

バイオアルコールの燃焼に関する研究
—メタノールおよびエタノール同軸火炎の吹飛び特性—

堤 明正

総合研究大学院大学
物理科学研究科
宇宙科学専攻

要旨

化石燃料を代替する有力な燃料としてバイオ燃料が注目されており、バイオ燃料の新しい精製プロセスや燃焼応用技術に関する研究が実施されている。一般にバイオ燃料とは化石燃料以外の自然由来燃料を指す。トウモロコシまたは大豆などの栽培作物から精製されるバイオエタノールおよび、植物油または廃食用油などから精製されるバイオディーゼルなどが現在の代表的なバイオ燃料である。バイオマスに植物を用いるバイオ燃料はカーボンニュートラルの観点から優れた代替燃料であるが、培作物をバイオマスに用いる場合、当該食物価格の高騰を招くなどデメリットがある。化石燃料が発見される以前、人類の発展を支えるエネルギーは薪または木炭といった木質バイオマスによってまかなわれてきた。日本でも木炭に関しては年間 290 万トン（1940 年）、薪に関しては年間 1400 万トン（1943 年）の生産量を記録している。しかし現在では森林バイオマスの利用率は年々低下の一途をたどっており、安い価格の海外産木材に押され木材需要の 80%ほどを輸入に頼っている。このような状況にあっても依然として日本には多量の森林資源があり、二酸化炭素吸収源として有用である。良質な森林を維持するためには定期的な間伐作業が必須であるが、国内産木材需要減が原因で森林整備の動機がなく、森林の荒廃が指摘されている。木質バイオマス由来燃料の応用範囲を広げていくことは良質な木材生産および森林維持に直結する。また現在、化石燃料のほとんどは中東を始めとする海外産である。エネルギー・セキュリティの観点からも、資源を国内で調達することは重要である。バイオメタノールは廃棄木質バイオマスから容易に精製することができ、日本の風土に適したバイオ燃料である。以上のようにメタノールおよびエタノールはバイオ燃料として利用価値があるが、熱分解過程や火炎温度、層流燃焼速度など理想化された系における基礎燃焼特性が研究されているのみで、実用燃焼器に応用可能な研究例はない。本研究はメタノールおよびエタノール火炎の吹飛び・浮上り現象を考察し、実用燃焼器の運転可能範囲の決定などに有用な耐消炎性能に関する知見を得ることを目的に行うもので、本論文は以下の 5 章から構

成される。

第 1 章では最近のバイオ燃料の動向など本研究の背景を述べる。また拡散燃焼研究において一般的に用いられる対向流火炎および同軸火炎を概説し、それらによるメタノールおよびエタノールの既往研究について述べる。本研究での観察対象である同軸火炎の安定・不安定性および同軸火炎基部の物理化学に関しても概説する。章末でメタノールおよびエタノールの基本物性ならびに基礎燃焼特性を述べる。

第 2 章では本研究の目的および手法を述べる。本研究の目的はメタノールおよびエタノールの燃焼に適用可能な詳細化学反応機構を決定し、それを用いて火炎基部の様態を明らかにすること、ならびにメタノールおよびエタノール同軸火炎の消炎現象を考察し、その差異の要因を明らかにすることである。また、同火炎の安定燃焼範囲も明らかにする。現在、低級炭化水素やアルコールの燃焼への適用を謳った詳細化学反応機構が数種類提案されている。それらのうち、dme2000, dme2007, konnov2005, marinov, および sandiego2014 を検討した。それぞれの反応機構を用いて CHEMKIN PREMIX によりメタノールおよびエタノールの層流燃焼速度を計算し、既往の層流燃焼速度実験値と比較した。その結果、dme-2007 を用いて計算した燃焼速度が最も妥当であった。

