野にも進出してきた。著者らはさらに Griffin の測定法に改良を加え、爆発圧力の測定値から比推力を導く過程にも新しい提案をした[15]、[16]。

モータ法では、正確な比推力を測定するためには、少なくとも 2~3kg の試料量が必要であるが、この方法によれば試料が 200g 程

度あれば十分である。第9図は、爆発ポンペの略図を示している。精粹した粒状試料を約 180cc の密閉容器の中で爆発させ、爆発圧力を半導体ひずみゲージ圧力トランスデューサに伝えて、電磁オシロで記録した。この最高圧力 (p_{max}) と動推力 (F_0) との関係は次式で与



第8図 平均燃焼圧力と比推力との関係

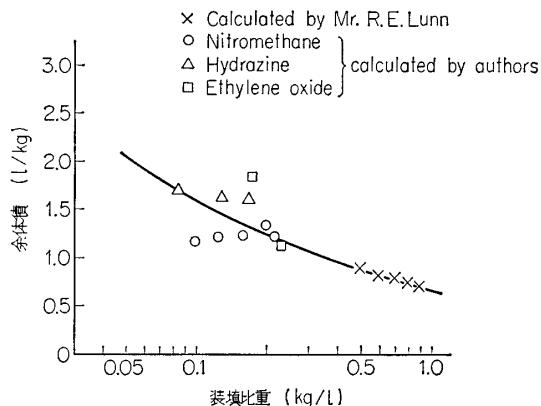


第9図 密閉爆発ボンベの断面図

えられる、

$$\rho_{\max}/\Delta = (RT_e/\bar{M})_{p=0} + \alpha p_{\max} = F_0 + \alpha p_{\max} \quad (45)$$

ただし、 T_e : 爆発温度、 α : Abel-Noble 状態方程式の余体積、および Δ : 装填比重 である。ここで余体積は、第 10 図に示されているように、推進剤の種類によってあまり変わらな



第10図 装填比重と余体積の関係

いが、装填比重（推進剤重量と爆発室容量の比）に強く依存するので、余体積は装填比重のみの関数とみなすことができる。爆発温度と燃焼温度との間に次式が成立つと仮定すると、

$$T_e = \kappa T_c \quad (46)$$

比推力は次式で表わされる。

$$I_{sp} = \frac{1}{g} \sqrt{\frac{2gF_0}{\kappa-1} \left\{ 1 - \left(\frac{p_j}{p_c} \right)^{\frac{\kappa-1}{\kappa}} \right\}} \quad (47)$$

すなわち、(46) と (47) 式より最大圧力のみを計測すれば比推力は容易に求められることになる。第 2 表には、本方法で求めた混成系固体推進剤の測定例をあげ、理論比推力と比較した。

4. 物理的・機械的性質の測定

4.1. 比重の測定

一辺約10mmの立方体試料を採取し、天びんでその重量を精秤する。次に、試料を鉛油の中に沈め、再び重量を精秤し、それぞれ W_1 , W_2 とする。鉛油は、グレインを構成する成分が膨潤したり溶解する性質を持つものであってはならない。鉛油の密度を d_0 とすれば、グレインの密度は次式で与えられる。

$$\rho = \frac{W_1 d_0}{W_1 - W_2} \quad (48)$$

なお、SSR推進剤グレインの比重は第3表に示されている。

第2表 密閉ボンベ法による比推力の測定例

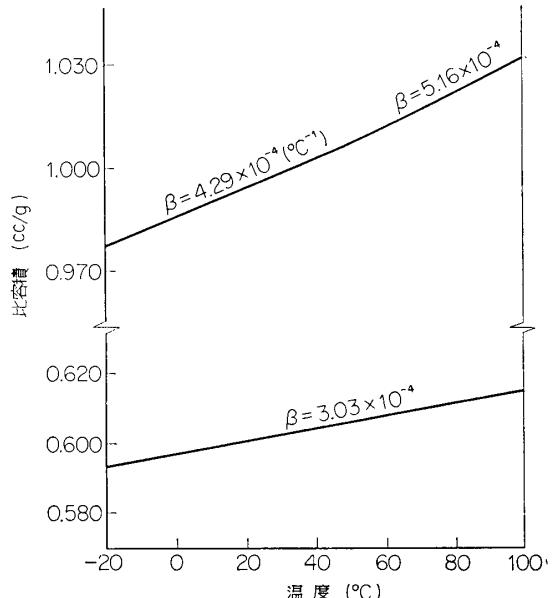
推進剤組成			比推力(sec)	
燃料結合成分(部)	酸化成分(部)	添加成分(部)	理論値	実験値
ポリウレタン 25	NH ₄ ClO ₄ 75	Al 7, K ₁ 2.5	253	221
	23.5	76.5 Al 7, K ₁ 3.0	256	225
ポリブタジエン 20	80	—	234	232
	22	78	226	225
ポリサルファイド 30	70	—	221	204
	35	65	217	215
	40	60	203	197

