

# 高エネルギーイオン液体推進剤およびレーザー点火を用いた 次世代スラスタの研究開発

松永 浩貴<sup>\*1</sup>, 伊東山 登<sup>\*2</sup>, 塩田 謙人<sup>\*3</sup>, 伊里 友一朗<sup>\*3,4</sup>,  
勝身 俊之<sup>\*5</sup>, 羽生 宏人<sup>\*3,6</sup>, 野田 賢<sup>\*1</sup>, 三宅 淳巳<sup>\*3</sup>

## Research and development of thruster with high energetic ionic liquid and laser ignition

Hiroki MATSUNAGA<sup>\*1</sup>, Noboru ITOUYAMA<sup>\*2</sup>, Kento SHIOTA<sup>\*3</sup>, Yu-ichiro IZATO<sup>\*3,4</sup>,  
Toshiyuki KATSUMI<sup>\*5</sup>, Hiroto HABU<sup>\*3,6</sup>, Masaru NODA<sup>\*1</sup>, Atsumi MIYAKE<sup>\*3</sup>

### ABSTRACT

Ionic liquid based on high energetic materials is promising new liquid propellant replacing hydrazine. We have been studying physical properties, combustion behavior in thruster chamber, and ignition method for ammonium dinitramide (ADN)-based energetic liquid propellants (EILPs) to realize new thruster system. Our studies for physical properties enabled to prepare ADN-based EILPs with low melting point and high specific impulse. ADN-based EILPs could be atomized and stably combusted in thruster chamber with existing methods. We are studying new ignition method and enable to ignite ADN-based EILPs by laser. These results indicated completely new type of thruster system.

**Keywords:** Energetic Ionic Liquid Propellants (EILPs), High Energetic Materials, Ammonium Dinitramide (ADN), Thruster, Laser Ignition

---

doi: 10.20637/JAXA-RR-18-006/0001

<sup>\*</sup> 平成 30 年 12 月 3 日受付 (Received December 3, 2018)

<sup>\*1</sup> 福岡大学 工学部 化学システム工学科  
(Department of Chemical Engineering, Fukuoka University)

<sup>\*2</sup> 東京大学 工学系研究科 化学システム工学専攻  
(Graduate School of Chemical System Engineering, The University of Tokyo)

<sup>\*3</sup> 横浜国立大学 先端科学高等研究院  
(Institute of Advanced Sciences, Yokohama National University)

<sup>\*4</sup> 横浜国立大学大学院 環境情報研究院  
(Graduate School of Environment and Information Sciences, Yokohama National University)

<sup>\*5</sup> 長岡技術科学大学大学院 機械創造工学専攻  
(Department of Mechanical Engineering, Nagaoka University of Technology)

<sup>\*6</sup> 宇宙科学研究所 宇宙飛行工学研究系  
(Division for Space Flight Systems, Institute of Space and Astronautical Science)

## 概 要

エネルギー物質を基剤としたイオン液体はヒドラジンに代わる新しい液体推進剤として期待される。我々は高エネルギー物質アンモニウムジニトラミド (ADN) を基剤としたイオン液体推進剤 (EILPs) を用いた新規スラスタシステムを実現するために、物性、スラスタ内での燃焼挙動、点火方式について研究を進めている。物性研究では、低融点かつ高性能である EILPs の調製方法を明らかにした。既存方式を用いたスラスタ燃焼試験では微粒化および安定した燃焼を達成でき、EILPs のスラスタ用推進剤としての実現可能性が示された。また、新規点火方式について検討し、EILPs のレーザー点火を可能にした。以上の結果から、新しい概念のスラスタが見出された。

## 1. はじめに

宇宙開発は世界的に本格化してきており、民間事業者がビジネス展開することによる巨大な市場の創出が期待される<sup>1)</sup>。今後の宇宙開発事業拡大のためにはロケット打上げにかかるコストの大幅な削減が求められる。筆者ら高エネルギー物質研究会では、ロケット推進剤の次世代化に向けた検討を進めている。

