

イオン液体を用いた新規ロケット推進剤の研究開発

松永 浩貴^{*1}, 塩田 謙人^{*2}, 伊里 友一朗^{*2,5}, 勝身 俊之^{*3}, 羽生 宏人^{*4,5}, 野田 賢^{*1}, 三宅 淳巳^{*5}

Research and development of new rocket propellants using ionic liquids

Hiroki Matsunaga^{*1}, Kento Shiota^{*2}, Yu-ichiro Izato^{*2},
Toshiyuki Katsumi^{*3}, Hiroto Habu^{*4,5}, Masaru Noda^{*1}, and Atsumi Miyake^{*2,5}

ABSTRACT

We have been focusing on use of ionic liquids as a new rocket propellant for a thruster based on high energetic materials in order to replace of hydrazine. Energetic ionic liquid propellants (EILPs) are expected to have high energy and low toxicity because EILPs are solvent-free and low-volatility liquid. On the other hands, there are many problems to development of EILPs due to characteristics of ionic liquids. The most important problem is ignition method. We are studying new method including laser ignition.

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

概 要

我々は高エネルギー物質を基剤としたイオン液体の推進薬への適用に着目した。イオン液体推進剤（EILPs）は溶媒を含まず低揮発性であることから、高性能低毒性推進剤として期待できる。一方、EILPsはイオン液体特有の物性により様々な要素技術の開発が必要とされる。特に重要な課題は点火手法である。我々はレーザー一点火をはじめとした新規点火手法の検討を進めている。

doi: 10.20637/JAXA-RR-16-006/0001

^{*} 平成 28 年 11 月 24 日受付 (Received 24 November, 2016)

^{*1} 福岡大学 工学部 化学システム工学科
(Department of Chemical Engineering, Fukuoka University)

^{*2} 横浜国立大学 大学院 環境情報学府・環境情報研究院
(Graduate School of Environment and Information Sciences, Yokohama National University)

^{*3} 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)

^{*4} 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)

^{*5} 横浜国立大学 先端科学高等研究院
(Institute of Advanced Sciences, Yokohama National University)

1. はじめに

宇宙空間におけるロケットや人工衛星の姿勢制御には、スラスタと呼ばれる小型エンジンが用いられる。1 液スラスタ用の燃料としては、ヒドラジンが汎用であるが、毒性の高さや蒸気の可燃性などにより、特殊作業の介在や漏えい防止の監視が必須であり、その運用性低さがロケット打上げコストの増大を招いている。宇宙機の運用性向上のため、推進剤の低毒化が強く求められている。

筆者ら高エネルギー物質研究会では、高エネルギー物質、特にアンモニウムジニトラミド (ADN, $\text{NH}_4\text{N}(\text{NO}_2)_2$)¹⁾を基剤とした推進剤によるヒドラジンの代替に着目した。ADN はヒドラジンと比較して毒性が低く、エネルギー密度が大きい物質であることから、実用化できれば推進剤の低毒化だけでなく、スラスタの小型・軽量化にもつながり、ロケット打上げコストの削減が期待できる。一方で ADN をはじめとした高エネルギー物質は、一般に室温で固体であり、何らかの方法で液体とする必要がある。現在の主流は、水やメタノールなどの溶媒を用いた液体化である²⁾が、筆者らは他の物質との共融による液体化に着目した。これは Deep Eutectic Solvents (DESs) と呼ばれるイオン液体の一種である³⁾。イオン液体は、低揮発性で室温付近の幅広い温度範囲で液体であるという特徴を持ち、一般には溶媒や電解質としての利用が期待されている。一方、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)」として適用できれば、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。

我々は ADN を基剤とした EILPs の実用化を目的として組成を探索し、ADN (融点 92-93 °C) にモノメチルアミン硝酸塩 (MMAN, 110 °C) と尿素 (135 °C) を混合すると室温で安定な液体となる組成が存在し、化学平衡計算上ではヒドラジンより高い性能を有することを報告した (Fig.1)⁴⁾。

