

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 22 日現在

機関番号：13102

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2016

課題番号：15K18282

研究課題名(和文) HAN系低毒性1液推進剤のレーザ点火の実現可能性評価

研究課題名(英文) Feasibility study on laser ignition of HAN-based green monopropellant

研究代表者

勝身 俊之 (Katsumi, Toshiyuki)

長岡技術科学大学・工学研究科・准教授

研究者番号：60601416

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：レーザー誘起ブレイクダウンによるHAN系低毒性1液推進剤(SHP163)の実現可能性を評価するため、SHP163の液滴を対象としてパルスレーザーによる点火実験を実施した。その結果、各種パラメータが着火特性に及ぼす影響を明らかにし、HANの化学反応(分解反応)が生ずる条件を得ることができた。また、HAN系1液推進剤の液滴を完全燃焼させる条件は得られなかったが、完全燃焼させるための指標は得られた。

研究成果の概要(英文)：Ignition experiments of HAN-based green monopropellant, SHP163, were performed using pulse laser in order to evaluate the feasibility of laser-induced breakdown ignition for SHP163. As the results, influences of several parameters on the ignition characteristics are measured, and conditions to initiate the chemical reaction are elucidated. Furthermore, condition to burn SHP163 completely has not been clarified, but idea to improve the combustion characteristics was obtained.

研究分野：宇宙推進工学および燃焼工学

キーワード：レーザー誘起ブレイクダウン HAN系1液推進剤 液滴燃焼 生成ガス成分分析 集光焦点距離 ダブルパルスレーザー レーザ波長

1. 研究開始当初の背景

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 (反動制御システム/ 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 (アンモニウムジニトラミド/ Ammonium Dinitramide) 系低毒性1液推進剤の研究開発が進められており、2010年にはADN系低毒性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 (ヒドロキシルアンモニウム硝酸塩/ Hydroxylammonium Nitrate) 系低毒性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系低毒性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系低毒性1液推進剤やADN系低毒性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性1液推進剤の燃焼に関する研究は進められているが、低毒性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℃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。低毒性1液推進剤のように初期加熱が必要な場合、即時作動ができず、ヒータやバッテリーの搭載が必要なため、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℃) 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系低毒性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、複数箇所でも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位な特長を有するが、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。宇宙機用としては未だ大きく重たいことは否めないが、近い将来さらなる小型・軽量化が期待できることから、現時点で実現可能性について評価することは重要と考える。

2. 研究の目的

本研究では、日本国内で独自に開発された高性能HAN系低毒性1液推進剤 (SHP163) [13]を用いたスラスタの実現を目指し、高温酸化雰囲気における耐久性の面からレーザー点火に着目した。HAN系低毒性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[14、15]が、日本国内での報告例はなく、SHP163を対象としたものは前例がない。そこで、パルスレーザーを用いてSHP163の液滴の点火実験を行い、燃焼特性の取得および評価を行う。さらに、実験で得られた燃焼特性に基づき、SHP163のレーザー点火の実現可能性について評価する。

3. 研究の方法

JAXAによって日本国内で独自に開発された高性能HAN系低毒性1液推進剤 (SHP163)

を対象としてレーザーによる点火実験を実施した。SHP163 の組成を表 1 に、SHP163 とヒドラジンの各種特性値を表 2 に示す。

表 1 SHP163 の組成 (mass%)

HAN	AN	H ₂ O	MeOH
73.6	3.9	6.2	16.3

表 2 SHP163 とヒドラジンの各種特性値の比較

*理論比推力および断熱火炎温度の算出には

NASA-CEA[16]を用いた。

計算条件) 圧力 : 0.7 MPa、推力係数 : 1.875

		SHP163	ヒドラジン
密度 [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 [mg/kg]	LD50 経口	500-2000	60
	LD50 経皮	>2000	91

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、容積 210mL の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。実験装置の概略を図 1 に示す。

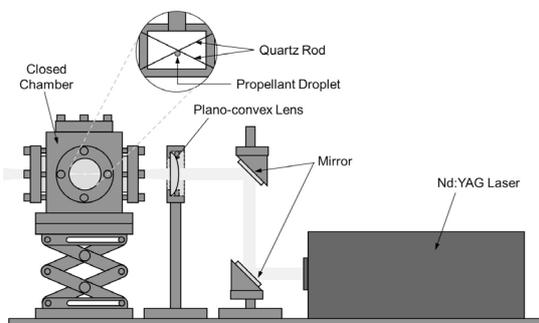


図 1 実験装置概略図

密閉容器内に 2 本の石英線 (直径 0.1mm) を交差させて設置し、その交点に SHP163 の液滴を懸垂させ、レーザー光を平凸レンズで絞り照射した。このとき、液滴のサイズを直径約 1.0mm (約 0.5 μ L) とし、密閉容器内の雰囲気を窒素、初期圧力を 101.3kPa、初期温度を 25° C とした。点火用レーザーとして、Nd:YAG レーザー (Quantel 製 EverGreen 145、波長 : 532nm、モード : パルス、パルス幅 : <10ns) を用いた。また、圧力センサ (Honeywell FP2000) とデータロガーによって周期 1kHz で圧力データの収録を行った。入射レーザーのエネルギー測定にはレーザーパワーセンサ (OPHIR PE50BF-DIF-C) を用