4.2. 体膨張係数の測定

推進剤グレインは、季節、昼夜の気温差によって多少とも温度サイクルを受ける。たとえモータは定温室に貯蔵されるにしても、その成型作業中の硬化過程でグレインを加温しなければならないから、硬化終了後常温にもどすときに熱応力を受けることになる。とくに、直壇注型方式によってグレインが製造されるモータでは体膨張係数が大きいと強い熱応力を受け、グレインとレストリクタの間にすき間ができたり、グレイン内部にき裂やマトリックスの破壊などが起こる。

ポリウレタン燃料結合成分は、ポリサルファイドなどと比較して膨張係数が小さく、そのうえ、硬化温度も50°Cと低い特長に恵まれ、硬化重合反応が終了して常温にもどした

ときの体収縮は、グレインの高い伸び率で補われて、ほとんど問題としなくてもよい。これ



第11図 推進剤温度と比容積との関係
(β は体膨張係数)

は SSR モータ推進剤グレインの製造を、直塗注型方式に踏み切った理由の一つである。

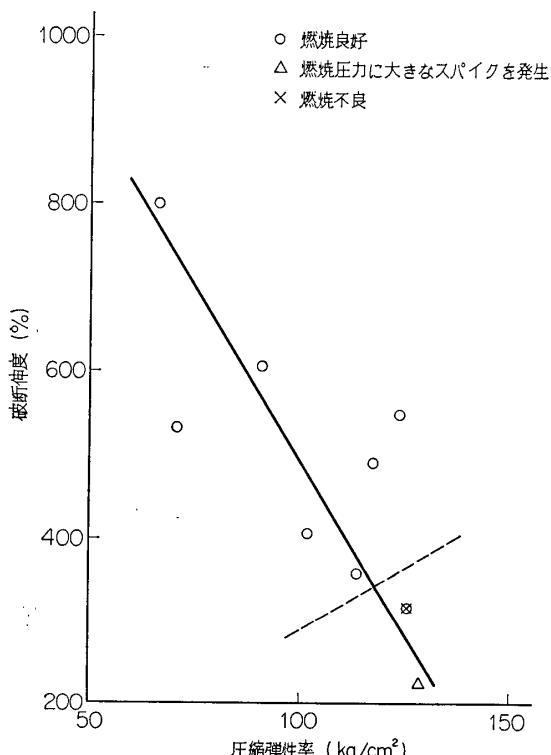
グレインの体膨張係数の測定には、次の方法を用いた。5×10×3 mm の直方体試料を、水銀を封液としてディラトメータに仕込み、昇温速度 $1^{\circ}\text{C}/\text{min}$ で温度を上げていき、比容積の変化を測定する。SSR グレインおよびポリウレタン燃料結合成分の測定例では、第 11 図に示すように、比容積と温度との関係が直線となる。これは $-20\sim+100^{\circ}\text{C}$ の温度範囲で、ポリウレタンと過塩素酸アンモニウムが、ともに転移点がないことを意味する。このこう配から体膨張係数を求めると、SSR グレインについては 3.03×10^{-4} 、ポリウレタン燃料結合成分については $4.29\sim 5.19\times 10^{-4}\text{C}^{-1}$ となった。

4.3. 硬度の測定

ショア硬度計を、新鮮なグレイン面にあて、5~10 か所の硬度を測定、その最大値と最小

第3表 推進剤グレインの物理的・機械的性質の計測例（試料：SSR Y-2 推進剤）

SSR モータ記号	引張り強度 (kg/cm ²)	破断伸度 (%)	圧縮弾性率 (kg/cm ²)	硬 度	比 重
γ-1 (HT-1 号機)	4.8	418	154	70~75	1.65
γ-2	4.4	446	118	65~70	1.66
γ-3	4.0	541	125	67~70	1.65
γ-4 (HT-2,3 号機)	2.6	618	61.5	60~65	1.64

