

機関番号：82645

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2013

課題番号：24760668

研究課題名(和文)熱防御材表面触媒効率計測装置の開発及び表面触媒モデルの構築

研究課題名(英文)Development of an apparatus for catalytic coefficient measurement on thermal protection systems and construction of surface catalytic model

研究代表者

高柳 大樹(Takayanagi, Hiroki)

独立行政法人宇宙航空研究開発機構・研究開発本部・研究員

研究者番号：70513422

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円、(間接経費) 990,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では「表面触媒性」について高圧環境下で酸素原子プラズマを生成できるよう開発してきたマイクロ波型触媒性計測装置を用いて研究を行った。

まずフローリアクターを用いて酸素原子における二光子レーザー誘起蛍光法の飽和現象について検討した結果、レーザー強度を1000 J/m<sup>2</sup>以下にして実験をする必要があることがわかった。そのため、レーザー強度を140J/m<sup>2</sup>程度にしてマイクロ波型触媒性計測装置にレーザー誘起蛍光法を適用し、酸化SiCの触媒効率を計測した。この結果、酸化SiC触媒効率の圧力依存性が得られ、触媒効率が圧力が高くなるにつれて小さくなることがわかった。

研究成果の概要(英文)：In this research, we have investigated surface catalytic effect on thermal protection systems with a microwave-discharge type surface catalysis measurement system.

First, we have investigated saturation effect in two-photon absorption laser induced fluorescence to atomic oxygen with a flow reactor. When we want to neglect this phenomenon, we should set the laser power lower than 1000 J/m<sup>2</sup>. Therefore, we have applied TALIF to surface catalysis measurement system with 140J/m<sup>2</sup> laser power. As a result, we found the pressure dependency of the catalytic efficiency and it decreased when the pressure increased.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・航空宇宙工学

キーワード：航空宇宙流体工学

## 1. 研究開始当初の背景

ハヤブサの後継機やHTV-R、また次期火星探査ミッションなど今後地球や惑星への大気突入を伴うミッションが様々提案されている。大気突入時の飛翔体への過酷な空力過熱に耐えるため様々な熱防御材が開発されているが再突入時の機体表面では「表面触媒性」という原子の発熱を伴う再結合反応により熱防御材に加わる熱負荷が増大することが知られている。そのため大気圏突入時の空力加熱量を正確に予測し、大気圏突入機体の熱防御システムの形状・重量・厚さ等の重要パラメータを最適に設計するためにはこの表面触媒性の特性を正しく評価することが重要である。米国においてはアポロ計画のときより表面触媒性については着目され、アーク加熱風洞を用いて研究されてきた。また近年、ドイツのシュツットガルト大においては無電極で汚染の心配のない誘導加熱風洞を用いることによって触媒効率を評価しようと試みられている。しかしながら材料表面の温度や清浄度、表面粗さだけでなく気流の圧力、流速等様々な影響を受けるため、実験から求められた触媒効率は2桁以上のばらつきがある。しかもこれらの高エンタルピー風洞を用いる手法においてはプラズマ発生装置が大掛かりで実験が困難であるばかりでなく、気流条件を決めるパラメータは流量や投入電力となり気流圧力と材料表面温度を自由に決めることは困難である。

そこで水野らは誘導加熱型触媒性計測装置を開発し、発光分光法によるアクチノメトリー法によって酸素原子触媒効率を計測してきた。この装置では誘導加熱を用いてプラズマを生成すると共に赤外線加熱装置によって下部から供試体表面を加熱することができるため気流条件とは独立して表面温度を設定でき、低圧条件下での触媒効率の温度依存性を評価することが可能となった。しかしながら誘導加熱型では高い圧力ではプラズマが加熱部に閉じ込められ材料表面に噴出させることが困難であった。加えてアクチノメトリー法においては衝突励起と放射遷移がつり合うコロナ平衡を仮定しているため高圧力環境下においては適用することが困難であることが報告されている。そのため実際の再突入環境とは程遠い10Pa程度の低圧環境下の酸素原子触媒効率しか評価でき

