

平成 30 年 6 月 12 日現在

機関番号：82645

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2014～2017

課題番号：26820379

研究課題名(和文)大規模詳細化学反応解析による自着火性液体推進薬の噴霧着火プロセスの解明

研究課題名(英文) Numerical analysis of auto-ignition and flame structures of hypergolic liquid propellants by applying detailed chemical reaction models

研究代表者

谷 洋海 (Tani, Hiroumi)

国立研究開発法人宇宙航空研究開発機構・研究開発部門・研究開発員

研究者番号：80633784

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は宇宙機化学スラスタで使用される自燃性推進剤の自着火と噴霧燃焼形態を解明し、数値解析による燃焼予測の向上を図るものである。広く採用されるモノメチルヒドラジンと四酸化二窒素の衝突噴霧流の可視化に成功し、液膜分裂、蒸気生成、ガス着火、火炎伝播というプロセスで火炎が形成されることを解明した。数値解析では大規模詳細解析を考慮した2種類の解析コードを構築した。一つは質点近似法で噴霧燃焼を再現する手法であり、液滴サイズによって燃焼効率が大きく変化することを解明した。また、もう一方の界面追跡法による解析では液体推進剤周りで蒸気と外気による水素引抜反応による発熱が自着火を引き起こすことがわかった。

研究成果の概要(英文)：Auto-ignition and spray combustion processes of hypergolic propellants used for spacecraft chemical propulsion were investigated to enhance the accuracy of the performance prediction of chemical thrusters. In experiments, we succeeded in acquiring images of auto-ignition processes of monomethylhydrazine and nitrogen tetroxide, which were consist of the break of a liquid fan, vapor generation, gas ignition, and flame propagation. To simulate these processes, numerical simulation codes were constructed by applying detailed chemical reaction models. Simulations of spray combustion by using a lagrangian-model revealed that the combustion efficiency of the hydrazine spray is very sensitive to the droplet size. Furthermore, simulations with an interface tracking method suggested that the hydrogen abstraction reactions happening between the propellant vapor and ambient gases released a high heat such that the auto-ignition occurred near the liquid surfaces.

研究分野：熱流体力学、化学反応流、宇宙推進

キーワード：自燃性 自着火 噴霧燃焼 詳細化学反応 宇宙推進 数値流体力学

### 1. 研究開始当初の背景

人工衛星や惑星探査機といった長期間運用される宇宙機にとってコンパクトかつ高信頼な推進器は不可欠である。自燃性推進薬を用いた化学スラスタは、低圧・低温環境下でも着火器無しで何度も再着火可能であるため、コンパクトかつ高信頼化を実現する貴重な推進器である。また、数 10 ミリ秒間隔で着火/消炎を繰り返すパルス作動により、高精度に推力制御できる点も重宝される理由である。しかし、長年の実績にも関わらず、液体燃料と液体酸化剤の噴射タイミングが設計点から逸脱した場合、ハードスタートと呼ばれる爆発的な着火現象が発生しうる課題がある。設計点外で不具合が起きうる本質的原因は、内部の燃焼現象を把握しないまま、経験的設計が行われるためである。特に着火/消炎を繰り返すパルス作動時に不具合を起こしやすいことから、自着火プロセスの解明とその制御が鍵となる。