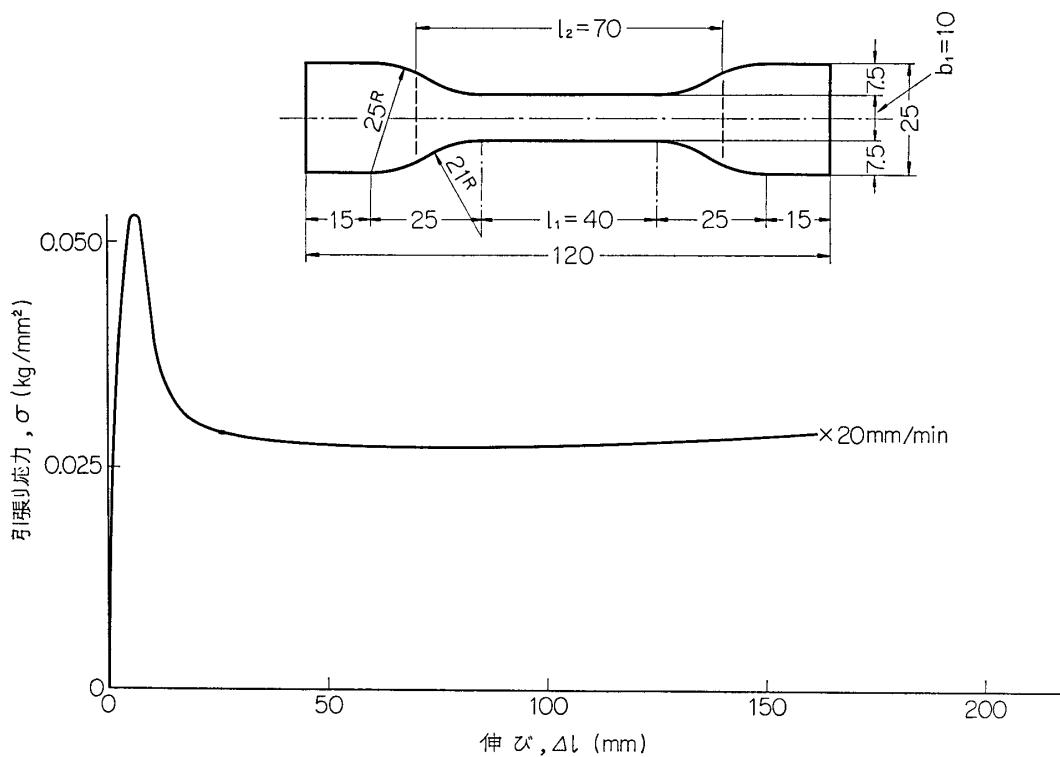


第 12 図 グレインの機械的性質と燃焼安定性との相関

値を記録する。硬度は、グレインの機械的性質、硬化重合反応の進行状態、ポリウレタン燃料結合成分の架橋密度と NCO/OH などと密接な関係をもつので、簡単な計測とはいえ、グレインの性質を示すうえに重要である。第 3 表に SSR グレインの硬度の測定例が示されている。

4.4. 機械的性質の測定

固体ロケットモータにおいては、グレインの機械的性質が不安定燃焼、とくに音響的振動燃焼と密接な関連があるといわれ、グレインの機械的性質の測定は基礎研究の分野で重要な地位を占めるとともに、製品検査の有力な手段の一つに数えられている。しかし今のところ、グレインとして望ましい機械的性質は何かと問われても、グレインが着火および燃焼中に受ける応力は多軸応力で非常に複雑であるため、理論的かつ定量的な解答はまだない。



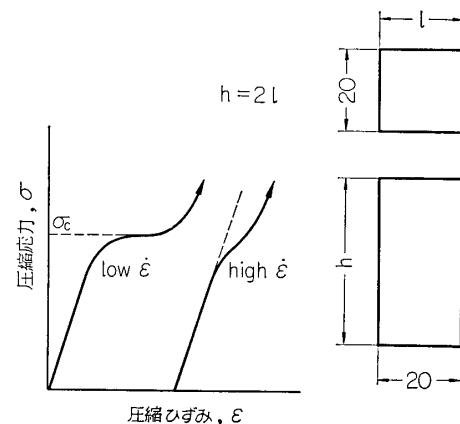
第13図 代表的な引張り応力-伸び曲線

現状では、個々の推進剤グレイン、モータによって数多くの燃焼実験から帰納された経験的基準に照らして、機械的性質を規制するというやり方が行なわれているようである。しかし一般的傾向として、第12図に示すように、伸度の高いグレインほど燃焼安定性に富み、音響振動燃焼に対して強い抵抗を示す事実がある。また、異常燃焼を起こす要因としては、音響振動のほかに、グレインのき裂、側面のはく離なども考えられ、グレインの伸度を大きくすることは、このような事故を防ぐ方向へ進むとみてよい。

引張り試験用試料はJIS-K-6301に規定されているゴムの試験片と同一形状で、厚さ6mmとした。また圧縮試験用試料は一辺 $d=20\sim30$ mm の正方形断面をもち、高さ $h=2d$ である。引張り速度および圧縮速度はそれぞれ 200 mm/min, 20 mm/min とする。

