

令和 5 年 6 月 5 日現在

機関番号：82645

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2018～2022

課題番号：18H01629

研究課題名（和文）宇宙機搭載用低温作動型推進系統合燃料電池及び水素キャリア新方式の産業応用の研究

研究課題名（英文）Integrated Fuel Cell System Aboard Spacecraft And Applications

研究代表者

川口 淳一郎（Kawaguchi, Junichiro）

国立研究開発法人宇宙航空研究開発機構・宇宙科学研究所・名誉教授

研究者番号：10169691

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 12,100,000円

研究成果の概要（和文）：宇宙機用液体推進剤を利用した燃料電池発電がシステムとして機能することが確認された。

亜酸化窒素の酸素改質を固体酸化物で行わせるSOFC燃料電池の発電実験を行った。燃料、酸化剤として、宇宙機搭載が可能な組み合わせである亜酸化窒素と加水エタノールを用い、改質器等を介さず直接燃料極に供給するシンプルな系で、実際に発電を実証できた。実証では、エタノール水混合溶液（エタノール25%）を室温（20℃）で気化させ、アルゴンをキャリアガスとして供給した。開回路起電力と電流密度は実用化に向けて良好であった。性能は電極触媒への燃料供給の最適化等によりさらに高めることが可能である。

研究成果の学術的意義や社会的意義

液相で輸送、貯蔵可能な、宇宙機搭載の酸化剤および燃料を用いた「液-液」燃料電池の実用性を確認できた。宇宙機用液体推進剤を利用した燃料電池発電が、比較的単純な構成でシステムとして機能することが確認された。非凍結性と推進性能、および発電性能の3重の機能の同時実現は、宇宙機において格別な意義をもつ。短時間に高電力の運用を行うために、過剰な電源系を装備させることを回避でき、とくに深宇宙におけるミッションを大きく拡張することにつながる。得られた知見から、バイオエタノールの採用で、脱炭素社会の実現をうながす水素キャリアとしての社会・産業応用へ通ずる。

研究成果の概要（英文）：Thought the project, it was confirmed and verified that the fuel system using both the propellant and the oxidizer onboard the spacecraft functions as a system. The solid oxide catalyzer is used for the reformation for obtaining oxygen from the oxidizer nitrous-oxide. And the SOFC (Solid Oxide Fuel Cell) experiment was performed. The fuel is the water added ethanol carried by the spacecraft as the propellant, which does not need to be reformed. The experiment vaporizes the ethanol at the room temperature and uses the Argon as a carrier gas. Open voltage and current density results obtained are satisfactory for the embodiment. The performance is expected to be enhanced by optimizing the fuel supply to the electrode.

研究分野：航空宇宙工学

キーワード：燃料電池 推進機関 亜酸化窒素 固体酸化物燃料電池 酸素改質 水素キャリア 宇宙機 宇宙探査機

様式 C-19、F-19-1、Z-19（共通）

1. 研究開始当初の背景

【解決する課題】

- ① 宇宙機や深海探査船で、重要イベントや緊急時に要求される瞬発的な大電力の需要をまかなうこと。しかるに通常の蓄電池では瞬時大電力の確保は困難であった。
 - ② 宇宙機や深海探査船では、酸素供給ができない環境にあり、燃料電池の作動流体を気体で輸送・保管することは困難。液体同士での燃料電池が期待されてきた。地上のシュルターや救難システムに共通する。しかし、かかる燃料電池は存在しない。
 - ③ 宇宙機では、燃料電池向けの作動流体を、推進機関向けの作動流体と別々に輸送・保管することは非効率である。また、通常宇宙機の推進機関向けの作動流体は低温下で凍結しやすいため、ヒーター電力に多くの電力が割かれ、電力供給を困窮させてきた。
- 最大の特徴は、液体で燃料側、酸化剤側の作動ガスを輸送できる、液-液型燃料電池であること。宇宙機では搭載容積の観点で、高密度の液体で輸送できることが非常に有利な条件となる。また、宇宙機では燃料、酸化剤液体を非凍結な組合せで得ることはヒーター電力の大幅な削減につながるため、搭載の推進機関を非凍結かつ低温での着火・燃焼性を得られることが大きな鍵となる。これらが成立すると推進機関と発電・電力機関を統合して構成することができる。酸化剤を液体で輸送できるため、地上でも、水中や坑道・シュルタ等地下空間での燃料電池の利用を可能とさせ、また水素の輸送形態を革新する可能性につながる産業応用の道を拓くものである。