ていないのが現状である。また大気の主成分である窒素原子を含む触媒性反応の触媒効率は未だ手付かずの状態である。

そこで近年、より実環境に近い高圧環境下で酸素気流だけでなく窒素気流においてもプラズマを生成可能なマイクロ波加熱型触媒計測装置の開発に取り組んできた。

一方で申請者はこれまでに以下に示すように様々な分光システムを開発し、気流診断を行ってきた。

- ①レーザー吸収分光法によりアーク加熱風洞気流、誘導加熱型触媒計測装置の励起準位数密度分布、並進温度を評価。
- ②キャビティエンハンスト法により従来のレーザー吸収分光法に比べて2桁程度数密度の低い気流においても並進温度分布、励起準位数密度分布を取得。
- ③発光分光法によって得られた分光スペクトルを再現するように輻射解析コードSPRADIAN2のモデルパラメータを最適化する手法(実験-解析融合手法)により衝撃波背後の $N_2$ 、 $CO_2$ 解離モデルを構築。
- ④レーザー誘起蛍光法によるアーク加熱風洞、誘導加熱風洞の酸素原子、窒素原子基底準位絶対数密度分布を測定。

## 2. 研究の目的

そこで本研究では、これまで申請者が高エンタルピー風洞において培ってきた分光技術をマイクロ波加熱型触媒性計測装置に適用し、基底準位酸素原子数密度分布を直接レーザー誘起蛍光法によって分光学的に取得することによりこれまで計測されてきた低圧環境から実応用に足る高圧環境まで広い圧力範囲に適用し、触媒効率の圧力依存性の評価を実施する。

## 3. 研究の方法

### 3.1 二光子吸収レーザー誘起蛍光法

本研究においては二光子吸収レーザー誘起蛍光法を用いて触媒性効率計測を実施した。レーザー誘起蛍光法による蛍光信号は基底準位の酸素原子数密度と以下のような式で関連付けられる。

$$S \doteq \frac{\Delta\Omega}{4\pi} \eta_{\lambda} V \frac{A}{A+Q} \hat{\sigma}^{(2)} N_1 G^{(2)} \cdot g(2\nu_L - \nu_0) \left( \frac{E_L}{A_L h \nu_L} \right)^2 \int_0^{\infty} I_0^2(t) dt \quad (1)$$

蛍光信号のS/N比を向上させようとするあまりレーザー強度を強くしすぎると飽和現象というものが見られることが知られている。本研究で用いた二光子吸収レーザー誘起蛍光法においては本現象は起きにくいと報告されていたため、これまでにはあまり考慮せずに研究を進めてきた。しかしながら本研究において飽和現象が確認されたため、二光子吸収レーザー誘起蛍光法における吸収飽和現象を検証した。ここで吸収飽和が起こっていない場合の蛍光信号は以下のように表すことができる。

$$S_{true} = A \frac{2R(t)}{A+Q+2R(t)} N_{tot} \quad (2)$$

なお、 $R(t)$ は次式のように表すことができる。

$$R(t) = \hat{\sigma}^{(2)} \frac{I^2}{h^2 \nu^2 \tau_L^2} \quad (3)$$

### 3.2 再結合係数

材料表面での酸素原子の質量収支から酸素原子の数密度の変化量は以下のように表される。

$$D_O \frac{\partial N_O}{\partial z} = (N_O)_{z=0} \frac{V^*}{4} \gamma_O \quad (4)$$