第13図および第14図は、オートグラフ(島津製作所、容量100kg)を用い、SSR推進剤グレインの引張りおよび圧縮試験例と、試験片の形状を示す。SSR推進剤グレインには、第3表に記されているように、伸び率の高いものが選ばれている。

なお、著者らのSSR推進剤グレインの製造に関する報告には、製品検査の仕様が述べて

第14図 代表的な圧縮応力-圧縮ひずみ線図 (ε =ひずみ速度)

あるが[17]、試験方法はここに記した方法と全く同じである。さらに測定条件、試料作製法を厳密に規定して、SSR 推進剤グレインの機械的性質が、試験方法、環境によっていかに変わるか、また振動燃焼とどのような相関をもつかについては植村ら[18]、[19]の報告がある。

5. 燃焼安定性の測定

5. 1. 燃焼面の音響アドミッタンスの測定

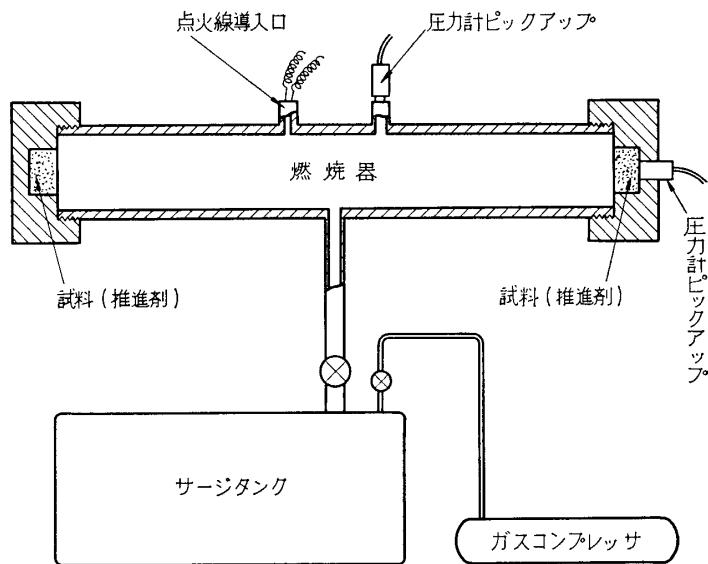
固体ロケットモータの燃焼の途中で、燃焼室の幾何学的形状で決定される音響モードと同じ振動数をもつ燃焼ガス振動が振幅を急激に増大し、モータを破壊したり、作動不順を起こす、いわゆる異常燃焼現象がしばしばみられる。巨大ロケットではとくに振動燃焼の発生を警戒する必要があり、燃焼面の音響アドミッタンスは、少量の試料で推進剤が不安定燃焼を起こしやすいかどうかを推測する手がかりを与える尺度として、最近注目を集めている。グレインの機械的性質が、音響振動のダンピング効果と関連があることは、実験的に認められた事実とはいえ、まだ両者を有機的に関連づける理論はないが、これに対し、音響アドミッタンスは、直接振動燃焼と結びついた推進剤の固有量である。

燃焼面の比音響アドミッタンスの実数部は次式で表わされる[20]。

$$Y = -\frac{V}{\rho} \left(\frac{\mu}{\varepsilon} - \frac{1}{\kappa} \right) \quad (49)$$

振動燃焼が生長するか、あるいは減衰するかの決め手となるのは (49) 式右辺第1項の応答関数（質量燃焼速度の増分と音響圧力振幅の増分との比） μ/ε の大きさである。モータの燃焼安定性を高めるために、グレインの応答関数は小さい方がよいことはいうまでもない。

応答関数の測定には、第 15 図に示すような T 型燃焼器が代表的な装置としてよく使用されている[21]。円筒状燃焼器の両端に端面燃焼型の推進剤グレインを装填し、その裏側に圧力トランスマニホールドを付けて、燃焼開始と終了時期に重点をおいて音響振動を計測する。



第 15 図 T 型燃焼器

燃焼が開始すると燃焼ガス・カラムの長さに応じた軸モードの音響振動が発生するが、その振幅は時間に対し指数関数型で増大し定常振幅に落着き、燃焼終了後には同じく指数関数型で減衰する。すなわち、成長期と減衰期の音響振動の振幅を $A_m = A_0 e^{\alpha t}$ と表わし、生長定数 (α_g) と減衰定数 (α_d) を測定すれば応答関数は次式によって求められる[22]。

$$\frac{\mu}{\varepsilon} = \frac{p}{4C\rho_s r} \left(\frac{\alpha_g - \alpha_d}{f} \right) \quad (50)$$