宇宙空間におけるロケットや人工衛星は、スラスタと呼ばれる小型ロケットエンジンにより姿勢制御が行われ、ヒドラジンはその燃料として汎用である。しかし、ヒドラジンは毒性が高く、作業中に可燃性蒸気が発生することなどから、特殊作業や漏えい防止の監視が必須となるため、作業や設備の複雑化を招いている。運用性向上のためには推進剤の低毒化が求められている。一方で推進系の次世代化のためにはシステムの小型・軽量化が必要であり、推進剤のエネルギー密度の向上が求められる。これらを解決する方法は、高エネルギー物質（加熱分解により高温の低分子量化学安定ガスを発生する材料）によるヒドラジンの代替である。高エネルギー物質を使いこなすことが今後の宇宙開発に向けて不可欠となる。

候補となる高エネルギー物質はいくつかあるが、特に有望視されるのがアンモニウムジニトラミド (ADN,  $\text{NH}_4\text{N}(\text{NO}_2)_2$ )<sup>2,3)</sup>である。ADN はエネルギー密度の高い固体酸化剤（融点 92℃）であり、ヒドラジンと比較して毒性が低いため、次世代ロケット推進剤の基剤として期待される物質である。ADN をヒドラジンに代わる液体推進剤として実用化するための研究開発は、スウェーデンをはじめとした世界各国において盛んに進められている<sup>4,7)</sup>。ADN は室温では固体であるため何らかの手法で液体化する必要がある。水やアルコールなど液体の溶媒に ADN を溶解させた LMP-103S<sup>8)</sup> (ADN 63%, 水 13.95%, メタノール 18.4%, アンモニア 4.65%), FLP-106<sup>9)</sup> (ADN 64.6%, 水 23.9%, モノメチルホルムアミド 11.5%) といった組成が現在の研究開発の主流である。

筆者ら高エネルギー物質研究会では、液体化のために水やアルコールを用いず、他の固体

エネルギー物質と混合することで共融させ、イオン液体の一種とされる Deep Eutectic Solvents (DESs)<sup>10)</sup>を調製することとした。高エネルギー物質の組み合わせで可燃性 DESs を調製し、「高エネルギーイオン液体推進剤 (EILPs)」となれば、取り扱いが容易 (固体同士の混合のみで調製でき安全に合成可能, 低揮発性であり蒸気の吸引や爆発の危険性が非常に低い) かつエネルギー密度が高い (溶媒分のロスがない) 推進剤となり得る。EILPs は一般の液体推進剤と大きく異なる特性を有することから, 筆者らは組成の探索から開始し, 実用化に向けた基盤研究を進めてきた。ここでは, 高エネルギー物質研究会のこれまでの EILPs に関する研究開発についての概要を報告する。

## 2. 組成探索

ADN と混合物すると室温で液体となり, 推進性能 (ここでは密度比推力) がヒドラジンを上回る物質を探索し, ADN にモノメチルアミン硝酸塩 (MMAN), 尿素を特定の組成比で混合すると, 加熱をすることなく低融点な液体を形成し (Fig.1), 化学平衡プログラム NASA-CEA<sup>11)</sup>による計算の結果, 性能がヒドラジンを大きく上回ることを示した<sup>12)</sup>。例えば ADN, MMAN, Urea を質量比 4:4:2 で混合すると 0 °C 付近でも液体状態を維持することができ, 密度比推力の計算値はヒドラジンの 1.6 倍となる。また, MMAN, Urea が ADN と共融することを基に, ADN に混合する物質の物性が融点に及ぼす影響について検討した。その結果, アミン硝酸塩, アミド化合物, カルボン酸を ADN と混合すると顕著な共融が起こり, ADN との分子間相互作用の影響により, 分子体積の小さい化合物ほどより低温で融解する傾向が得られた<sup>13-15)</sup>。

また, 各成分の物性 (融点, 融解熱) と分子間相互作用のパラメータを組み入れた計算式 (CALPHAD (Calculation of Phase Diagram and Thermodynamics) 法)<sup>16)</sup>を使用し, 任意の組成に対する融点を予測可能になり, 実験値と良好な一致が得られた<sup>17)</sup>。この結果と NASA-