第 3 章では実験結果および数値計算結果の比較を行う。dme-2007 を用いてメタノールおよびエタノール 2 次元同軸火炎を計算するとともに、同軸火炎の火炎温度および OH ラジカル分布を 25.4mm の R 型熱電対および平面レーザ誘起蛍光法 (Planar Laser Induced Fluorescence, PLIF 法) によりそれぞれ計測し、計算結果および実験結果を比較した。その結果、dme-2007 はメタノールおよびエタノール 2 次元同軸火炎を正しく再現できることを確認できた。第 2 章で示した層流燃焼速度の結果も総合的に踏まえ、DME2007 がメタノールおよびエタノールの燃焼に適用可能な詳細化学反応機構であると判断する。次に吹飛びに関して実験結果、および DME2007 を用いた数値計算結果を比較する。燃料成分としてメタノール分率 50%・窒素分率 50%, エタノール分率 50%・窒素分率 50%, メタノール分率 60%・窒素分率 40%, およびエタノール分率

40%・窒素分率 60%の同軸火炎の吹飛びまたは浮上り限界を、周囲空気の流速を変化させることにより調べた。メタノール分率 60%・窒素分率 40%、およびエタノール分率 40%・窒素分率 60%は当量比 1 での断熱火炎温度がおよそ 2200K と等しくなるように設定した混合分率である。同様の混合気を対象に、種々の空気流速で DME2007 を用いて 2 次元火炎計算を行った。安定燃焼範囲に関する実験では、メタノール火炎では浮上り火炎を形成することなく吹飛びに至ったが、エタノール火炎では浮上り火炎を形成後、周囲空気によって吹飛びに至った。メタノール火炎の吹飛び限界燃料流速はエタノール火炎の浮上り限界燃料流速を若干上回った。DME2007 を用いた 2 次元火炎計算では、ある一定の空気流速で火炎温度分布が維持されず下流に遷移する現象が見られた。この空気流速は、それぞれの混合気における吹飛び・浮上り空気流速実験値とよく一致しており、このことは 2 次元火炎計算によってメタノールおよびエタノールの吹飛び・浮上り限界を見積もることが可能であることを示している。

第 4 章ではメタノールおよびエタノール消炎現象の差異を考察する。エタノール分率 50%・周囲空気流速 15cm/s の火炎を対象に数値計算結果を精査したところ、リム上部に未燃の燃料および酸素からなる混合気が存在することが確認された。そこで **mixedness** を用いてリム上部の予混合性の定量的評価を試みた。**mixedness** とは燃料および酸化剤の混合強度を表すものである。その結果、解析を行った種々の燃料濃度および空気流速の火炎全てで、リム上部において予混合気が存在することが確認された。次いで火炎基部に存在する化学種濃度の精査し、リム上部には未燃予混合気、および下流の火炎から発生した既燃ガスが存在していることを示した。この混合気が持ちうる 1 次元層流燃焼速度を「潜在燃焼速度」と定義し、燃料種類、燃料濃度、および周囲空気流速 が異なる場合での潜在燃焼速度の変化を体系的に調査した。まず燃料濃度が異なる条件で、比較的吹飛びに近い状況の火炎を考察し、その差異が潜在燃焼速度によって説明されることを示した。次に燃料種類が異なり、潜在燃焼速度が比較的近い状況の火炎を考察し、そのような場合の吹飛び現象の差異は火炎位置の違いによる周囲空気流速の影響で説明ができることを示した。

第 5 章では本論文を総括する．本研究ではメタノールおよびエタノールの燃焼に適した詳細化学反応機構を決定した．また，火炎基部での予混合気を定量的に評価し，潜在燃焼速度の概念を導入することで，燃料種類および燃料濃度による吹飛び現象の差異を説明した．本研究で示した潜在燃焼速度の概念は一般的な炭化水素燃料にも応用可能なものであり，それらの安定燃焼範囲を数値計算によって見積もることが可能であることを示した．