2. 研究の目的

【目的】

- 研究の最大の特徴は、他に類をみない液体-液体での燃料電池の実用化である。
- 気体に比してはるかに大量の作動ガスを輸送でき、かつ宇宙機や深海探査船などの酸素供給のない密室ないし真空下での動力、とくに瞬発性の高い動力を提供すること。
- 常温・液体での保管・輸送が可能で、宇宙機、深海探査船、エネルギーの輸送性や充填性の確立されたインフラを利用し社会・産業応用に大きく貢献すること。
- 宇宙機においては、電力向けの作動流体を、推進機関向けの作動流体を別々に輸送することは非効率で、統合型推進/電力システムが有効で、これを構築する。
- 候補の燃料、酸化剤は低温で非凍結であり、宇宙機ヒーター電力を大幅に 30-50%削減すること。
- 発電、改質、非凍結性、推進性能など個々の要素開発に目途を得ており、実用化に向けたシステム開発がゴールである。併せて産業応用に向けたシステム検討を行うこと。

3. 研究の方法

【解決する方策】

- 液体同士の作動流体で、燃料電池システムを構築すること。
- かつ推進機関の燃料・酸化剤となり推進機関と共用、統合できること。
- 加えて低温下でも非凍結の流体で実現できること。
- 外惑星用宇宙機において推進系との統合が可能なアノード/カソード両側への作動ガスを液体で輸送する液-液型燃料電池の開発を目指す。
- 100W 級の電力 (28VDC 系) を 1~2 hours/week の使用頻度で 0.5~1 年間 (合計約 100 H) 供給することを想定する。

年度ごとに設定した研究方法は以下の通りである。

○ 2018 年度向け (当初初年度計画)

水和ヒドラジン燃料とし、四二酸化窒素 (N₂O) (ないしガスとしては二酸化窒素) を酸化剤とする組合せは、起電力確認を先行して確認できていた構成法であり、当初の非凍結で推進機関を構成できるシステムとして、連続改質法の開発を目指すこととした。水和ヒドラジンのイリジウム触媒による水素改質装置を製作して分解率の向上をめざした。改質器の流路は、最初は直線状、次の段階で、3D プリンタによる 3D らせん流路をもつ装置へとステップアップをはかることとした。高濃度 N₂O は蒸気圧が高いので、両者を組み合わせる燃料電池セルは圧力差をなくす工夫を要する。水素改質率が高いことが装置開発の成功であるが、改質後ガスにアンモニアが残留する場合は、生成物である硝酸アンモニウムの除去検討に進む計画だった。

○ 2019 年度向け

高分解率を目指す場合、分解して得られる高温酸素により、担持された触媒がはがれて喪失してしまうために、同じ改質器のままでは再使用ができなくなる課題が見いだされた。触媒を用いて、起動時のエネルギー消費を低下させる方法を再吟味することを目指した。新起動方式を用い

た改質装置を試作し、機能試験を実施したのち、ダイレクトメタノール燃料電池を組み合わせる燃料電池として要求される亜酸化窒素量を実験で確認することを目指すことにした。ダイレクトメタノール燃料電池は、地上向けではありながら、燃料として実際に推進機関として利用できるため、本研究課題で掲げる、統合型電力・推進機関に関わる要求をすべて満たすことができる。

○ 2020 年度向け

固体酸化剤型燃料電池を本亜酸化窒素連続改質器と複合させてシステム構築をはかるべく、改質性能を計測する実験を行う。亜酸化窒素を分解させ、生成される酸素量を供試体を製作して真空槽内で実験を行う。

実用機には、より推進機関に適した、エタノールを用いたシステムが望ましく、燃料電池としては高分子交換膜での発電は難しく、構成を固体酸化剤（セラミック）型燃料電池を用いた形態へ変更する。そのためのシステム検討を開始する。固体燃料電池セル材料を入手し試験準備を進めることとした。

○ 2021 年度向け

固体酸化物燃料電池セル(SOFC)に、ガス化させた燃料たるエタノールを供給させ、亜酸化窒素の連続酸素分解反応器（酸素改質器）を用い、2液系として動作する固体酸化物型の燃料電池を試作・開発する。宇宙機搭載の電力システムを構築する基本要件を完了させることとした。固体酸化物セルを介して燃料と反応を行わせる評価を行うこととした。そのために東北大と研究分担を行う。

○ 2022 年度向け

SOFC 燃料電池としての基本性能にメドが得られたため、実際に燃料との持続的な反応をおこさせた発電試験を予定した。運転に伴って発生する熱を持続的な酸素改質に結び付けることと、燃料側で発生しうる炭素の除去が課題である。改質で得られた酸素の一部を燃料側に供給することで、燃料側電極上の炭素を炭酸ガスとして取り除く方式について、実験的な検討を進めていく。触媒での分解をトリガーとした酸素改質器は、とくに SOFC 燃料電池の起動に有効であり、継続して小型改質器にかかわる基礎試験を継続する。