化学スラスタ燃焼器内では噴霧促進のため、衝突噴射方式が採用される。燃焼開始時は常温の液体燃料と液体酸化剤が衝突後、噴霧化・液滴蒸発・蒸気の混合・拡散・化学反応の順番で自着火に至ると予想されている。これまで、このプロセスの解明が進んでいない大きな理由は、噴霧化・蒸発・混合といった複雑な流体現象と、自着火に至る化学反応による複合現象を理解できていないためであった。上流側の衝突噴霧化現象については、国内外ともに近年盛んに研究され、高精度な界面追跡法を導入した数値解析によって、噴霧化した後の燃料/酸化剤の混合比や液滴粒径の空間分布の予測ができつつあった。一方、自着火の最終段階である化学反応機構については、長らく進捗が見られず、常温下で自着火に至る反応機構は未解明であったが、量子化学計算と遷移状態理論のアプローチによりヒドラジン ( $N_2H_4$ ) と四酸化二窒素 ( $N_2O_4$ ) の詳細化学反応が提案された。これにより、着火プロセスの上流と下流を成す衝突噴霧化と化学反応機構を考慮した研究つまり噴霧化した後の自着火性推進薬の噴霧流が蒸発・混合を経て、化学反応に至るプロセスの解明が可能になると期待された。

### 2. 研究の目的

本研究では噴霧化した後の自燃性推進剤が燃焼に至るまでのプロセスを熱流体力学及び化学反応論の両面から調査を行った。そして、噴霧の初期状態である混合比や液滴粒径が着火性能に及ぼす影響を明らかにした。また、目的の中には上記の現象を再現可能な数値流体力学(CFD)手法の構築と、データが乏しい実液による燃焼試験データの取得も含まれる。

### 3. 研究の方法

本研究は実験解析と数値流体解析を採用し、それぞれ下記のように進めた。

(1) 実験解析においては、自燃性推進剤として広く使われるモノメチルヒドラジン/四酸化二窒素の組み合わせで燃焼試験を実施した。噴射器は燃料、酸化剤それぞれに対して噴射孔が一つずつ設けられた衝突型噴射器のシングルエレメントを用いた。実機で採用される噴射孔 1mm 以下のサイズの噴射器と、観察のために孔を 1mm に拡大した噴射器の 2 種類を用いた。圧力は実際の燃焼圧に近い条件に揃えた。計測は主に高速度カメラによる火炎の自発光画像と噴霧流のバックライト画像を取得した。

(2) 数値解析においては噴霧化後の液体燃焼を再現するため、大規模詳細化学反応を考慮した 2 種類の数値解析コード構築に取り組んだ。一つは噴霧中の液滴を質点近似で捉えた Lagrangian model ベースの噴霧燃焼コードである。この手法によって、自燃性推進剤の噴霧燃焼に対して噴射条件つまり噴射温度や液滴粒径が及ぼす影響について調査した。この手法は噴霧燃焼シミュレーションに実用的に用いられるが、液滴個々の蒸発・燃焼モデルが必要となる。しかし、一般的な炭化水素燃料とは異なり自燃性推進剤の液滴に対して有効な蒸発・燃焼モデルは定かではない。そこで、もう一つの手法として界面追跡法を用いた 2 相流燃焼解析コードも用意した。これにより、単一液滴周りの自着火・燃焼プロセスを調査した。

### 4. 研究成果

(1) 実験解析においてはモノメチルヒドラジン-四酸化二窒素の衝突噴流の高速度撮影によって、着火・保炎に至るまでの可視化に成功した。Fig. 1 に燃料と酸化剤が噴射されてから着火に至るまでの自発光画像とバックライト画像を載せた。接触直後から蒸気と思われるガスが衝突点近傍から噴出し、燃焼器に充填する。この時、衝突点付近では液相における化学反応により発熱し、蒸気が生成されていると考えられる。その後、数 ms 後には衝突点から下流で最初の火炎片が可視化され、瞬く間に衝突点近傍まで火炎が伝播した。衝突点まで火炎が到達すると、そこで保炎され、安定した噴霧燃焼火炎が形成された。これにより、自燃性推進剤の自着火には液相反応による発熱で生じる蒸気が不可欠であり、その蒸気が下流で着火することがわかった。また、衝突型噴射器で安定な火炎が形成されるのは衝突点付近で火炎が付着し、安定することが重要であることもわかった。また、噴射孔径が通常より大きい 1mm の試験では、一度接触した燃料と酸化剤が下流で剥離する現象を捉えることもできた。Fig. 2 は下流で剥離する噴霧を撮影した画像である。これまでは剥離する場合は衝突点から離れると考えられてきたが、実際は一度接触し、その後両者の混合、微粒化が不十分なことで剥離に至るケースがあることがわかった。