目次

第1章 序論.....	1
1.1 はじめに.....	1
1.1.1 日本のエネルギー事情.....	1
1.1.2 航空宇宙産業分野におけるバイオメタノールの利用可能性.....	5
1.2 拡散燃焼研究で用いられる火炎および燃焼形態.....	8
1.2.1 対向流火炎.....	8
1.2.2 噴流拡散火炎.....	9
1.3 同軸流拡散火炎の消炎現象.....	10
第2章 研究目的と手法.....	12
2.1 メタノールとエタノール.....	12
2.1.1 物性.....	12
2.1.2 過去の研究.....	12
2.2 メタノールおよびエタノール燃焼の詳細化学反応機構.....	14
2.2.1 詳細化学反応機構の概要.....	14
2.2.2 メタノールおよびエタノール燃焼の最適な詳細化学反応機構.....	15
2.3 実験.....	20
2.4 数値計算.....	24
第3章 実験結果および数値計算結果の比較.....	27
3.1 火炎温度およびOHラジカル分布.....	27
3.2 吹飛び.....	38
3.3 下流の火炎構造.....	42
第4章 メタノールおよびエタノール拡散火炎の吹飛び現象を支配する要因	45
4.1 拡散火炎基部の予混合性.....	53
4.2 吹飛び現象の考察.....	53
4.2.1 潜在燃焼速度.....	53

4.2.2	燃料濃度が異なる火炎の吹飛び現象.....	66
4.2.3	燃料種類が異なる火炎の吹飛び現象.....	68
第 5 章	総括.....	69
参考文献		
付録		
謝辞		

第1章 序論

1.1 はじめに

1.1.1 日本のエネルギー事情

日本におけるエネルギー消費量は家庭や一般オフィス業務などの民生部門、および運輸部門での増加が大きく、2012 年度では 1973 年度と比較して民生部門においては 2.4 倍、運輸部門においては 1.8 倍に増加している^[1]。家庭用および業務用の電力需要も増加しており、電力消費量は 2011 年度では 1970 年度と比較して約 460 TWh から約 1050 TWh と約 2.3 倍になり、最終エネルギー消費のうち 23.1 %を占める^[2]。このように日本は膨大なエネルギーを消費しているが、一次エネルギー（原油や天然ガスなどの化石エネルギー、バイオマスや水力などの再生可能エネルギー、および原子力エネルギー）として供給されるエネルギー資源の国内自給率は、2011 年度では原子力を含めなければ 4.4 %にすぎず、原子力を国産エネルギーとした場合でも 19.5 %であり^{[1],[2]}、これは主要先進各国と比較して極めて低い水準である。このことは日本が化石燃料資源に恵まれていないことを端的に表している。

一方で日本は天然ガスなどの石油代替エネルギーの導入、および新エネルギー開発に取り組んでいる。一次エネルギーに占める石油の割合は 1973 年度においては 75.5 %であったが、2010 年度では 40.0 %まで削減された^[3]。しかし 2011 年 3 月の東日本大震災後の原子力発電所長期停止により、2013 年 9 月には国内発電量に占める原子力の比率が 0 %となった。減少分を補うために火力発電所の稼働率が上昇し、震災前に約 6 割であった火力発電比率が約 9 割となり、火力発電の燃料調達コストおよび CO₂ 排出量が増加している。化石燃料への依存度が増大することにより 2012 年度のエネルギー自給率が 6.0 %まで落ち込むなど、エネルギー供給はさらに脆弱になっている。2013 年は原油の 83 %、LNG の 30 %を中東地域に依存するなど^[3]結果的に資源供給国が偏ることとなり、現在の状況では中東地域の政情が不安定化した場合に日本のエネルギー供給が大きな影響を受ける可能性がある。

これらの課題（エネルギー自給率の向上、火力発電の燃料調達コスト抑制、

および CO₂ 排出量の削減)の解決策として再生可能エネルギー利用のさらなる拡大が積極的に検討されている。バイオマスなどの再生可能エネルギーの導入拡大は新しいエネルギー関連の産業創出および雇用拡大の観点からも重要であり、地域活性化に寄与することも期待されている^[2]。