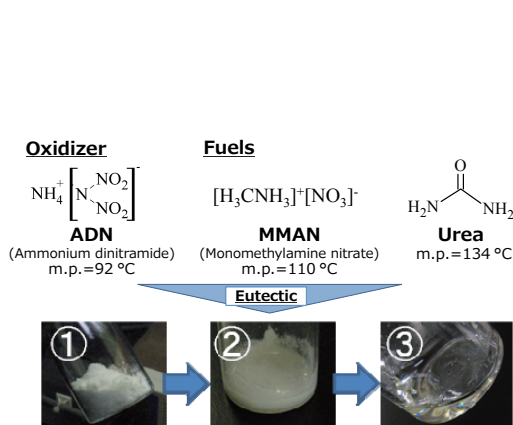


Fig.1 イオン液体調製の様子<sup>12)</sup>

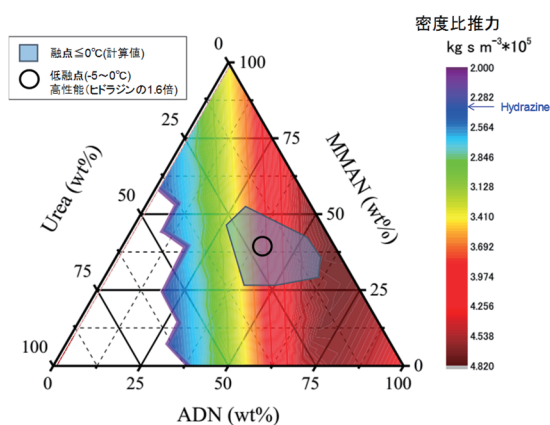


Fig.2 ADN/MMAN/Urea の密度比推力, 融点のマッピング<sup>18)</sup>

CEA<sup>11)</sup>による比推力の計算結果を組み合わせることで、低融点かつ高性能（高密度比推力）の EILPs を調製することが可能となった (Fig.2)<sup>17,18)</sup>。さらに、化学反応シミュレーションおよび量子化学計算を使用することで、熱分解および燃焼反応のメカニズムを把握し<sup>19,20)</sup>、ADN の反応特性に及ぼす添加物質の物性の影響を解析した<sup>21)</sup>。以上の結果より、要求される特性を有した EILPs を調製するための指針が得られた。

### 3. スラスタ燃焼試験（既存方式）

ADN 系イオン液体がスラスタ用推進剤として実現可能であるかを評価するため、スラスタ形状の燃焼器を試作して ADN/MMAN/Urea の燃焼試験を行った。試料の微粒化には、液-液衝突流式インジェクタ、点火源には電気ヒーターを用いた。その結果、良好な微粒化および安定した燃焼挙動が確認され、ADN 系イオン液体のスラスタ用推進剤としての実現可能性を示した<sup>18)</sup>。一方で点火に至ったのはヒーター温度が 600 °C 以上のときであり、ヒーターによる点火には高温を要することがわかった。

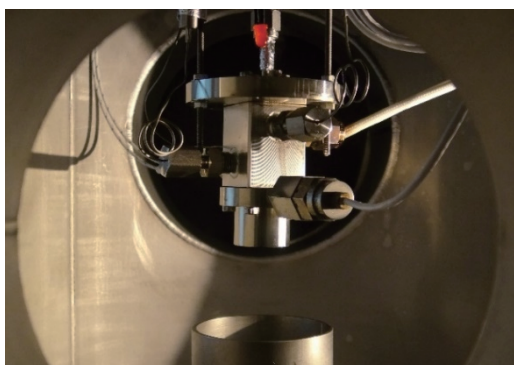


Fig.3 スラスタ燃焼試験装置

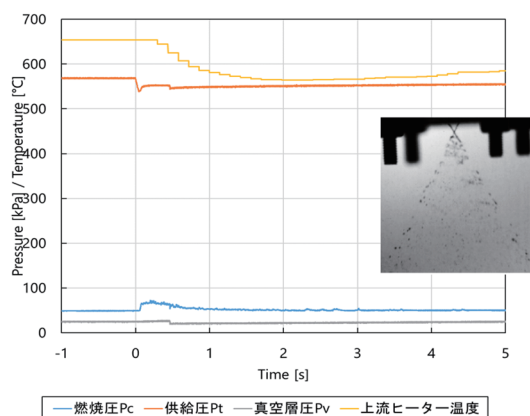


Fig.4 微粒化および燃焼試験結果の一例<sup>18)</sup>

### 4. 点火方式の研究開発

EILPs は溶媒を用いないことから火炎温度が高く（平衡計算では 2650 K）、既存の添加方式を適用するのは困難である。我々は点火のエネルギー源としてレーザーを第 1 候補とした。レーザー点火は非接触で点火可能であるため、燃焼による劣化や損耗が生じない。また、点火のタイミングと位置、数を任意に設定できる。このような理由からレシプロエンジンやガスタービンエンジンの点火源として期待されて多くの研究が行われており、それに伴いシステムの小型軽量化が著しく進んでいる<sup>22)</sup>。ADN 系をはじめとした液体推進剤の点火源