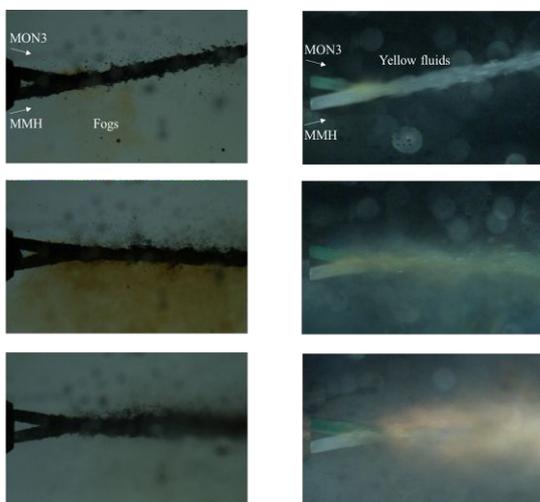


Fig. 1 High-speed s imaged of an impinging monomethylhydrazine/nitrogen tetroxide jet. Left: Backlighting images, right: flame images.

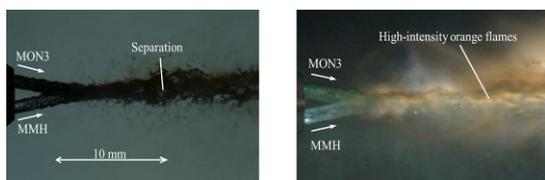


Fig. 2 Separation of an impinging monomethylhydrazine/nitrogen tetroxide jet. Left: Backlighting image, right: flame image.

(2)数値解析では噴霧の噴射条件の影響を調査すべく、ヒドラジン噴霧燃焼の数値シミュレーションを実施した。その結果、噴霧燃焼の自着火はヒドラジン蒸気と四酸化二窒素(実際は主に二酸化窒素に変化している)の間で生じる数段の水素引き抜き反応の予熱反応によって誘導されることがわかった。ただし、液滴の蒸発によって雰囲気や蒸気が低温化する効果があることで、単純なガスのみケースよりも着火遅れ時間が長くなることがわかった。この効果は、液滴粒径の効果と強く関連した。つまり、液滴径が小さいほど蒸発速度が速くなるが、その分低温化が顕著となる。すると、水素引き抜き反応が遅れ、結果的には着火遅れが大きくなった。本研究で調査した条件の範囲内では、液滴径が大きいほうが低温化を防ぎ、着火が早まることがわかった。この事実は自燃性推進剤の噴霧燃焼の特異な傾向であるといえる。また、着火後に定常化した火炎に対しても液滴粒径の

影響は現れた。火炎構造自体はヒドラジンの熱分解と酸化反応それぞれによる発熱帯が生じる2重火炎構造を有した。ヒドラジン蒸発、熱分解の時定数が噴霧流の流体不安定の時定数と同程度になることで、噴霧流が蛇行する挙動を示すことがわかった。このとき、燃料の消費量がもっとも早くなったことから、ヒドラジン噴霧の場合は燃焼が最も促進するのは液滴径が小さい条件ではなく、流体不安定を助長するような液滴径であることが示唆された。