EILPs はこれまでと全く異なる推進剤であるため、これを実用化することは推進剤の低毒化、高エネルギー化のみならず、スラスタに搭載される多くの要素技術を一新することを意味する。その中で特に重要となるのは EILPs の点火である。ヒドラジンを用いた現行の 1 液スラスタでは触媒による分解を採用しているが、EILPs は溶媒を含まない酸化剤と可燃剤の混合物であり、火炎温度の高い燃焼反応が起こる (平衡計算では 2650 K) ため、触媒を用いるのは困難である。そのためイオン液体に適した新たな点火方法が必要である。触媒に代わる点火様式としてはスパーク放電、レーザー、マイクロ波、放電プラズマなどが候補である。筆者らはその中で、レーザーを用いた点火を第一候補として選定した⁵⁾。レーザー一点火の大きな利点は推進剤とスラスタ材が非接触で点火可能なことである。これにより、推進剤との接触によるスラスタ材料劣化の防止 (長寿命化)、燃焼室と電気系統との隔離による安全なシステム構築が可能となる。推進剤への高エネルギー物質の適用、スラスタ

へのレーザー一点火の実装は世界中で注目が集まっており、EUにおける科学技術・イノベーション政策である Horizon 2020 でも重要課題として挙げられている⁶⁾。筆者が本年度参加したスウェーデン防衛研究所(FOI)主催の高エネルギー物質のワークショップ(New Energetics Workshop)でも関心の高いテーマであった⁷⁻¹⁰⁾。しかし、1液スラスタにおいて液体推進剤の点火に至った例はなく、基礎研究の積み重ねが必要な段階である。そこで筆者らは本年度、ADN系EILPsの点火を目標とし、EILPsの物性研究および液滴の着火性評価などにより、点火に適した条件を探索してきた。本稿では、ADN系EILPsのレーザー一点火に向けた研究開発状況について述べる。

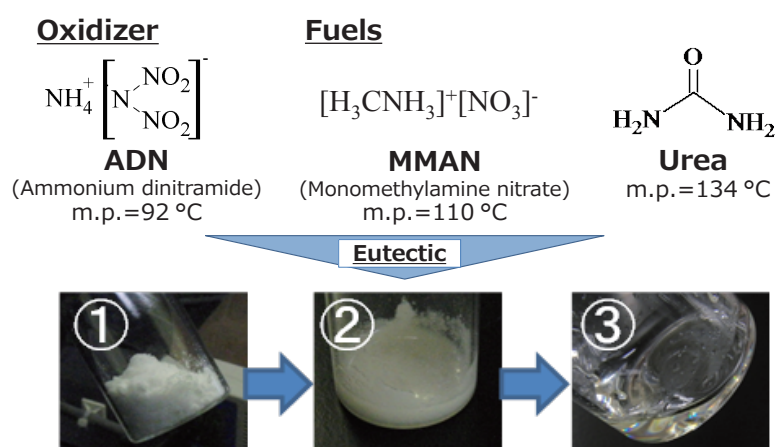


Fig.1 EILPs 調製の様子⁵⁾

2. ADN系EILPsのレーザー一点火に向けた研究

2.1 EILPsの物性研究

推進薬として使用するイオン液体には、基礎特性（低融点、高密度、低粘度など）、安全性（低感度）、貯蔵安定性（長期間安定）、推進性能（高エネルギー、高比推力）、毒性（低毒性）といった性質が優れていることが望まれる。EILPsのデザイン段階において、これらが予測できれば、要求される性質を有したEILPsを調製することが容易になる。昨年度までの化学平衡計算による推進性能予測、熱分析や量子化学計算によるADNと共融し、低融点イオン液体となる物質の種類や特性把握などの成果^{4,11)}を踏まえ、本年度は熱力学的なパラメータと化学的な分子間相互作用パラメータを組み合わせた予測式を用い、数点の熱分析試験からADNを含む任意組成の融点を予測可能になり、ADN/MMAN/尿素系では実験値とも概ね一致した。さらに、化学平衡計算による推進性能の計算結果と合わせることで、高性能、低融点なEILPsの組成探索を行うことができるようになった¹²⁾。