としても注目が集まっている<sup>6,23)</sup>が、点火に至った例は報告されておらず、加熱した触媒や酸水素火炎に噴射する方式<sup>6,24,25)</sup>を用いようとしているのが現状である。

そこで筆者らはレーザー点火の実現可能性を示すため、インジェクタで微粒化された液滴への点火を想定し、密閉容器内に設置した ADN 系イオン液体の液滴に対して、連続発振 (CW) レーザー、パルスレーザーの入射を行い、大気圧での反応の様子を観測した。レーザー照射時の様子を Fig.5 に示す。

CW レーザーを ADN 系イオン液体に入射すると、直ちに熱分解が開始し、熱分解における発熱量が高い組成 (ADN を多く含む組成, 反応性の高いアミン硝酸塩を含む組成), 添加剤を加えた組成においては、生成したガスが着火する様子が観測された<sup>26)</sup>。アミン硝酸塩は、アルキル基を有し炭素鎖が長い物質の反応性が高く<sup>21, 27)</sup>、添加剤としてはレーザーの吸収効率を向上させる色素<sup>28)</sup>や熱分解反応を促進させる銅化合物<sup>29)</sup>が有用であることが示された。2 W のレーザーで 0.6 s 程度で着火に至っており<sup>18)</sup>、数十 W オーダーのレーザーを用いることで、実際のスラストで要求される ms オーダーの着火遅れ時間を達成できることが予測される。

パルスレーザーを ADN 系イオン液体の液滴に直接入射すると、部分的なガス化反応が見られたが、液滴が直ちに飛散し、点火には至らなかった<sup>30,31)</sup>。一方で、ヒーターを用いて液滴を熱分解させ、そこにパルスレーザーを入射すると火炎が観測され、着火可能であることがわかった<sup>18)</sup>。熱分解反応は比較的低出力の小型 CW レーザーを用いても照射後直ちに開始することから、2 種類のレーザーを用いた非接触点火が期待できる。

上記はイオン液体を微粒化して使用するものである。一方で、イオン液体は溶媒を含まないことから表面張力や粘度が高い場合が多い。ADN/MMAN/Urea に関しては満足な微粒化を達成したが、今後様々な組成のイオン液体を取り扱うとインジェクタでの微粒化が困難な場合も想定されることから、その他の液滴供給方法についても検討をしておくことが必要である。そこで我々はインジェクタの代わりにカーボンウールへの浸透を利用した推進剤供給を考案した。カーボンウールにしみ込ませた ADN 系イオン液体に対して CW レーザーを照射すると EILPs の着火が確認され、本方式の実現可能性が示された<sup>32)</sup>。