亜酸化窒素 100ml /min で運転する場合、50 時間運転では、亜酸化窒素 0.6kg、エタノール 0.1kg のシステムとなり、7kWh の発電性能が得られる。これは深宇宙探査機での、12V 140W システムを 30 分間/日、100 日間運用する規模であって、これを目標とする実用的なシステムの検討を行うこととした。

水素キャリアとして、宇宙機搭載用低温作動型推進系統合燃料電池の開発を継続しつつ、バイオエタノールとして利用する実用産業応用性も検討することとした。

4. 研究成果

以下に年度を追って、研究成果をまとめた。

○ 2018 年度

3D プリンタで製作完了していたヒドラジン改質器を用い、外部熱源を併用してアンモニアまでも分解させる連続水素改質試験を実施した。計画したように温度上昇にともなって水素生成率はたしかに向上したが、未分解のアンモニアの発生がどうしても避けられず、加えて、この組み合わせでは、燃料と酸化剤ともに猛毒の毒性が残り、これが実用化の壁になって残る困難さが明らかになった。

このため、この課題を根本的に克服する方策を再検討し、逆方針を採用し、酸化剤の連続酸素改質に置き換える方式の予備試験を実施した。試験では、まず触媒を用いて、ほぼ 100%の効率で亜酸化窒素(N₂O)を分解させることに成功した。亜酸化窒素は純無毒で凝固点も十分低く、少なくとも触媒を用いて課題の要件を満たすことができるとの感触を得た。

当初の方針での大きな課題は、このヒドラジンと四二酸化窒素の組み合わせでは、燃料電池反応で、硝酸アンモニウムが発生し、その結晶が燃料電池内に析出してくることであったが、これを根本的に回避する方策に道を開いた。触媒を用いて、ほぼ 100%の効率で亜酸化窒素を分解させることに成功した。亜酸化窒素の触媒分解は、低温下では医療分野で実用化しており実用性も高い。また亜酸化窒素は純無毒で凝固点も十分低く、少なくとも触媒を用いて課題の要件を満たすことができるとの感触を得た。少なくとも、当初は解決すべき課題として掲げてこなかった、無毒の酸化剤を連続改質することが可能となった。

○ 2019 年度

亜酸化窒素(N₂O)の連続酸素改質器で得られたガス酸素(GOX)を使い、ダイレクトメタノール燃料電池(DMFC)での連続運転が可能であることを実証した。事前の酸素要求量の推定値では、80W に対して 0.35NL/min であったが、結果は、0.4NL/min であり、システムの機能を定量的に検証することに成功した。燃料をメタノールとした場合、実際に推進機関としても利用可能な、液状の燃料と酸化剤を用いて、燃料電池を駆動することに成功したことになる。よって、この方式がミニマムの最低限の宇宙機での利用への要件を備えていることを確認できた。実際に亜酸

化窒素(N20)に、連続酸素改質器を装備し、新たに開発した起動装置を組み合わせることで、N20を繰り返し連続改質させる実用化に道を開いた。

○ 2020年度

燃料のエタノールへの切り替えと、高分子電解膜から固体酸化物セルへ転換して発電実験にとりかかると、まず連続酸素改質器の性能向上(大流量化)に着手した。正確な分解温度情報を獲得すべく、改質させたガスのサンプリングを行い、チョークさせた改質器の推力を計測して、改質器内温度を計測するための小型の試験スタンドを製作して、真空槽内で試験運転を行った。また、固体酸化物セルでの発電試験に使用する固体燃料電池セル材料の手配を行い、試験準備を進めた。

エタノールを用いた発電試験は、燃焼試験と位置づけられ、安全審査などを経て専用の施設・設備を用いて実施せざるをえない。本年度は、コロナ禍により、実験施設や設備の利用に大きな支障があり、固体酸化物セルを用いた実験は見送った。しかるに、固体燃料電池セル材料の調達を完了した。

○ 2021年度

当初のヒドラジン系の検討から、より安全性の高い無毒型の機関への検討を進め、昨年度までに亜酸化窒素(N2O)を酸化剤とし、エタノールを燃料とする構成での基礎試験を完了した。同機関は、亜酸化窒素について触媒を用いた改質器(起動後は自己発熱で運転され電力を要しない)を使用し、高分子交換膜による燃料電池形式であった。しかしシステム構成上、大きな発熱を伴いつつも排熱を行うという矛盾があった。