2010 年に定められた第 3 次エネルギー基本計画では、2030 年に向けた目標としてエネルギー自給率および化石燃料自主開発比率を倍増して自主エネルギー比率を約 70 %とすること、また、電源構成に占める原子力および再生可能エネルギー由来の電源比率を約 70 %とすることなどが記載されていた^[3]。2014 年に定められた第 4 次エネルギー基本計画では、再生可能エネルギーに関しては「2013 年から 3 年程度、導入を最大限加速していき、その後も積極的に推進していく。そのため、系統強化、規制の合理化、低コスト化等の研究開発などを着実に進める。このため、再生可能エネルギー等関係閣僚会議を創設し、政府の司令塔機能を強化するとともに、関係省庁間の連携を促進する」と記載されている^[4]。東日本大震災による影響が流動的であることから各電源の導入数値目標が示されない中、再生可能エネルギーを「これまでのエネルギー基本計画を踏まえて示した水準（2020 年に 1414 億 kWh, 2030 年に 2140 億 kWh）を更に上回る水準」で導入することが明記されている。同計画において再生可能エネルギーは「温室効果ガスを排出せず、国内で生産できることから、エネルギー安全保障にも寄与できる有望かつ多様で、重要な低炭素の国産エネルギー源」であり、中でも木質バイオマスは「我が国の貴重な森林を整備し、林業を活性化する役割を担うことに加え、地域分散型のエネルギー源としての役割を果たすもの」と位置付けられている。

日本の国土面積 37.8 Mha のうち森林面積は 25.1 Mha と、国土に占める森林面積の比率である森林率は 66.4 %である^[5]。国際連合食糧農業機関（Food and Agriculture Organization, FAO）の集計方法では日本の国土面積および森林面積はそれぞれ 36.5 Mha および 25.0 Mha となり森林率は 68.5 %と計算され、これはフィンランドの森林率 72.9 %、およびスウェーデンの森林率 68.7 %に次いで 3 番目である^{[5],[6]}。このように日本は木質バイオマスの中でも森林バイオ

マスに恵まれている状況にあるが、1955年に94.5%であった産業用材（製材、パルプ・チップ、合板、およびその他の4部門からなる）の自給率は低価格の輸入材に押されて低下しており、2013年では28.6%である。国内総需要量の約41%を占めるパルプ・チップの自給率が特に低く、2013年では17.1%である^[7]。森林は木材供給のみならず国土の保全、水源の確保、および土砂災害の防止など多くの機能を持つ。森林の維持のためには樹木の成長段階にあわせて下刈り、除伐、および間伐などを行う必要があるが、産業用材の国内自給率低下が示すように国産材の利用は低調であり、森林を適切に整備する動機に欠ける。このため手入れが行き届かずに荒廃が危惧される森林もある^[7]。

国産材、特に国産チップ材の新たな利用形態の一つに、チップ材を使用したバイオマス発電が挙げられる。森林バイオマスによる発電は、バイオマスを直接燃焼させる方式、およびガス化した後に燃焼させる方式に大別できる。直接燃焼方式の発電は、既存の石炭火力発電において石炭とバイオマスを燃焼させる混焼方式、およびバイオマスのみを専用のボイラで燃焼させる専焼方式がある。ガス化燃焼発電では、熱分解によって森林バイオマスをガス化し発電を行う方式が代表的である。混焼方式発電、専焼方式発電、および熱分解ガス化燃焼発電のどれが最も日本に適した発電方式であるか、またはどの発電方式をどの程度導入するべきか、などはまだ判然としないが、メタノールやエタノールなどのバイオ系液体燃料の生成と併せて議論する場合は、熱分解ガス化燃焼方式による発電およびメタノール生成の並行操業が最もシンプルで効率的な方法である。

同方式ではまず森林バイオマスを熱分解することにより、 H_2 、 CO 、 CO_2 、および CH_4 を主成分とする可燃性のバイオガスが生成される。各成分の発生比率は投入するバイオマスの種類によって異なる。得られたバイオガスを用いてガスエンジンまたはガスタービンなどにより発電を行うが、触媒を用いることによりバイオガスからメタノールを合成することも可能である。一連のプロセスの例を Fig. 1.1 に示す。これは清水建設株式会社のガス化発電装置「ビル・バイオマスタ」の発電・メタノール合成フローである。ビル・バイオマスタ