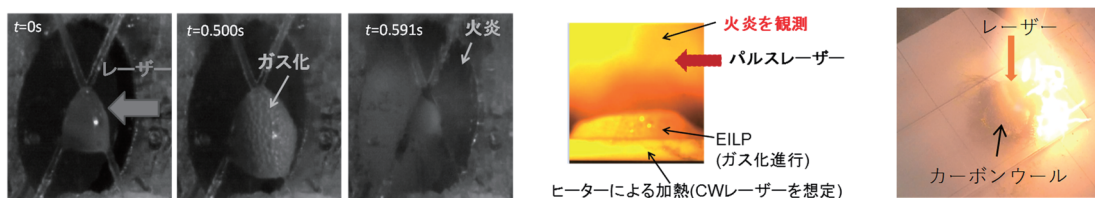


Fig.5 ADN 系 EILPs のレーザー点火の様子

左 : CW レーザーによる加熱点火<sup>29)</sup>

中 : パルスレーザーによる熱分解ガスの点火<sup>18)</sup>

右 : CW レーザーによるカーボンウール内の EILPs の点火<sup>32)</sup>



## 5. スラスタの概念設計

以上の点火試験結果より想定されたスラスタの概念図を Fig.6 に示す。(a)はインジェクタにより微粒化された EILPs に CW レーザーを照射し、加熱することで点火させるものである。遅れ時間を短くするためには高出力な CW レーザーの搭載が必要となるが、構造が単純である。(b)は微粒化させた EILPs を CW レーザーで熱分解させて可燃性ガスを発生させ、そこにパルスレーザーを入射して点火させるものである。2 段階のレーザー照射が必要となるが、CW レーザー、パルスレーザーともに要求される出力は小型レーザーでも達成可能なレベルであることから、小型軽量なシステムとなることが期待される。(c)、(d)は(a)、(b)の液滴供給をカーボンファイバへ浸透させることにより行う方式に変更したものである。EILPs の浸透のさせ方には検討の余地があるが、本方式はインジェクタを用いる場合と比較して微粒化の必要がなく、レーザーの照射位置を決定しやすい。現在は各点火方式について、インジェクタの改良および推進剤組成、レーザーの波長やエネルギー、雰囲気気圧などが着火性（着火の有無、遅れ時間）に及ぼす影響の定量化を進めており、今後はそれを反映させたスラスタの試作を行う予定である。

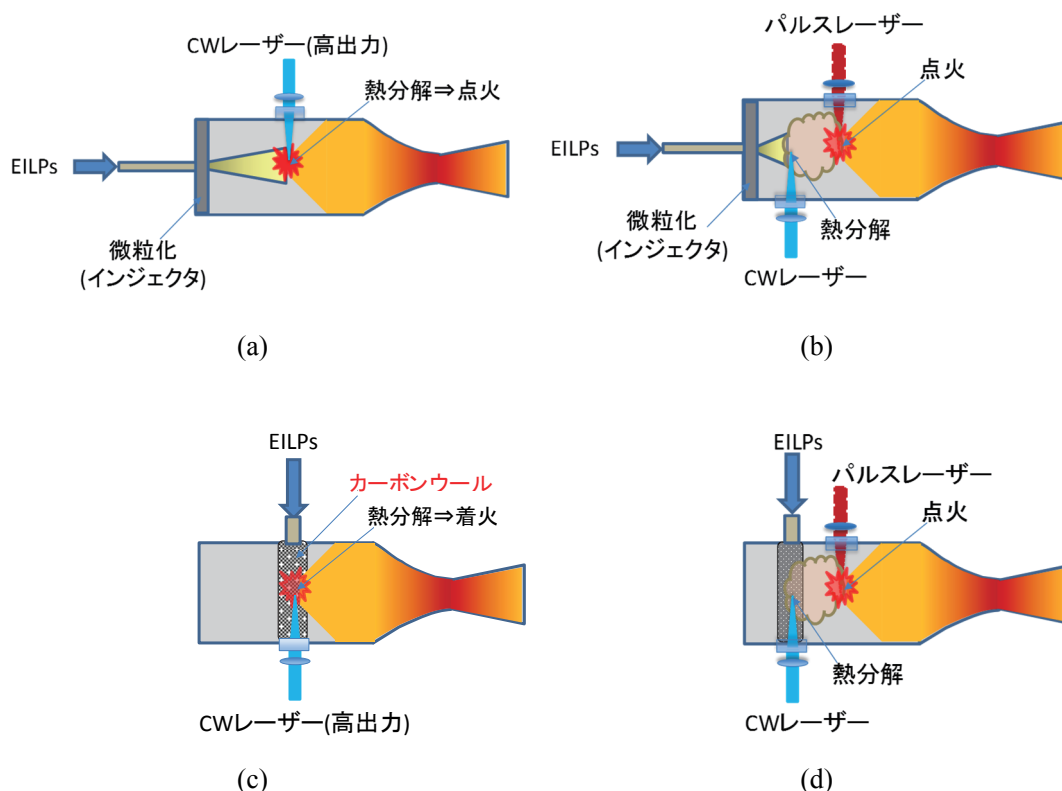


Fig.6 EILPs およびレーザー点火を適用したスラスタの概念図

## 6. まとめ

高エネルギー物質研究会では、様々な分野で研究が進むイオン液体、レーザー一点火の知見を導入することで、新しいスラスタの形を見出し、その実現可能性を示した。本スラスタは推進剤の低毒化ならびに小型軽量化を達成した次世代型宇宙推進システムとして期待される。今後はレーザー一点火に関するパラメータの取得ならびに定量化、インジェクタの改良を中心に検討を進め、小型スラスタの試作および実証試験を行う予定である。

