

審査の結果の要旨

氏名 和田 祐典

本論文は、「硝酸アンモニウムの燃焼機構に関する研究」と題し、無残渣生成、低温燃焼などの長所を有する事から自動車エアバッグ用ガス発生剤の次世代酸化剤成分として実用化が強く望まれている硝酸アンモニウムの燃焼反応機構の解明をめざし、硝酸アンモニウムを主要成分とするガス発生剤モデル物質の燃焼挙動解析をもとに燃焼反応モデルの定性的考察を行い、科学的根拠に基づく硝酸アンモニウム系新規ガス発生剤組成を提案する事を目的として行った研究の成果をまとめたもので、5章からなる。

第1章は序論であり、自動車エアバッグ用ガス発生において硝酸アンモニウムの実用化が望まれるに至った経緯を解説し、本論文の研究方針を決定する上で重要な知見となる硝酸アンモニウムの熱分解機構と燃焼挙動に関する既往の研究について解説し、これらをもとに構築される本論文の目的と方針について述べている。

第2章では、硝酸アンモニウム単独試料、硝酸アンモニウム／硝酸グアニジン混合試料、硝酸アンモニウム／活性炭混合試料について着火性試験並びに燃焼持続性試験を行い、持続燃焼性を示さないこれらの試料の凝縮相内の様相を詳細に観察し、持続燃焼に至らない原因に関する考察を実施している。

第3章では、硝酸グアニジン／硝酸アンモニウム／塩基性硝酸銅からなるガス発生剤モデル試料を用い、チムニー型ストランド燃焼装置を使用した線燃焼速度解析と燃焼波内温度場測定からなる燃焼挙動解析を実施し、得られた知見をもとにした定性的考察により、硝酸アンモニウムの燃焼反応機構モデルを提案している。

線燃焼速度解析では、試料中の硝酸グアニジン／硝酸アンモニウム組成比が硝酸アンモニウム過多となる系と硝酸グアニジン過多となる系の間に圧力指数の遷移が存在する事、硝酸アンモニウム過多系と硝酸グアニジン過多系の間の試料組成系の燃焼においては圧力指数が燃焼圧力に依存して遷移するきわめて特徴的な挙動を示す事、圧力指数の差異に応じて燃焼生成残渣の様相も異なる

事を発見している。

燃焼波内温度場測定では、凝縮相／気相界面から断熱火炎燃焼に至るまでの領域の厚さが線燃焼速度解析より得られる圧力指数の差異と相関を有する事を発見している。

以上二つの燃焼挙動解析より得られた知見をもとに、硝酸グアニジン／硝酸アンモニウム／塩基性硝酸銅系の燃焼機構に関する定性的考察を行い、拡散律速の不均質系燃焼とラジカル連鎖反応律速の断熱火炎燃焼の二段階からなる燃焼反応モデルを提案している。燃焼反応モデルにおいて、拡散律速段階については、凝縮相より拡散するアンモニアガスと塩基性硝酸銅固体粒子との間で不均質反応が進行し、窒素酸化物ガスと水蒸気、並びに酸化銅(Ⅰ)固体粒子が生成し、さらに酸化銅(Ⅰ)が融解し凝集する過程について論述している。反応律速段階では凝縮相から拡散し拡散律速段階を通過した硝酸気体がラジカル生成反応を開始する事によりラジカル連鎖反応による断熱火炎燃焼に至る過程を論述し、燃焼残渣として金属銅凝集体が析出する現象を理論的に説明している。

さらに、燃焼時の圧力指数の試料組成依存性と燃焼圧力依存性について、上記の燃焼反応モデルに基づいた理論的考察を実施し、**Summerfield** の粒状拡散モデルを用いた検証により考察の妥当性を確認している。

第4章では、第3章で提案された燃焼反応モデルに関して、燃焼挙動解析手法では検証困難な凝縮相反応に関わる領域の妥当性を、示差走査熱量測定を用いた熱分析手法により検証し、論述している。

硝酸グアニジン／硝酸アンモニウム／塩基性硝酸銅混合物の熱分解挙動解析では、熱分解反応における各成分の相互作用を定性的に考察している。

次に、硝酸グアニジン／硝酸アンモニウム混合物の熱安定性について、熱分析手法を用いた速度論微分解析法である **Friedman** 解析を用いた評価を行い、第3章で実施した燃焼波内温度場測定の結果と合わせて、試料が凝縮相内において分解反応を開始せずに気相へ拡散すること理論的に証明している。

第5章は本論文の総括であり、本論文の検討によって得られた知見をまとめると共に、本研究の工学的な意義について論述している。

以上の通り本論文は、硝酸アンモニウムの燃焼反応モデルの構築を、燃焼挙動解析手法と熱分析手法によって得られた知見をもとに実施した成果をまとめ、硝酸アンモニウム系ガス発生剤の科学的根拠に基づいた用いた燃焼挙動制御が可能であることを提案しているものであり、硝酸アンモニウム系ガス発生剤の実用化を目的とするさらなる工学的応用研究の礎となるものである事から、化学システム工学の発展に寄与するところが少なくない。

よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。