の外観を Fig. 1.2 に示す. 木質バイオマスは乾燥および粉砕の後にガス化され, H_2 , CO , CO_2 , および CH_4 を主成分とするバイオガスとなる. 灰分および水分を排する精製過程を経て, 多段式合成法によりメタノールが生成される. この過程において発生する熱およびオフガスはその大部分が有効に再利用される. ビル・バイオマスタワーは, 農林水産省の支援で長崎総合科学大学などが開発した「農林バイオマス 3 号機」で採用されている浮遊外熱高カロリーガス化法をベースとしている. このガス化方式はタールをほとんど生成することなく高カロリーなガスが得られる方式である^[8]. 本ガス化法は外部からの熱で $800\text{--}1000\text{ }^\circ\text{C}$ に昇温した反応管内で, 粉砕した森林バイオマス粉および水蒸気を水蒸気改質させるものである. 酸素または空気をガス化剤として用いることなく, 常圧化でバイオガスに変換される^[10]. メタノール合成は, ガス化と同じく農林バイオマス 3 号機で実証された低圧多段式メタノール合成方法による^[9]. 現在の主たるメタノール合成方法は天然ガスを主原料とするものであり, その場合の合成圧力は 10 MPa である. それに対し, 低圧多段式メタノール合成方法では $1.5\text{--}2\text{ MPa}$ の低圧力でメタノールを合成することが可能である^[10].

本フローを採用しているプラントは発電のみ, エタノール合成のみ, または発電・エタノール合成並行操作が可能である.

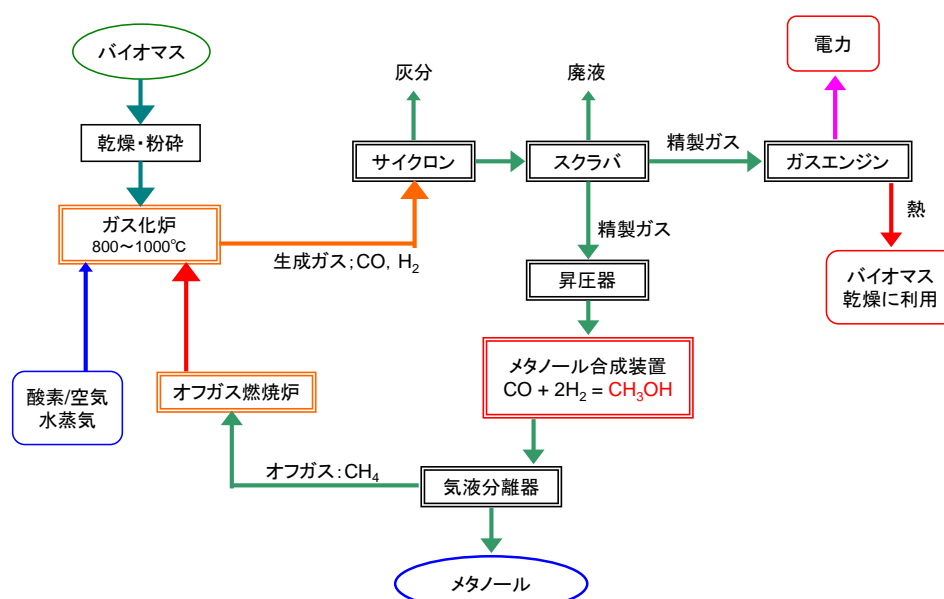


Fig. 1.1 バイオメタノール生成プロセス



Fig. 1.2 清水建設株式会社製ビル・バイオマスター^[9]

森林バイオマスからエタノールを生成することも可能であり、そのようなエタノールを「セルロース系バイオエタノール」と呼ぶ。森林バイオマスから生成されるバイオメタノールと同じく、セルロース系バイオエタノールも食用作物と競合しないバイオ燃料であるが、製造コスト、CO₂削減効果、および製造時の環境負荷などの面から現在でも本格的な実用化には至っていない^{[11],[12]}。2014年9月に米国で初めてのセルロース系バイオエタノール生成プラントが稼働したものの^[13]、経済的・環境的な成立性には疑問も呈されている^{[11],[12],[14]}。