ここに、 C : 燃焼ガスの音速、 ρ_s : 推進剤グレインの密度、 f : 音の周波数、 p : 燃焼圧力、および r : 線燃焼速度である。

第16図に SSR 推進剤グレインと、copper chromite を含む燃焼速度の比較的高いグレインとの応答関数が示されている。前者は後者と比べて周波数の低い領域、すなわちモータの L/D が大きくなると応答関数が大きくなり燃焼安定性にやや不安がある推進剤であるといえる。この推進剤グレインを用いた SSR モータの開発初期において、多数の異常燃焼発生をみたのは、応答関数の値が裏書きするところの振動燃焼が励起されやすいグレインの性質によるものと考えられる。

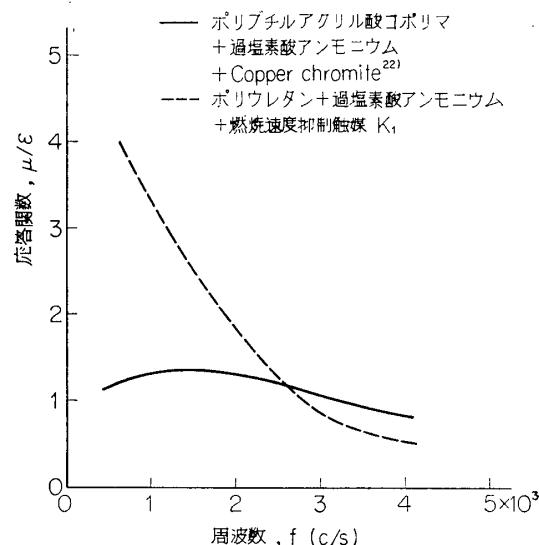
しかし、推進剤グレインは応答関数が大きいという欠点だけで実用性がないと断定するのは早計である。グレインの機械的性質の改善、反応ガスに強いじょう乱を与える原因の駆除などによって、グレインに対する信頼を回復することができる。応答関数に影響する因子として、グレインの機械的性質、モータ形状（音の周波数、モード）、化学成分、固体成分の粒度などが考えられる。しかし、これらのパラメータと応答関数との関係は、まだ定性的な域を出ていないし、不明な点も多い。たとえば、燃焼触媒を添加すると応答関数が大きくなるといわれているが[22]、その理由はわかっていない。いずれにしてもこれらの問題は、応答関数を減少せしめる添加物の発見とならんで、今後の研究が期待される。

また、モータの設計、性能に応じて、種々の物質が推進剤に添加されるが、それらが振動燃焼を励起しやすいものであるかどうかを、音響アドミッタンスの測定を通じて、確認しておくことが勧められている。

5.2. 衝撃法による燃焼安定性の判定

厳密にいって、気泡、き裂、異物の混入等の欠陥が全くない推進剤グレインは、実際にはあり得ないから、燃焼過程である程度のじょう乱が燃焼ガスのなかに発生することは避けられない。ただ、それがきっかけとなって不安定燃焼へ進むことがないよう、ある安全率を見込んで、推進剤の選択、モータ設計を行なうことが必要である。

この方法[23]は、燃焼室の反応ガスのなかへ、人為的にじょう乱をつくり出し、どのくら

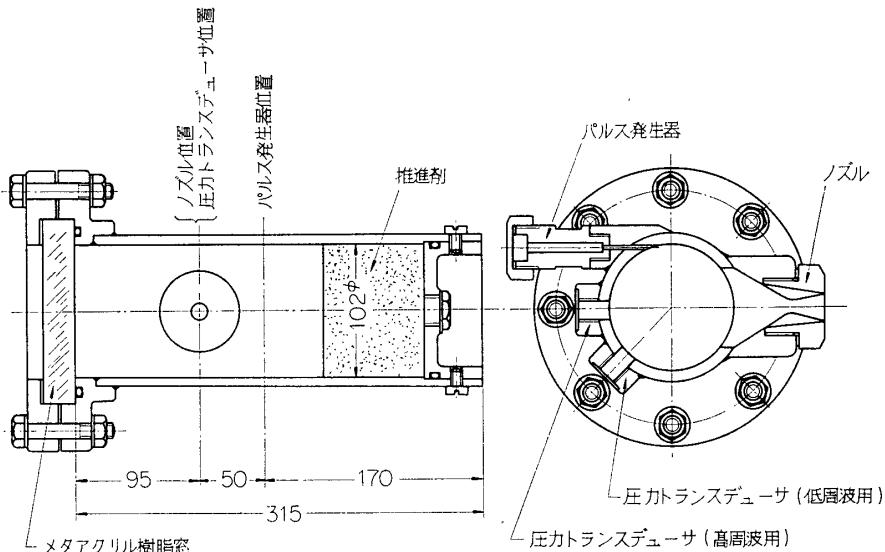


第16図 周波数と応答関数の関係

いの強さのショックによってモータが異常燃焼を起こすようになるかを知り、モータに対する信頼度を評価し、早期に欠陥を見出し対策を講ずるのに役立つ。したがって、前に述べた音響アドミッタンス測定法よりも、さらに実用的色彩が濃い実験法である。この試験結果は、推進剤を含めモータの燃焼安定性を議論するうえに、またそれを打上げるかどうかを決断する場合に、有用な資料となる。