ここで $V^*$ は次式で表される。

$$V^* = \sqrt{\frac{8RT}{\pi M_O}} \quad (5)$$

また温度 $T$ は気体と材料表面の平均温度である。本研究においては蛍光信号の変化量から数密度の変化量を評価した。その結果、触媒効率は次式を用いて求めた。

### 3.3 実験装置

本研究で用いた二光子吸収レーザー誘起蛍光法を用いた触媒性効率計測装置の概略図を図1に示す。

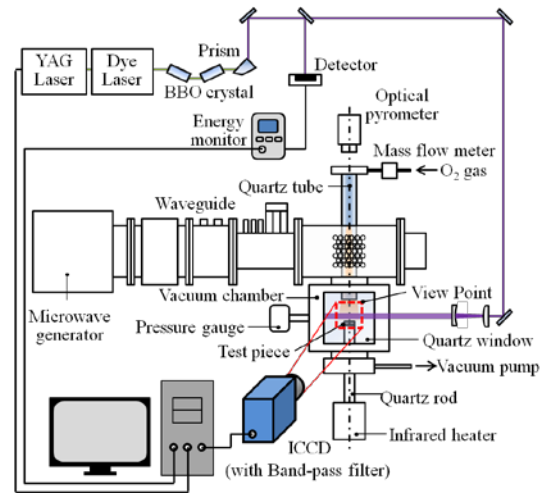


図1 二光子吸収レーザー誘起蛍光法による触媒効率計測システムの概略図

先に述べたように本研究においては触媒効率はレーザー誘起蛍光法における蛍光信号から求めた。Nd:YAG レーザー (Quanta-Ray LAB 170-10, Spectra-Physics) の3倍波励起の波長可変色素レーザー (ScanMate 2E, Lambda Physics) を励起光源として用いた。クマリン 47 をメタノールに溶かし色素とした。非線形結晶によって酸素原子の基底準位の2倍波である225nmを発生させた。蛍光信号分布はICCDカメラ (1280 x 1024 array with 6.7 mm pixels, LaVision Nanostar camera) を用いて計測した。また酸素原子からの蛍光信号分布を取得するために自動ステージを用いてレーザー光の位置を供試体表面0.5から15mmの範囲で0.5mm間隔で移動させた。プラズマからの発光を減らすためにICCDカメラの前面にバンドパスフィルターを設置した。先に示したように蛍光信号はレーザー強度と密接に関係しているため、パワーメーター (J-50MB-LE, COHERENT) を用いてレーザー強度を計測した。

本研究では2.45GHzのマイクロ波源 (Nihon Koshuha Co., Ltd, MKN-152-3S9-PS) を用いて酸素原子を生成する触媒性計測装置を用いて実験を行った。導波管には垂直に内径25mm、長さ500mmの石英管が貫通しており、この導波管部で酸素原子が生成され、下部に接続された真空チェンバーに設置された供試体に向かって流入される。真空チェンバーには3つの石英窓が設置されており、先に述べたように供試体表面からの距離による蛍光信号分布が取得される。

供試体としては熱防護材としてよく用いられている酸化 SiC と触媒効率が低いと知られている銅を用いて実験を行った。表面粗さによる影響を排除するために供試体表面は鏡面仕上げをしたものを用いた。

また本研究においては酸素原子に対する二光子吸収レーザー誘起蛍光法における飽和現象を詳細に検証するために、酸素原子発生装置としてフローリアクターを用いた。本装置においては酸素原子をマイクロ波の放電によって生成する。酸素ガス 10sccm とアルゴンガス 300sccm を内径 8mm の石英管内に流入させ、2.45GHz、150W のマイクロ波によって酸素原子が生成され、レーザー光が導入される 6 方管内に流出される。本装置においては壁面での再結合を極力少なくするためにテフロンチューブを用いた。

#### 4. 研究成果

##### 4.1 酸素原子における二光子レーザー誘起蛍光法の飽和現象

本研究においてはフローリアクターを用いて酸素原子における二光子レーザー誘起蛍光法の飽和現象について詳細に検討した。フローリアクターにおいて取得されたレーザー強度と蛍光信号の関係を図 2 に示す。レーザー強度が強くなるにしたがって蛍光信号が飽和していくさま見られており、触媒効率を推定するためにはレーザー強度を 1000 J/m<sup>2</sup> 以下にして実験をする必要があることがわかった。

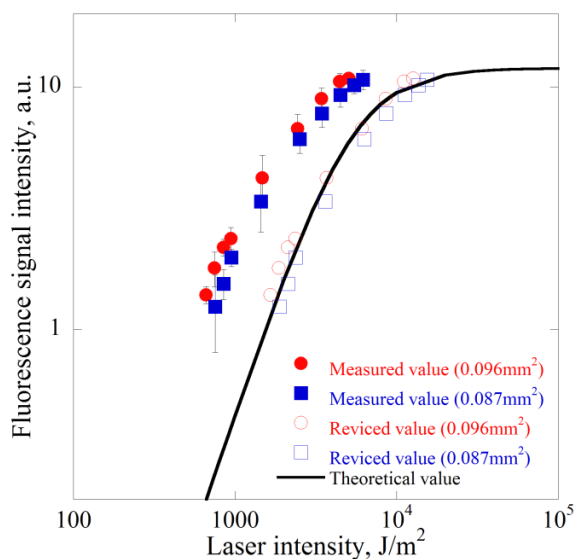


図 2 酸素原子に対する二光子レーザー誘起蛍光法における飽和現象

##### 4.2 触媒効率計測

本計測においては真空チェンバー内でのレーザー強度とレーザー径をそれぞれ 1 mJ, 3 mm として実験を行った。この際のレーザー強度は 140 J/m<sup>2</sup> となっており、飽和現象を回避することができる環境下で実験を行っている。ICCD カメラで取得された酸素原子からの蛍光信号分布を図 3 に示す。自動ステージを用いてレーザー光の供試体表面からの距離を 0.5 から 15mm まで変化させることによって図 4 に示すような供試体として銅を用いた際の蛍光信号分布を取得した。供試体から 6mm 以上離れた位置では蛍光信号は一定の値を示している。一方で 6mm よりも供試体表面に近づくと急激に酸素原子数密度が減少している様子がわかる。同様に酸化 SiC を供試体として用いた際の蛍光信号分布を図 5 に示す。本計測においては下部からの赤外線加熱によって供試体表面温度を 1010K と 1150K の 2 パターンによって計測を行った。これらの結果から酸化 SiC の触媒効率が図 6 のように得られた。これらの結果は他の研究者によって得られている結果とよい一致を示した。