1.1.2 航空宇宙産業分野におけるバイオメタノールの利用可能性

国際航空便は国境を越えて運行されており、航空機から排出される温室効果ガスも全地球的に放出される。そのため京都議定書において、国際航空に関する温室効果ガスの排出削減はICAO (International Civil Aviation Organization, 国際民間航空機関) を通じて取り組むこととされている^[15]。ICAO とは 1947 年に設立された国連の専門機関の一つで、1944 年に締結された国際民間航空条約（シカゴ条約）を根拠とする。国際航空運送業務やハイジャック対策のための条約作成、および国際航空運送に関する国際基準・勧告・ガイドラインなどの作成を行っており、シカゴ条約批准国である 191 か国が加盟している^[18]。2010

年の第 37 回 ICAO 総会において，2020 年まで燃費効率を毎年 1.5 %改善し，2020 年以降は国際航空からの温室効果ガスの排出量を増加させないという削減目標（CNG2020）を設定すること，および 2050 年までに 2005 年比で 50 %削減することが決議された．この目標を達成するために ICAO 加盟各国は新技術の導入，運行方法の改善，および代替燃料の活用などの対策を推進する必要がある．ICAO が設定した削減目標を達成する手段として，民間航空会社の国際的業界団体である IATA（International Air Transport Association，国際航空運送協会）が掲げるロードマップが参照されることが多い．IATA のロードマップを Fig. 1.3 に示す．本図において，赤色のラインは何も対策を行わなかった場合の CO₂ 排出増加を，黒色の「CNG2020」のラインは 2020 年以降の排出量抑制を，それぞれ概念的に表している．本図は，機体またはエンジンなどの改善（aircraft technology measures）や運航方法の改善（operations measures）などでは CNG2020 を達成することができず，代替燃料または何らかの革新的な技術革新（biofuels and radically new technologies）に関する取組みが必要であることを示している^[17]．

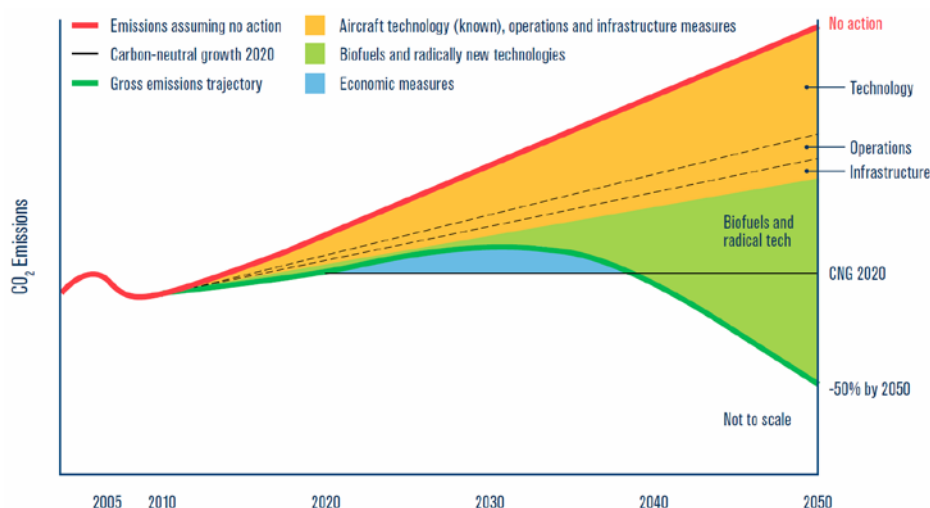


Fig. 1.3 CO₂削減 IATA ロードマップ^[20]

航空機の推進系は酸化剤に空気をを用いるため，酸素成分が含まれる燃料を使用することは，燃費などを考えた場合に本質的に不利であるが LCA 解析の結果

からメタノールは総合的にエタノールやジメチルエーテル（DME）などより優れている^[21].