じょう乱を発生させるには、高圧不活性ガスまたは火薬類の爆発ガスの噴射、ノズルスロートの急激な拡大と縮小などにより、目的に応じて、圧縮波と膨張波の2種類のいずれかが燃焼室ガスへ付与される。そのほか不燃性固型物がノズルから飛び出すときのショックを利用するのも一案であろう。

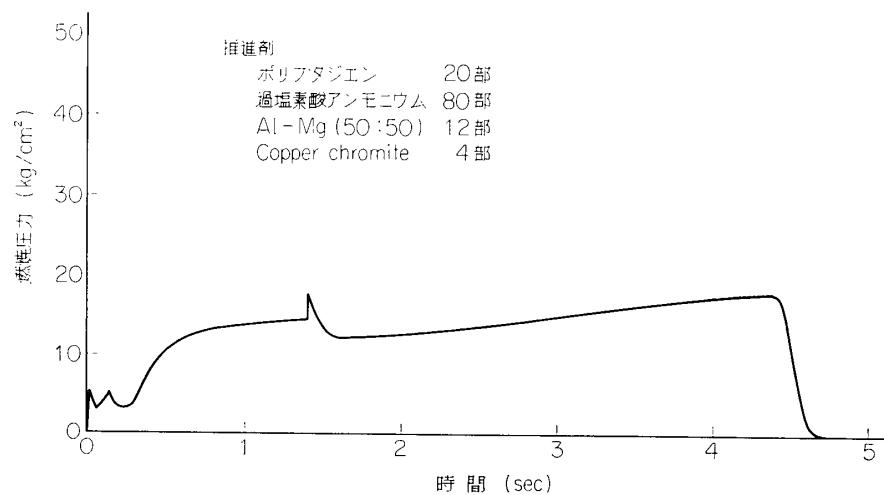
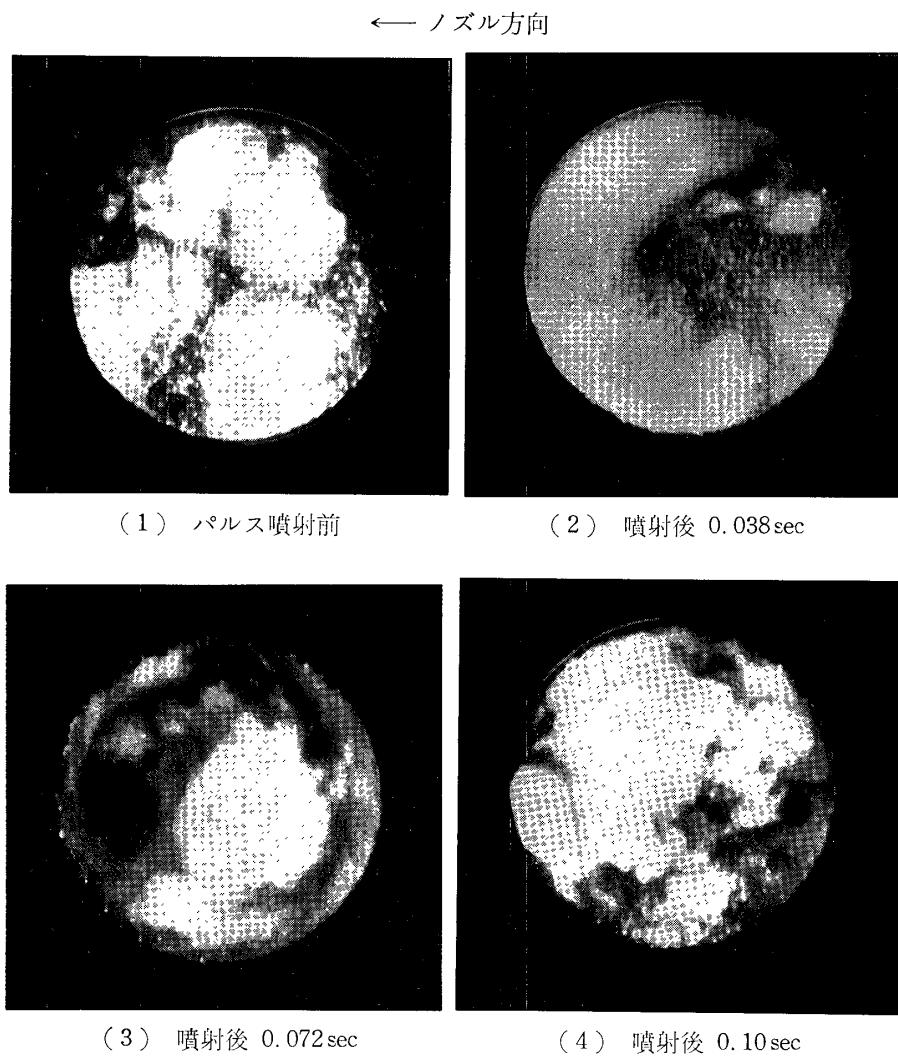
第17図は、パルス発生器を備えた端面燃焼型ミゼットモータの1例を示している[24]。パルス発生源として1~3gの黒色火薬が使用され、その爆発ガスは、室内ガス・カラムに対して接線方向へ射出される。この燃焼器は、メタアクリル樹脂製の透明窓を通して、モー