## 参考文献

- 1) 羽生宏人, 産業化が加速する宇宙開発利用分野の技術開発動向, 火薬学会春季研究発表会, No.26 (2018).
- 2) J. C. Bottaro, P. E. Penwell, and R. J. Schmitt, 1,1,3,3-Tetraoxo-1,2,3-Triazapropene anion, a new oxy anion of nitrogen: The dinitramide anion and its salts, J. Am. Chem. Soc., 119 (1997), pp.9405-9410.
- 3) K. Anflo, T. A. Grönland, and N. Wingborg, Development and testing of ADN-based monopropellants in small rocket engines, Proc. 36th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference, AIAA-2000-3162 (2000).
- 4) Peter Friedhoff, Alisa Hawkins, John Carrico, Jonathan Dyer, and Kjell Anflo, On-orbit operation and performance of ammonium dinitramide (ADN) based high performance green propulsion (HPGP) systems, 53rd AIAA/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference, AIAA Propulsion and Energy Forum, AIAA 2017-4673 (2017).
- 5) 松永浩貴, 板倉正昂, 塩田謙人, 伊里友一朗, 勝身俊之, 羽生宏人, 野田賢, 三宅淳巳, イオン液体を用いた新規ロケット推進剤の研究開発, 宇宙航空研究開発機構研究開発報告, JAXA-RR-16-006 (2017), pp.1-8.
- 6) M. Negri, M. Wilhelm, C. Hendrich, N. Wingborg, L. Gediminas, L. Adelow, C. Maleix, P. Chabernaude, R. Brahmi, R. Beauchet, Y. Batonneau, C. Kappenstein, R. J. Koopmans, S. Schuh, T. Bartok, C. Scharlemann, U. Gotzig, and M. Schwentenwein: New technologies for ammonium dinitramide based monopropellant thrusters – The project RHEFORM, Acta Astronautica, 143 (2018), pp.105-117.
- 7) D. Lee, J. Kim, and S. Kwon, High performance microthruster with ammonium-dinitramide-based monopropellant, Sensors and Actuators A: Physical, 283 (2018), pp.211-219.
- 8) K. Anflo, T.A. Grönland, G. Bergman, M. Johansson, and R. Nedar, Towards green propulsion for spacecraft with ADN-based monopropellants, Proc. 38th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference, AIAA-2002-3847 (2002).