また、EILPsの着火性向上のため、添加剤の検討も進めている。添加剤の役割は、反応促

進（反応速度や発熱量の向上など）およびレーザー吸収率の向上（着色）である。本年度は熱分析，オープンカップ試験，分光分析などを通して添加剤の選定を進めた^{13, 14)}。

2.2 レーザー点火試験

レーザー点火には主に、光反応、ブレイクダウン、加熱といったメカニズムが挙げられる（Fig.2）。光反応による点火では、ある特定の波長のレーザーを照射することでその波長に吸収波長をもつ分子が選択的に励起され、励起された分子が解離してラジカルを生成し、燃焼反応が促進されて着火に至る。ブレイクダウンによる点火では、パルスレーザーをレンズなどで微小面積に集光するとブレイクダウンを起こしてプラズマを生成し、そこで生じる衝撃波をきっかけに点火に至る。加熱による点火では、レーザー（主に連続光レーザー）を照射して試料を加熱と熱分解や気化が起こって高温の可燃性混合気を形成し、それが着火する。

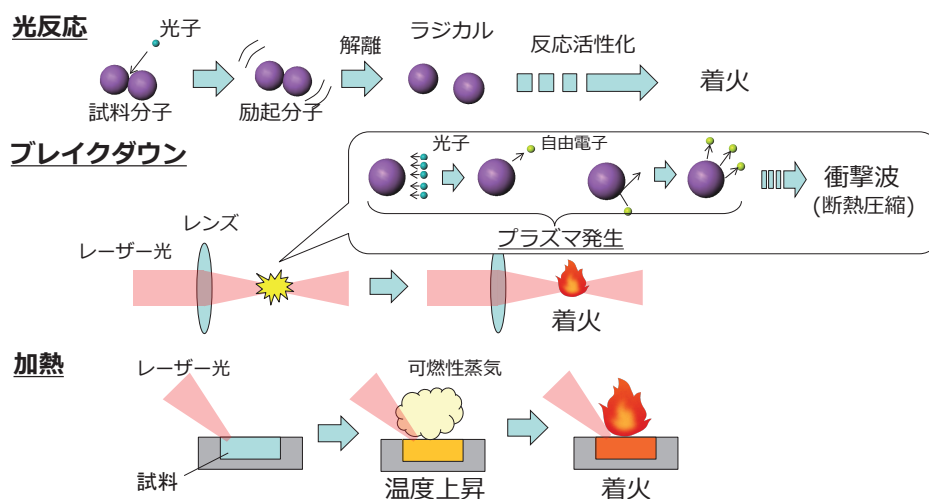


Fig.2 レーザーによる点火メカニズムの種類

1 液推進スラスタへの適用はどの方式でも実現に至っていないため、現在はそれぞれの様式の実現可能性を検討している。着火性については 2.1 で見いだされた組成について、Fig.3 に示すような密閉容器内で EILP 液滴へのレーザー照射を行い、高速度カメラによる観察、生成ガスの同定および圧力測定により評価を行っている。現在までにブレイクダウンによる点火では、パルスレーザー照射後ただちに液滴が飛散し、部分的にガス化する様子をとらえることができた^{15, 16)}。加熱による着火については、Fig.4 のような発光や圧力上昇を伴う反応（燃焼反応）が観測される EILP の組成が存在することがわかった¹³⁾。以上の検討により、EILP のレーザー点火が実現可能であることが示された。現在は着火メカニズムの解析、組成や入熱量といった着火条件の定量化、そして運用環境に近い雰囲気における反応挙動の観測を進めている。