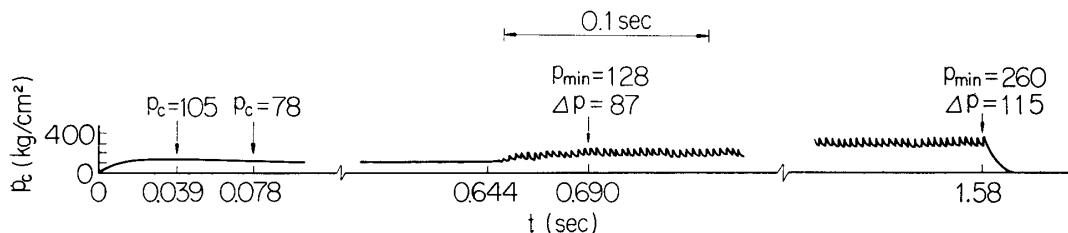
第17図 透明T型燃焼器

タ内の燃焼ガスの二次元的な動きを観察できる点を特長としている。第18図にパルスを与えたときの燃焼ガスの動きを高速カメラで撮影した写真と、燃焼圧力-時間曲線を示す。SSR推進剤グレインは、このミゼットモータでは、高圧燃焼(約40kg/cm²以上)が不可能なこともあります。パルスを与えて振動燃焼の発生をみるに至らなかった。しかし、内面燃焼型実機モータ(SSR 3/4~1/1 サイズ)では、難燃性の点火剤容器がスロートを通過するときのショックが原因となって、第19図に示すように、軸モードの強い振動燃焼が発生することがある。

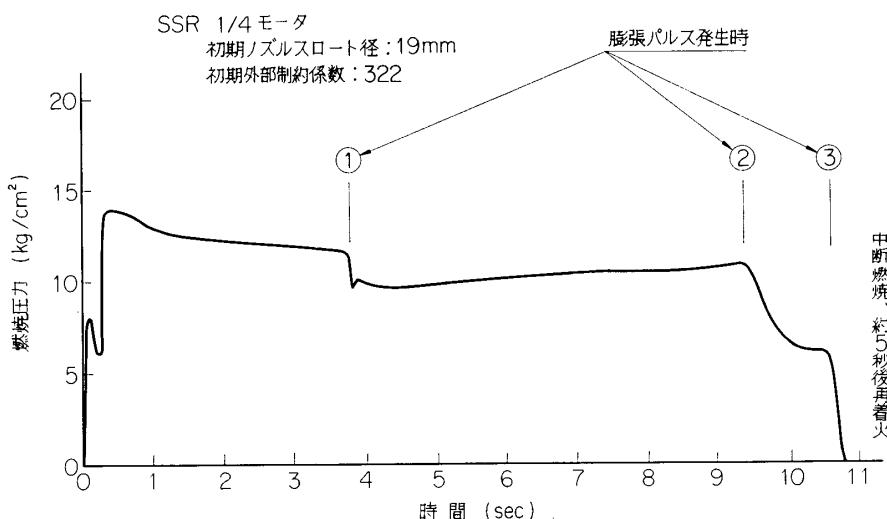
第20図は、燃焼の途中でノズルスロートを急激に拡大し、膨張波を発生させた場合の燃焼圧力-時間曲線を示す。この例では負の圧力パルスが3回与えられ、第3のパルスによってモータは一たん立消えを起こし、約5秒後再着火している。負のパルスによる振動燃焼の励起はまだ著者らは経験していないが、固体ロケットの消火と推力制御の一方法として現在