本年度から、亜酸化窒素の酸素改質を、SOFC燃料電池へ供給させ、得られた熱を積極的に利用する形態へと転換する予備試験を実施した。

N2O/エタノール推進剤をSOFC燃料電池に使用することを想定し、酸化剤N2Oで安定したSOFC燃料電池反応が行えるか検討・評価した。模擬燃料電池下で酸素発生量の確認を行った。800℃では特別な触媒を用いずとも安定した酸素分圧が得られた。N2O濃度が低濃度の場合には完全分解時の酸素分圧に近く、高濃度では約半分程度であることが確認された。LSCF/GDC/LSCFの電気化学セルの作用極にN2O-N2を、対極に空気を導入した際のセルの電気化学インピーダンスを測定し、10% N2Oで $0.06 \Omega \text{cm}^2$ 、100%N2Oで $0.03 \Omega \text{cm}^2$ であり、電極反応抵抗も十分小さいことから、N2Oを直接導入してもLSCFが空気極として十分に機能することを確認した。

SOFC燃料電池において、亜酸化窒素を供給し、燃料側との反応熱を用いた連続酸素改質の性能確認を行った。その結果、改質で得られる酸素分解率が十分に高いこと、またセルの電気化学インピーダンスが十分に小さいことが確認できたことから、SOFC燃料電池を構成する基本要件が確認できたといえる。電極反応抵抗も十分小さく、亜酸化窒素がSOFC用の酸素発生源として利用できる可能性が十分にあることが確認できた。なお、燃料たるエタノールは、水素キャリアとしては、ヒドラジンに劣ることはなく、バイオエタノールとして社会利用する上でも有力な運送方式を提供でき、研究課題とも整合する。

○ 2022年度

亜酸化窒素の酸素改質を固体酸化物で行わせるSOFC燃料電池の発電実験を行った。宇宙機の推進機関への適用を想定し、エタノール水混合溶液(エタノール25%)を室温(20℃)で気化させ、Ar(アルゴン)をキャリアガスとして供給した。水を加えることは、推進機関としての性能を落とすことにつながらず、むしろ安定な発電性能と燃焼性能を得ることに貢献する。十分に低温での非凍結性の維持が可能であり、搭載電力を大幅に低減できる。また、酸化剤たる亜酸化窒素の供給系についても、全く新しい様式の収容形態を見出し、米国に知財出願を行った。バイオエタノールの採用で、水素キャリアとしての産業・社会応用に道が開かれた。

燃料、酸化剤として、宇宙機搭載が可能な組み合わせである、亜酸化窒素と加水エタノールを用い、実際に発電を実証できた。開回路起電力は0.91Vであったが、エタノールを改質器等を介さず直接燃料極に供給するシンプルな系と考えれば良い値である。試験は2回行ったがいずれも同等の結果が得られている。発電時の電流密度は端子電圧0.7Vで 0.24Acm^{-2} であった。エタノール改質用の触媒の配置や、電極触媒への燃料供給の最適化等によりさらに高めることができる。

本課題で宇宙機用液体推進剤を利用した燃料電池発電が、システムとして機能することが確認された。非凍結性と推進性能、および発電性能の3重の機能の同時実現は、宇宙機において格別な意義をもつ。短時間に高電力の運用を行うために、過剰な電源系を装備させることを回避でき、とくに深宇宙におけるミッションを大きく拡張することにつながる。得られた知見は、脱炭素社会の実現をうながす水素キャリアとしての社会・産業応用へ通ずる。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Y Takao, O Mori, J Kawaguchi	4. 巻 179
2. 論文標題 Analysis and design of a spacecraft docking system using a deployable boom	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Acta Astronautica	6. 最初と最後の頁 172-185
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.actaastro.2020.10.031	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 久保 勇貴, 梅田 啓右, 茂木 倫紗, 佐伯 孝尚, 川口 淳一郎	4. 巻 69, 2
2. 論文標題 汎用IoTモジュール開発と同報型自律分散ヒーター制御システムへの適用	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 日本航空宇宙学会論文集	6. 最初と最後の頁 68-71
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.2322/jjsass.69.68	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Takao, Yuki, Kawaguchi, Jun'ichiro	4. 巻 Vol.42
2. 論文標題 "Optimal Interplanetary Trajectories for Spinning Solar Sails Under Sail-Shape Control"	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Guidance, Control, and Dynamics	6. 最初と最後の頁 2541-2549
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.2514/1.G003776	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する
1. 著者名 畑井 啓吾, 池田 博英	4. 巻 5
2. 論文標題 低毒自己着火二液推進の燃料選定に関する研究	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 日本航空宇宙学会論文集	6. 最初と最後の頁 174-180
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 3件）