次に単一液滴の蒸発燃焼に着目した界面追跡法による解析を実施した。界面追跡法にはPLIC-VOF法とLevel-set法を組み合わせたCLSVOF法を用いることで界面捕獲精度を高めた。これを用いてヒドラジンおよび四酸化二窒素それぞれの液滴燃焼を数値解析した。その結果、両液滴ともに蒸気と周囲ガスの混合により水素引き抜き反応により着火までの発熱が生じ、低温でも着火することが示された。また、ヒドラジン液滴はヒドラジン蒸気の発熱を伴う自己分解が生じるため、気液界面近傍に高温域が滞在し、蒸発が促進されることがわかった。従って、ヒドラジン液滴燃焼には従来の液滴燃焼モデルでは不十分である可能性が示唆された。一方、四酸化二窒素液滴の燃焼は従来の液滴燃焼モデルと同様の火炎構造を有することがわかった。これらにより、自燃性推進剤の噴霧燃焼の液滴モデルを構築するデータを得ることができた。

## 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6件)

Hiroumi Tani, Hiroshi Terashima, Yu Daimon, Mitsuo Koshi, and Ryoichi Kurose, "A Numerical Study on Hypergolic Combustion of Hydrazine Sprays in Nitrogen Tetroxide Streams," *Combustion Science and Technology*, Vol. 190, No. 3, pp. 516-534, 2017. (Peer-reviewed)  
DOI: 10.1080/00102202.2017.1402010

Hiroumi Tani, Yu Daimon, Masahiro Sasaki, and Yoshiki Matsuura, "Atomization and Hypergolic Reactions of Impinging Streams of Monomethylhydrazine and Dinitrogen Tetroxide," Vol. 185, pp. 142-151, 2017. (Peer-reviewed)  
DOI: 10.1016/j.combustflame.2017.07.005

Nozomu Kanno, Hiroumi Tani, Yu Daimon, Hiroshi Terashima, Norihiro Yoshikawa, Mitsuo Koshi, "Computational Study of the Rate Coefficients for the Reactions of NO<sub>2</sub> with CH<sub>3</sub>NHNH, CH<sub>3</sub>NNH<sub>2</sub>, and CH<sub>2</sub>NHNH<sub>2</sub>," *Journal of Physical Chemistry A*, Vol. 119,

pp. 7659-7667, 2015. (Peer-reviewed)  
DOI: 10.1021/acs.jpca.5b00987

Hiroumi Tani, Hiroshi Terashima, Mitsuo Koshi, and Yu Daimon, "Hypergolic Ignition Mechanism of Hydrazine/nitrogen tetroxide Co-flowing Jets at Low Temperatures," *International Journal of Energetic Materials and Chemical Propulsion*, Vol. 14, pp. 71-84, 2015. (Peer-reviewed)  
DOI:10.1615/IntJEnergeticMaterialsChemProp.2015011276

Hiroumi Tani, Hiroshi Terashima, Mitsuo Koshi, and Yu Daimon, "Hypergolic Ignition and Flame Structures of Hydrazine/nitrogen tetroxide Co-flowing Plane Jets," *Proceedings of the Combustion Institute*, Vol. 35 (2), pp. 2199-2206, 2015. (Peer-reviewed)  
DOI: 10.1016/j.proci.2014.07.053

谷洋海, "自燃性流体の反応機構と着火・火炎ダイナミクス," *ながれ, 特集 流体力学と化学反応*, Vol. 34, pp. 25-32, 2015.

[学会発表](計 15 件)

Hiroumi Tani, "All-speed Reactive Two-Phase Flow Simulations with Basilisk," *Basilisk/Gerris Users' Meeting 2017*, 15-16th Nov., 2017, NJ, USA.

Hiroumi Tani, Yutaka Umemura, Yu Daimon, Hiroshi Terashima, and Mitsuo Koshi, "Numerical Study on Droplet Evaporation and Auto-ignition of Hypergolic Propellants," *9th International Conference on Multiphase Flow*, 22nd-27th May, 2016, Firenze, Italy.

Hiroumi Tani, Yutaka Umemura, Yu Daimon, "Interface Tracking Simulations of LOX/GH<sub>2</sub> Coaxial Combustions at Subcritical Pressures," *AIAA SciTech 2017*, 9-13th Jan., 2017, Grapevine, USA.