いた。

実験では、レーザーのエネルギーを 20~80mJ の範囲で変化させ、パルスレーザーを 1 回照射した場合の入射レーザーエネルギーの影響を評価した。また、パルスレーザー 1 回あたりのエネルギーを 30mJ (一定) として、パルスレーザーを 2 回照射した場合の影響についても評価を行った。このとき、パルスレーザー照射の間隔は 20 μ s (一定) とした。

4. 研究成果

入射レーザーエネルギーが 10、20、30、40、50、60、80 mJ のそれぞれの場合において点火実験を行い、密閉容器内圧力の時間履歴を取得した。結果を図 2 に示す。t=0 s のとき、SHP163 の液滴に対し、パルス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って生ずる圧力波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。入射レーザーエネルギーが 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、入射レーザーエネルギーが 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 の液滴のガス化に寄与する入射レーザーエネルギーには上限があることが予想される。また、10mJ ではガス化による圧力上昇は確認されなかった。したがって、SHP163 の液滴をガス化させるためには、入射レーザーエネルギー 20mJ 以上が必要と考える。

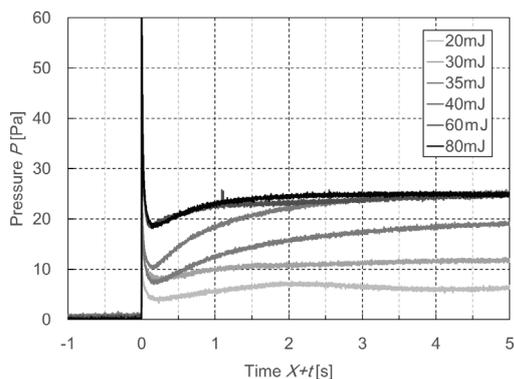


図 2 密閉容器内圧力の時間履歴

点火実験において、シャドウグラフ法によって高速度撮影した液滴の挙動を図 3 に示す。入射レーザーエネルギー 15mJ、20mJ、25mJ のそれぞれの場合における 4 μ s 間隔の液滴の様子である。このとき、レーザー光は図の左側より入射した。また、図 3 中の時刻は、レーザーを照射した時を時刻 t=0s とした場合の時刻である。入射レーザーエネルギー 15mJ の場合 (図 3a)、レーザー光の出口側 (液滴右側) から液が噴き出し、その後、レーザー

の光路に沿って液滴が変形する様子が見られた。次に、入射レーザーエネルギー20mJの場合(図3b)には、レーザーを照射した直後は入射レーザーエネルギー15mJの場合と同様にレーザー光の出口側から液が噴き出したが、レーザーの航路に沿って液滴が変形するのではなく、出口側から噴き出した液が膨張する様子が観察された。さらに、入射レーザーエネルギー25mJの場合(図3c)、入射レーザーエネルギー20mJの場合と全く同様に、出口側から噴き出した液が膨張する様子が観察された。圧力測定の結果を考慮すると、SHP163の液滴のガス化が生じていると考えられる条件では、レーザー光の出口側から噴き出した液が膨張して見えることがわかる。このことから、液滴のレーザー光の出口側でブレイクダウン、もしくは何らかのガス化が生じていることが推測される。ただし、液のまま飛び散る様子も見られることから、ガス化は部分的なものと考えられる。

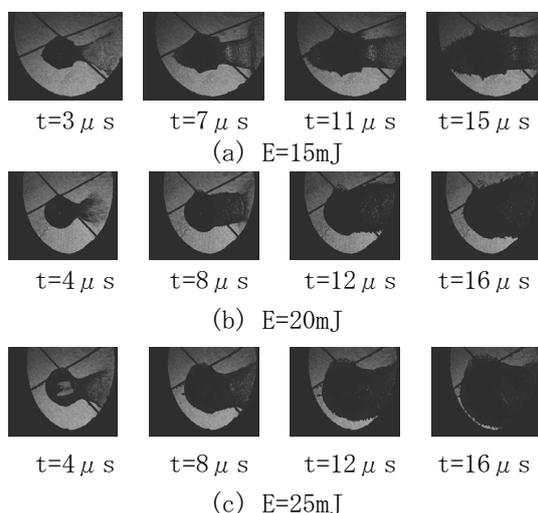


図3 レーザー照射時の液滴の様子

次に、パルスレーザーを2回照射した場合の結果について示す。このときの密閉容器圧力の時間履歴を図4に示す。比較のため、1回照射の場合(入射レーザーエネルギー30mJ、60mJ)も同時に示す。パルスレーザーを2回照射した場合(図4中“30mJ(Double)”)の圧力上昇は、2回分の合計エネルギーと同じ入射レーザーエネルギー60mJの1回照射の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。