1. 発表者名 TM Padovan, J Kawaguchi
2. 発表標題 Heater-Free, Lowest Power Consumption & Highest Volume Availability Gas-Generator Propulsion System-Most Suitable for Micro to Nano Satellites
3. 学会等名 Small Satellite Conference (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 八代 圭司、川口 淳一郎、川田 達也
2. 発表標題 液化推進剤を利用した極限環境用 SOFC
3. 学会等名 第30回SOFC研究発表会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Y Sato, S Fujita, T Kuwahara, Y Shibuya, K Kamachi, J Kawaguchi
2. 発表標題 Design and Evaluation of Thruster Control Approach for Micro-satellite ALE-2
3. 学会等名 2020 IEEE/SICE International Symposium on System Integration (SII) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 川口淳一郎, 濱田信光, 久保勇貴, 佐伯孝尚
2. 発表標題 小型衛星向け高容積比推力・高密度コールドガススラスタと, IoT・無線独立分散ヒータ制御パッチの実用化
3. 学会等名 第20回宇宙科学シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 大橋郁, 川口淳一郎, 久保勇貴
2. 発表標題 「超小型人工衛星用高密度コールドガスジェット推進機関の開発」
3. 学会等名 第29回アストロダイナミクスシンポジウム(国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 松本 純, 池田博英 (H2018 研究分担者), 大橋 郁, 川口淳一郎
2. 発表標題 亜酸化窒素を用いた1液式スラスタの性能評価
3. 学会等名 第59回 航空原動機・宇宙推進講演会
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計2件

産業財産権の名称 特許権	発明者 川口淳一郎	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、PCT/JP2020/021878	出願年 2020年	国内・外国の別 外国

産業財産権の名称 流体の供給装置	発明者 川口淳一郎	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、PCT JP2019022980	出願年 2019年	国内・外国の別 外国

〔取得〕 計4件

産業財産権の名称 Jet System	発明者 O Mori, J Kawaguchi, T Chujo	権利者 宇宙航空研究開 発機構
産業財産権の種類、番号 特許、US Patent 10,883,449	取得年 2021年	国内・外国の別 外国

産業財産権の名称 特許権	発明者 J. Kawaguchi	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、US Patent 10,870,502	取得年 2020年	国内・外国の別 外国

産業財産権の名称 液化ガスを排出・供給する装置・システムおよび方法	発明者 川口淳一郎	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、PCT JP2019030704	取得年 2019年	国内・外国の別 外国

産業財産権の名称 流体を加圧し供給する装置、システム、および方法、PCT JP2014075333, 2014.10.16	発明者 川口淳一郎	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、6289652	取得年 2018年	国内・外国の別 外国

〔その他〕

<p>特許査定済みの公開内容： 流体を加圧し供給する装置、システム、および方法 https://patentscope2.wipo.int/search/ja/detail.jsf?docId=W02016046924&cid=JP1-K9MLY2-36546-1 川口研究室(JAXA) ホームページ 現在リフォーム中 http://www.hayabusa.isas.jaxa.jp/kawalab/?portfolio=695&lang=ja 特許査定済みの公開内容： 流体を加圧し供給する装置、システム、および方法 https://patentscope2.wipo.int/search/ja/detail.jsf?docId=W02016046924&cid=JP1-K9MLY2-36546-1 川口研究室(JAXA) ホームページ http://www.hayabusa.isas.jaxa.jp/kawalab/?portfolio=695&lang=ja 特許査定済みの公開内容： 流体を加圧し供給する装置、システム、および方法 https://patentscope2.wipo.int/search/ja/detail.jsf?docId=W02016046924&cid=JP1-K9MLY2-36546-1</p>

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	川田 達也 (Kawada Tatsuya) (10271983)	東北大学・環境科学研究科・教授 (11301)	
研究分担者	八代 圭司 (Yashiro Keiji) (20323107)	東北大学・環境科学研究科・准教授 (11301)	
研究分担者	池田 博英 (Ikeda Hirohide) (10770729)	国立研究開発法人宇宙航空研究開発機構・研究開発部門・研究領域主幹 (82645)	削除：2019年8月28日
研究分担者	岡屋 俊一 (Okaya Shunichi) (50724241)	国立研究開発法人宇宙航空研究開発機構・宇宙科学研究所・参与 (82645)	削除：2018年10月18日
研究分担者	松本 純 (Matsumoto Jun) (60791887)	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 (82645)	削除：2018年8月9日

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------