宇宙産業分野においては、過去に経済性の観点からメタノール／液体酸素系ロケットエンジン^[22]，およびメタノールを燃料に用いた空気吸い込み式エジェクタロケットエンジンの検討および実証試験が行われている^{[23],[24]}．これらでは炭化水素燃料／液体酸素推進系と比較して，メタノール／液体酸素推進系は推力などにおいて遜色なく，経済性に優れることが報告されている．

1.2 拡散燃焼研究で用いられる火炎および燃焼形態

1.2.1 対向流拡散火炎

気体燃料の拡散燃焼理論研究にはこれまで対向流拡散火炎が用いられてきた。これは、燃料流と酸化剤流（空気流）とを衝突させ、その境界面に拡散火炎を形成させたものである。対向流拡散火炎の概念図を Fig. 1.4 に示す。

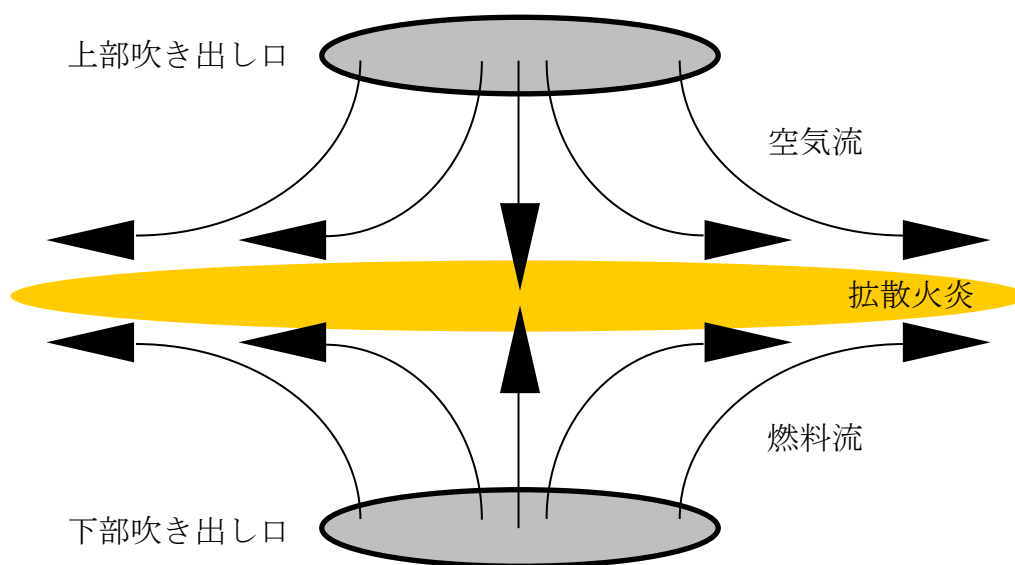


Fig. 1.4 対向流拡散火炎

対向流火炎の特性は一次元火炎のそれに近似することができ、また火炎中の滞留時間を変化させることができる。一次元火炎であるということから実験として代表的な火炎温度測定および火炎中化学種計測は、ある単一の平面に沿って行うだけでよい。また数値計算による理論的研究において、ケロシン燃料やディーゼル燃料など 200 から 300 の化学種、および 1500 から 2300 の素反応からなる詳細化学反応機構^[26]を用いた場合でも、現実的な計算時間で収束解を得ることができる。ガソリン燃料の詳細化学反応機構は 860 から 990 の化学種、および 3600 から 4000 の素反応からなるが、対向流火炎を用いてそのような燃料の基礎燃焼特性に関する研究が行われてきた^{[27]・[30]}。

対向流火炎を解析することにより、当該燃料の拡散燃焼特性および火炎伸長による消炎特性（吹消え特性）などに関する知見が得られる。対向流火炎にお

いて燃料流と酸化剤流の噴出速度を増加させると速度勾配が増加し、火炎は火炎面に沿って引き伸ばされる。火炎の伸長度合は、流速、密度、およびダクト間距離によって定義される火炎伸長率によって表される。火炎伸長率が増加した火炎では酸化剤と燃料の濃度勾配が増加するため不完全燃焼を生じる。その結果、火炎の最高温度が低下し、最終的には消炎にいたる。このような手法を用いて、 $\text{CH}_4 \cdot \text{C}_2\text{H}_4 \cdot \text{C}_2\text{H}_6 \cdot \text{C}_3\text{H}_8$ の消炎^[31]、および $\text{C}_2\text{H}_4 \cdot \text{C}_2\text{H}_6 \cdot \text{C}_3\text{H}_6 \cdot \text{C}_3\text{H}_8$ の消炎^[32] に関する研究などが行われている。