一方で本研究で得られた結果から酸化 SiC 触媒効率の圧力依存性が図 7 のように得られた。この結果から触媒効率が圧力が高くなるにつれて小さくなることがわかった。

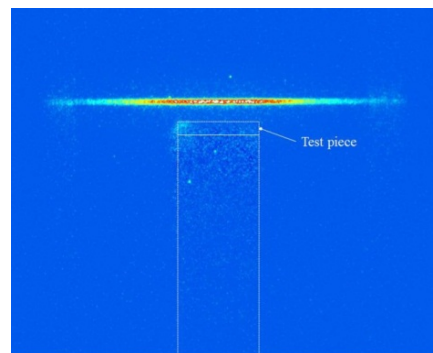


図 3 ICCD カメラで取得された蛍光信号

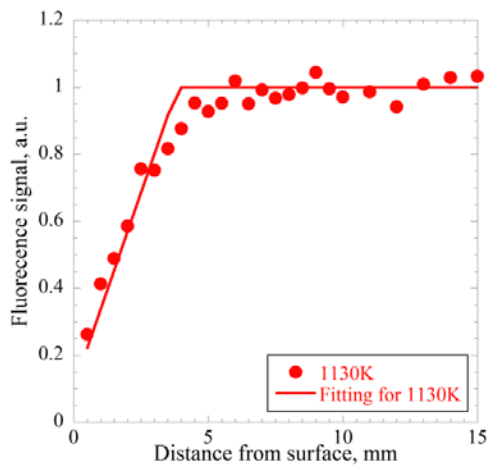


図4 銅供試体における蛍光信号分布

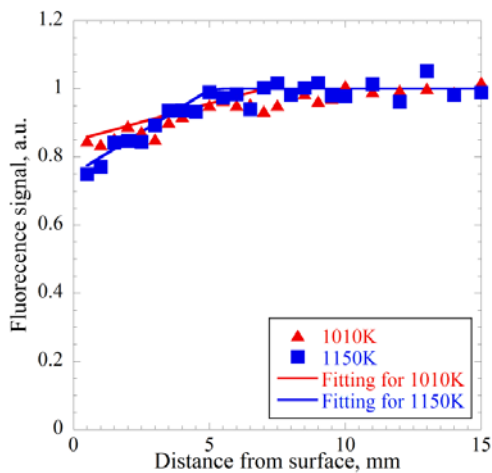


図5 酸化SiC供試体における蛍光信号分布

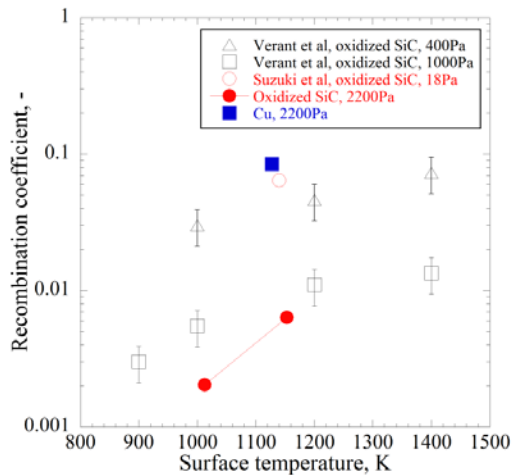


図6 SiCの触媒効率の温度依存性

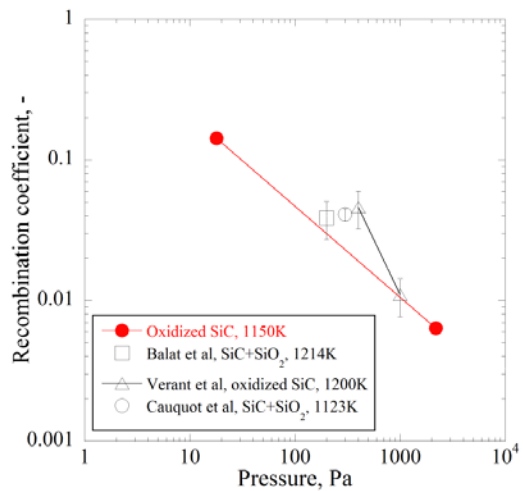


図7 SiC触媒効率の圧力依存性

## 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 4 件)

- ① Takahashi, Y., Abe, T., Takayanagi, H., Mizuno, M., Kihara, H., and Abe, K., “Advanced Validation of Nonequilibrium Plasma Flow Simulation for Arc-Heated Wind Tunnels,” Journal of Thermophysics and Heat Transfer, Vol. 28, No. 1, pp.9-17, 2013年9月.
- ② Takayanagi, H., Kato, S., Mizuno, M., Fujii, K., Matsui, M., and Fujita, K., “Translational temperature distribution measurements in high enthalpy flows by Laser-Induced Fluorescence,” 51st AIAA Aerospace Sciences Meeting Including the New Horizons Forum and Aerospace Exposition, AIAA-2012-741, Gaylord Texan Resort and Convention Center, Texas, USA, 2013年1月.
- ③ Suzuki, S., Mizuno, M., Takayanagi, H., Fujita, K., Matsui, M., and Yamagiwa, Y., “Experimental Study for Evaluating Pressure Dependency of Atomic Oxygen Catalytic Efficiency on TPS Surface,” AIAA-2012-742, Gaylord Texan Resort and Convention Center, Texas, USA, 2013年1月.
- ④ Takayanagi, H., Mizuno, M., Fujii, K.,

Sakai, T., and Fujita, K.,  