第18図 定常燃焼の途中でパルスを付与したときのモータ内の状況と燃焼圧力-時間曲線



第19図 不安定燃焼を発生したモータの燃焼圧力-時間曲線の一例



第20図 燃焼室へ膨張パルスを与えたときの燃焼圧力-時間曲線

盛んに研究されている。

6. 結 語

固体推進剤の性能、物性の計算と試験法は、開発にたずさわる技術者の切実な要求を反映して、基礎研究の成果を実用化する期間を短縮しようという目的のために、著しい進歩をしつつある。しかも、推進剤グレインに対し、さまざまの角度から検討を加える必要から、物性と燃焼性の試験項目の数は増加し、内容も複雑化している。したがって、これらの試験を能率的に改良するとともに、新しい試験法の開発も進めなければならない。たとえば、ここで触れなかった燃焼圧力-時間曲線の計算機シミュレーション、侵食燃焼の強さ、推進剤ドウの粘弾性的性質の測定などは重要な課題である。また、グレインの燃焼安定性の測定法は最近とりあげられたものであり、測定法自体まだ改善の余地が残され、今後の進歩が期待されている。

また、試験法が固まってきた事項については、日本でも標準化する気運が盛り上ってきて もよい時期に達していると思われる。

参 考 文 献

- [1] W. Cohen: Astronautics and Aeronautics, 3, 2, pp. 42~46 (1965)
- [2] V. N. Huff, S. Gordon and V. E. Morrel: NACA TN, 1037 (1951)

- [3] S. R. Brinkley Jr.: Jour. Chem. Phys., **15**, 2, pp. 107~110 (1947)
- [4] M. S. Morgan, J. Silverman and W. T. Webber: Jet Propulsion, **26**, 10, pp. 874~878 (1956)
- [5] 岩間 彰, 山崎毅六: 工化, **63**, 11, pp. 1886~1890 (1960)
- [6] T. A. Brzustowski and I. Glassman: Bulletin of the 17 th Meeting of the JANAF Solid Propellant Group. SPIA-APL, Johns Hopkins University, Silver Spring, Maryland, May 1961.
- [7] NACA CR-359 (1966)
- [8] H. Cheung and N. S. Cohen: AIAA Journal, **3**, 2, pp. 250~257 (1965)
- [9] R. D. Glauz: ARS Journal, **32**, 5, pp. 773~775 (1962)
- [10] B. L. Crawford Jr., C. Huggett, F. Daniels and R. E. Wilfong: Anal. Chem., **19**, pp. 630~633 (1947)
- [11] たとえば
J. R. Osborn and R. J. Barick: AD 601, 648 (1964)
J. P. Picard, C. J. Anderson, R. D. Gross and E. Bryant: Ind. Eng. Chem., **56**, 1, pp. 49~52 (1964)
D. Pavone, C. E. Holley Jr.: The Review of Scientific Instruments, **36**, 1, pp. 550~551 (1965)
- [12] 岩間 彰, 山崎毅六, 岸 和男, 青柳鐘一郎, 上月 功: 工化, **65**, 8, pp. 1218~1219 (1962)
- [13] 山崎毅六, 岩間 彰, 青柳鐘一郎, 祖父江照雄, 林 実, 岸 和男: 航研集報, **3**, 6(A), pp. 381~389 (1963)
- [14] D. N. Griffin, C. F. Turner and G. Angeloff: ARS Journal, **29**, 1, pp. 15~19 (1959)
- [15] 岩間 彰, 山崎毅六, 青柳鐘一郎, 祖父江照雄: Bull. Chem. Soc. へ投稿中
- [16] 山崎毅六, 岩間 彰, 上月 功, 青柳鐘一郎, 祖父江照雄: 宇宙科学技術講演会前刷, pp. 12~24 (1962)
- [17] 山崎毅六, 岩間 彰, 林 実, 岸 和男: 低燃焼速度の混成系推進剤の侵食燃焼と点火ピークの抑制について, 本特集号[II. 3. 2]
- [18] 植村益次, 林 実, 阿部慎藏: ポリウレタン固体推進剤の力学的物性について, 本特集号[II. 3. 7]
- [19] 植村益次: 固体推進剤の力学的物性と燃焼特性との関連について, 本特集号[II. 3. 8]
- [20] R. W. Hart and F. T. McClure: Jour. Chem. Phys., **30**, 6, pp. 1501~1514 (1959)
- [21] M. D. Horton and E. W. Price: Ninth Symposium (International) on Combustion, pp. 303~310, Academic Press, New York (1963)
- [22] M. D. Horton and E. W. Rice: Combustion and Flame, **8**, 1, pp. 21~28 (1964)
- [23] L. A. Dickinson and F. Jackson: Fifth Agard Colloquium, Pergamon Press, pp. 531~550 (1963)
- [24] 岩間 彰, 青柳鐘一郎, 祖父江照雄, 山崎毅六: 第3回燃焼シンポジウム前刷, pp. 39~40 (1965)