谷洋海, 大門優, 梅村悠, 根岸秀世, "界面追跡法を用いた液体ロケットエンジン亜臨界圧燃焼流解析," *第 48 回流体力学講演会/第 34 回航空宇宙数値シミュレーション技術シンポジウム*, 7月7日-8日, 2016年, 石川県金沢市.

Hiroumi Tani, Hiroshi Terashima, Ryoichi Kurose, Tomoaki Kitano, Mitsuo Koshi, Yu Daimon, "Effects of Droplet Size on Hypergolic Combustion of Hydrazine Spray," *25th International Colloquium on the Dynamics of Explosions and Reactive*

*Systems*, 2nd-7th Aug., 2015, Leeds, UK.

Hiroumi Tani, Yutaka Umemura, Yu Daimon, Hiroshi Terashima, Mitsuo Koshi, "Interface-Tracking Simulations of Droplet Vaporization and Burning of Hypergolic Propellants," *AIAA SciTech 2016*, 4th-8th Jan., 2016, San Diego, USA.

Hiroumi Tani, Yutaka Umemura, Yu Daimon, Hiroshi Terashima, Mitsuo Koshi, "Numerical Modeling of Droplet Burning of Hypergolic Propellants," *Asian Joing Conference on Propulsion and Power*, 16th-19th March, 2016, Takamatsu, Japan.

谷洋海, 寺島洋史, 越光男, 大門優, "自燃性推進剤の衝突噴流燃焼モードの数値解析," *日本流体力学学会*, 9月26日-28日, 2015年, 大岡山, 東京.

谷洋海, 大門優, 笹木正裕, 松浦芳樹, "衝突噴射される自燃性推進剤の自着火尾及び火炎挙動の高速度撮影," *第 53 回燃焼シンポジウム*, 11月16日-18日, 2015年, つくば市茨城県.

谷洋海, 寺島洋史, 黒瀬良一, 北野智朗, 越光男, 大門優, "自燃性推進剤噴霧燃焼の特異な火炎ダイナミクス," *第 24 回微粒化シンポジウム*, 12月17日-18日, 2015年, 神戸市兵庫区.

Hiroumi Tani, Hiroshi Terashima, Ryoichi Kurose, Tomoaki Kitano, Mistuo Koshi, Yu Daimon, "Hypergolic Ignition and Flame Structures of Hydrazine Spray/Gaseous Nitrogen Tetroxide Co-flowing Jets," *53rd AIAA Aerospace Science Meeting*, 5-9th Jan., 2015, Kissimmee, USA.

Hiroumi Tani, Hiroshi Terashima, Nozomu Kanno, Mitsuo Koshi, Yu Daimon, "Hypergolic Ignition Mechanism and Flame Structures of Monomethylhydrazine/Nitrogen Dioxide Co-flowing Jets," *5th International Symposium on Energetic Materials and Their Applications*, 12-14th Nov., 2014, Fukuoka, Japan.

Hiroumi Tani, Hiroshi Terashima, Mitsuo Koshi, Yu Daimon, "Hypergolic Ignition Mechanism of Hydrazine/Nitrogen Tetroxide Co-flowing Jets at Low Temperatures," *10th International Symposium on Special Topics in Chemical Propulsion&Energetic Materials*, 2-6th Jun, 2014, Poitiers, France.

谷洋海, 寺島洋史, 越光男, 大門優, “ヒ  
ドラジン/二酸化窒素同軸噴流の特異な二重  
火炎構造,” 第 46 回流体力学講演会/第 32  
回航空宇宙数値シミュレーション技術シン  
ポジウム, 7 月 3-4 日, 2014 年, 弘前市青森  
県.

〔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

[https://www.linkedin.com/in/hiroumi-tan  
t-749232141/](https://www.linkedin.com/in/hiroumi-tant-749232141/)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

谷 洋海 (TANI, Hiroumi)

宇宙航空研究開発機構・研究開発部門・研  
究開発員

研究者番号: 80633784