- 9) N. Wingborg, C. Eldsäter, and H. Skifs, Formulation and characterization of ADN-based liquid monopropellants, Proc. 2nd International Conference on Green Propellants for Space Propulsion, ESA SP-557 (2004).
- 10) A. P. Abbott, G. Capper, D. L. Davies, R. K. Rasheed, and V. Tambyrajah, Novel solvent properties of choline chloride/urea mixtures, Chem. Commun. (2003), pp.70-71.
- 11) S. Gordon and B. J. McBride: Computer Program for Calculation of Complex Chemical Equilibrium Compositions and Applications, NASA Reference Publication 1311 (1996).
- 12) H. Matsunaga, H. Habu, A. Miyake, Preparation and thermal decomposition behavior of ammonium dinitramide-based energetic ionic liquid propellant, Sci. Tech. Energetic Materials, 78 (2017), pp.65-70.
- 13) M. Itakura, H. Matsunaga, H. Habu, and A. Miyake, Eutectic mechanism of energetic ionic liquid propellants based on ammonium dinitramide, Proc. 30th International Symposium on Space Technology and Science (30<sup>th</sup> ISTS) (2015).
- 14) K. Shiota, M. Itakura, Y. Izato, H. Matsunaga, H. Habu, and A. Miyake, Effects of amide compounds and nitrate salts on the melting point depression of ammonium dinitramide, Sci. Tech. Energetic Materials, 79 (2018), pp.137-141.
- 15) H. Matsunaga, K. Katoh, H. Habu, M. Noda, and A. Miyake, Thermal behavior of ammonium dinitramide and amine nitrate mixtures, J. Therm. Anal. Calorim., Online first (2018), doi: 10.1007/s10973-018-7875-6.
- 16) N. Saunders and A. P. Miodownik: CALPHAD (Calculation of Phase Diagrams): A Comprehensive Guide, 1st Edition, Elsevier Science Ltd., (1998).
- 17) 塩田謙人, 伊里友一朗, 松永浩貴, 羽生宏人, 三宅淳巳, アンモニウムジニトラミド系イオン液体推進剤の組成探索と性能評価手法, 火薬学会 2018 年度春季研究発表会, No.31 (2018).
- 18) 松永浩貴, 伊東山登, 塩田謙人, 伊里友一朗, 勝身俊之, 羽生宏人, 野田賢, 三宅淳巳, 高エネルギー物質を基剤としたイオン液体推進剤の研究開発, 第 62 回宇宙科学技術連合講演会, 1N16 (2018).
- 19) 伊東山登, 伊里友一朗, 三宅淳巳, 羽生宏人, 速度論解析によるイオン性液体推進薬の組成評価, 宇宙航空研究開発機構研究開発報告, JAXA-RR-17-008 (2018), pp.27-34.
- 20) Y. Izato and A. Miyake, The decomposition pathways of ammonium dinitramide on the basis of ab initio calculations, J. Energetic Materials, 36 (2018), pp.302-315.
- 21) K. Shiota, Y. Izato, and A. Miyake, Reactivity analysis on ammonium dinitramide binary mixtures in condensed phase, Proc. The 12th European Symposium on Thermal Analysis and Calorimetry, PS1.038 (2018).
- 22) 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, 57 (2015), pp.112-119.



- 23) 古澤雅也, 北村飛翔, 勝身俊之, スラスタ用低毒 1 液推進剤を対象としたレーザー一点火特性の研究, 宇宙航空研究開発機構研究開発報告, JAXA-RR-17-008 (2018), pp.7-12.
- 24) K. Anflo, et al., Expanding the ADN-based monopropellant thruster family, 23rd Annual AIAA/USU conference on Small Satellite, SSC09-II-4 (2009).
- 25) M. Wilhelm, M. Negri, H. Ciezki, and S. Schlechtriem, Preliminary tests on thermal ignition of ADN-based liquid monopropellants, Acta Astronautica, Online first (2018) doi: 10.1016/j.actaastro.2018.05.057.
- 26) 松永浩貴, 羽生宏人, 野田賢, 三宅淳巳, 高エネルギーイオン液体の点火に関する検討, 宇宙航空研究開発機構研究開発報告, JAXA-RR-17-008 (2018), pp.1-6.
- 27) H. Matsunaga, K. Katoh, H. Habu, M. Noda, and A. Miyake, Preparation and thermal decomposition behavior of high-energy ionic liquids based on ammonium dinitramide and amine nitrates, Trans. JSASS Aerospace Tech. Japan, 16 (2018), pp. 88-92.
- 28) M. Hayata, K. Shiota, Y. Izato, H. Matsunaga, H. Habu, A. Miyake, Laser ignition and thermal property of ammonium dinitramide based energetic ionic liquid propellants by including chemical dyes, Proc. 31st International Symposium on Space Technology and Science, 2017-a-33 (2017).
- 29) 松永浩貴, 加藤勝美, 羽生宏人, 野田賢, 三宅淳巳, アンモニウムジニトラミド系高エネルギーイオン液体の点火に関する研究, 火薬学会 2018 年度秋季研究発表会, No.17 (2018).
- 30) 伊東山登, 羽生宏人, ADN を基剤とした非溶媒系イオン液体のパルスレーザー一点火検討, 宇宙航空研究開発機構研究開発報告, JAXA-RR16-006 (2017), pp. 21-29.
- 31) N. Itouyama and H. Habu, Investigating for ignition of ADN-based ionic liquid with visible pulse laser Proc. 31st International Symposium on Space Technology and Science, 2017-a-34 (2017).
- 32) 伊東山登, 羽生宏人, 連続光レーザー/浸透式インジェクタを用いたイオン性液体推進薬の着火制御, 火薬学会 2018 年度春季研究発表会, No.2 (2018).