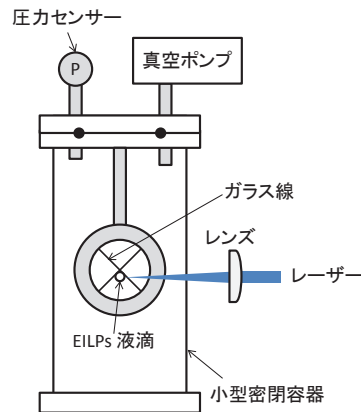


Fig.3 EILP 液滴のレーザー点火試験装置

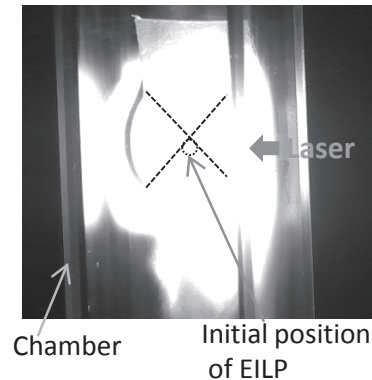


Fig.4 EILP 液滴点火の様子

3. まとめ

筆者ら高エネルギー物質研究会では、ヒドラジンに代わる液体推進剤として EILPs に着目し、実用に向けた基盤研究を進めている。EILPs の実用化により推進剤の低毒化、高性能化の実現だけでなく点火方式などのシステムの一新も図る。本稿では、特に重要な要素技術である点火について、現在の研究開発状況をまとめた。これまでの物性研究や着火性の評価から EILPs 調製の指針およびレーザー点火の実現可能性を示した。今後は着火条件の詳細を明らかにし、新点火システムを実装したスラスタの設計・製作を進める。

参考文献

- 1) 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.
- 2) 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 (2000).
- 3) 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.
- 4) 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), pp.1-10.

- 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高性能低毒性推進剤の研究開発, JAXA-RR-15-004 (2015), pp.1-8.
- 6) M. Negri, Replacement of Hydrazine: Overview and first results of the H2020 Project Rheform, Proc. 6th European Conference for Aeronautics and Space Sciences (EUCASS) (2015).
- 7) D. Fischer, T. M. Klapötke, J. Stierstorfer and N. Szimhardt, Approaches toward the replacement of lead containing primary explosives a challenge, Proc. New Energetics Workshop (2016).
- 8) N. Wingborg, ADN propellant development at FOI, Proc. New Energetics Workshop (2016).
- 9) H. Matsunaga, K. Shiota, Y. Izato, T. Katsumi, H. Habu, M. Noda, and A. Miyake, Development of ionic liquid propellants based on high energetic materials, Proc. New Energetics Workshop (2016).
- 10) M. Negri, C. Hendrich, M. Wilhelm, D. Freudenmann, H. K. Ciezki, L. Gediminas, L. Andlów, R. J. Koopmans, S. Schuh, C. Scarlemann, Y. Batonneau, R. Beauchet, C. Maleix, R. Brahmi, and C. Kappenstain, Ignition method of ADN-based liquid monopropellants, Proc. New Energetics Workshop (2016).
- 11) 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 (30th ISTS) (2015).
- 12) 塩田謙人, 早田葵, 板倉正昂, 伊里友一朗, 松永浩貴, 羽生宏人, 三宅淳巳, 高エネルギーイオン液体推進剤の燃焼性能予測に向けた研究, 第 7 回イオン液体討論会 (2016).
- 13) 松永浩貴, 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宇宙機用高エネルギー推進剤の研究開発, 第 7 回イオン液体討論会 (2016).
- 14) 早田葵, 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レーザー着火性におよぼす色素混合の影響, 平成 28 年度火薬学会秋季研究発表会 (2016).
- 15) 勝身俊之, Hydroxylammonium nitrate 系一液推進剤のレーザー点火に関する研究, JAXA-RR-15-004 (2015), pp.9-14.
- 16) 伊東山登, 羽生宏人, イオン液体系推進薬のパルスレーザー点火に関する検討, 平成 28 年度火薬学会秋季研究発表会 (2016).