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1.15kPa、溶媒の蒸発のみの場合には約248Paであるが、実験値は1回照射の場合に最大約25Pa、2回照射の場合に最大約38Pa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。

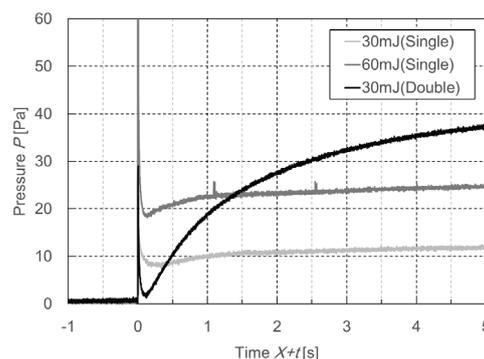


図4 密閉容器内圧力の時間履歴(2回照射)

また、ガス化が化学反応によるものか単なる蒸発によるものか判断するため、実験後の密閉容器内のガスについて、窒素酸化物用の検知管(GASTEC 11L)を用い、簡易的な分析を行った。結果の一例として、入射レーザーエネルギー30mJのときの密閉容器内ガスの窒素酸化物濃度を表3に示す。窒素酸化物が検出され、SHP163に含まれるHANやANの分解反応が生じていることが示された。

表3 密閉容器内ガスの窒素酸化物濃度

1回照射@30mJ	2回照射@30mJ
1.8 ppm	2.2 ppm

以上の結果より、パルスレーザーによってSHP163の化学反応を誘起し、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。今後も継続して実験を行い、パルスレーザーを2回照射する場合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うと共に、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。

<引用文献>

- 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、

- 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, 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, 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、SERVIS-3 グリーンプロペラント推進系(GPRCS)の開発、第59回宇宙科学技術連合講演会、No. 1B10、2015
 - 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、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, 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, 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, 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, 112-119
 - ⑬ S. Togo, H. Shibamoto, H. Hori, Improvement of HAN based liquid monopropellant combustion characteristics, Proc. International workshop HEMs 2004, 2004
 - ⑭ 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, 33-41
 - ⑮ 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, 902-913

- ⑯ S. Gordon, B. J. McBride, Computer Program for Calculation of Complex Chemical Equilibrium Compositions and Applications, NASA Reference Publication 1311, 1996

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 0 件)

[学会発表] (計 10 件)

- ① 勝身俊之、宮島佳輝、門脇敏、硝酸ヒドロキシルアンモニウム系1液推進剤のレーザー点火に関する実験的研究、第53回燃焼シンポジウム、つくば国際会議場(つくば市)、2015年11月
- ② 勝身俊之、宮島佳輝、門脇敏、HAN系系1液推進剤の単一液滴を対象としたレーザー点火実験、平成27年度火薬学会秋季大会、豊泉荘(別府市)、2015年12月
- ③ 勝身俊之、レーザー着火による宇宙推進技術の高度化、第6回燃焼学会レーザー点火研究分科会、明星大学(多摩市)、2016年1月(招待講演)
- ④ T. Katsumi、Y. Miyajima、S. Kadowaki、Laser ignition experiment of HAN-based monopropellant, 4th Laser Ignition Conference 2016、Yokohama (Japan)、2016年5月
- ⑤ T. Katsumi、S. Kadowaki、Feasibility study on laser ignition of HAN-based monopropellant, 12th International conference HEMs-2016、Tomsk (Russia)、2016年9月
- ⑥ M. Furusawa、T. Katsumi、S. Kadowaki、Laser ignition experiment of low-toxic monopropellants for thruster, 5th International GIGAKU Conference in Nagaoka, Nagaoka (Japan)、2016年10月
- ⑦ 勝身俊之、古澤雅也、門脇敏、低毒性1液推進剤のレーザー点火に関する実現可能性評価、第54回燃焼シンポジウム、仙台国際センター(仙台市)、2016年11月
- ⑧ 古澤雅也、勝身俊之、門脇敏、レーザー励起ブレイクダウンによる低毒性1液推進剤の着火特性、平成28年度宇宙輸送シンポジウム、JAXA宇宙科学研究所(相模原市)、2017年1月
- ⑨ 勝身俊之、古澤雅也、門脇敏、安全かつ高性能な宇宙推進システムのための低毒性1液スラスタの燃焼研究-HAN系1液推進剤のレーザー点火特性-、日本機

械学会北陸信越支部第 54 期総会・講演
会、金沢大学（金沢市）、2017 年 3 月

- ⑩ M. Furusawa, T. Katsumi, S. Kadowaki,
Evaluation of laser ignition for
HAN-based monopropellant of RCS
thruster 、 31th International
Symposium on Space Technology and
Science、Matsuyama (Japan)、2017 年 6
月

〔図書〕（計 0 件）

〔産業財産権〕

○出願状況（計 0 件）

○取得状況（計 0 件）

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

勝身 俊之 (KATSUMI, Toshiyuki)

長岡技術科学大学・工学研究科・准教授

研究者番号：60601416