“Application of Two-photon  
Absorption Laser-Induced  
Fluorescence to Atomic Species in JAXA  
750kW Arc Heated Wind Tunnel,”  
Transactions of the Japan Society for  
Aeronautical and Space Sciences, Vol.  
57, No. 2, 99.101-108, 2014年3月.

[学会発表] (計 5件)

- ① 鈴木翔太郎, 水野雅仁, 高柳大樹, 藤田和央, 松井信, 山極芳樹, “マイクロ波プラズマを用いた酸素原子触媒効率計測,” 第44回流体力学講演会/航空宇宙数値シミュレーション技術シンポジウム 2012, 2D07, 富山国際会議場, 大手町フォーラム, 2012年7月.
- ② 高柳大樹, 加藤駿, 水野雅仁, 藤井啓介, 藤田和央, 松井信, 山極芳樹, “レーザー誘起蛍光法によるアーク風洞気流温度計測,” 平成24年度宇宙航行の力学シンポジウム, 神奈川県相模原市, 2012年12月.
- ③ 酒井武治, 藤田和央, 藤井啓介, 鈴木俊之, 高柳大樹, “高エンタルピ風洞の高動圧化のためのCFD検討,” 平成24年度宇宙航行の力学シンポジウム, 宇宙科学研究所, 神奈川県相模原市, 2012年12月.
- ④ Kato, S., “Measurement of Surface Catalytic Efficiency Using Laser Induced Fluorescence,” 29th International Symposium on Space Technology and Science,” Nagoya Congress Center, Nagoya, Aichi, Japan, 2013年6月.
- ⑤ 水野雅仁, 野村哲史, 加藤駿, 高柳大樹, 藤田和央, “圧力依存性評価のための触媒性計測装置における酸素原子発光分光計測,” 日本流体力学学会年会 2013, 東京農工大学 小金井キャンパス, 東京都小金井市, 2013年9月.

[その他]

ホームページ等

<http://www.aero.jaxa.jp/research/basic/aerodynamic/entry-vehicle/>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

高柳大樹 (TAKAYANAGI, Hiroki)  
宇宙航空研究開発機構・研究開発本部・未  
踏技術研究センター・研究員  
研究者番号: 70513422

### (2) 連携研究者

藤田和央 (FUJITA, Kazuhisa)  
宇宙航空研究開発機構・研究開発本部・未  
踏技術研究センター・主幹研究員  
研究者番号: 90281584

鈴木俊之 (SUZUKI, Toshiyuki)  
宇宙航空研究開発機構・研究開発本部・未  
踏技術研究センター・主任研究員  
研究者番号: 20392839

小澤宇志 (OZAWA, Takashi)  
宇宙航空研究開発機構・研究開発本部・未  
踏技術研究センター・研究員  
研究者番号: 70567544