1.2.2 噴流拡散火炎

管状または矩形状などの噴射口から噴出した気体燃料により形成される火炎を噴流拡散火炎と呼ぶ。代表的な噴流拡散火炎は、静止空気中に噴出した燃料を燃焼させた火炎である自由噴流拡散火炎、および平行な燃料流および酸化剤流の境界面に形成される同軸噴流拡散火炎である。これらは噴出した燃料と周囲酸化剤の混合境界層内に形成される^[45]。同軸噴流火炎の概念図を Fig. 1.5 に示す。

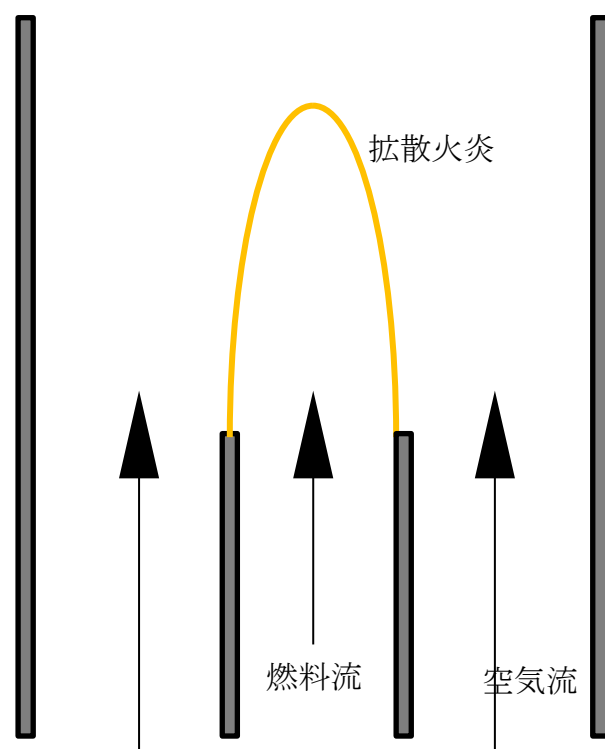


Fig. 1.5 同軸噴流拡散火炎

拡散火炎では、燃焼過程は主流燃料および周囲酸化剤の拡散混合に依存する。すなわち両者の拡散速度が律速であり、化学反応速度は支配的ではない。拡散速度は火炎付近の濃度勾配によって変化するため、予混合燃焼で計測される燃料の物性値としての燃焼速度は存在しない。

化学反応速度を無限大とすると燃焼化学反応帯の厚みをゼロと考えることができ、拡散火炎は極めて薄い面として取り扱うことができる。このようなモデルを火炎面モデルという。Burke と Shumann はこの火炎面モデルを用いて同軸二重円管中における拡散火炎の解析を初めて行った^[33]。その結果によれば燃料噴射管径と周囲管径の比、燃料流および酸化剤流におけるそれぞれの濃度、および当量比によって、火炎先端部が閉じた火炎または周囲管に付着した火炎のいずれかを形成する。管径比が一定の場合、酸化剤流量が化学量論よりも大きい場合に閉じた火炎を形成し、化学量論以下では周囲管への付着火炎となる。これまでに行われてきた噴流拡散火炎構造に関する実験的研究例としては Wolfhard-Parker バーナによるものが代表的である^{[34],[35]}。このバーナでは安定した二次元平面火炎を形成することができる。近年では 2 次元火炎計算に詳細化学反応機構を適用し、同軸噴流火炎の構造を明らかにする研究が行われている。メタンおよびエチレンを燃料とする同軸拡散火炎を対象として、火炎構造、ならびに NO_x および煤の生成に関する研究例がある^{[36]-[39]}。

噴流拡散火炎は火炎の安定性がよいこと、燃焼制御が比較的容易であること、および逆火の心配がないことなどから実用燃焼機関で多く用いられている^[44]。拡散燃焼方式のガスバーナは製鉄プラントまたは化学プラントにおいて加熱・溶解・分解などの目的で使用される工業炉、小容量の厨房・暖房用温水ボイラ、火力発電用の大形事業用ボイラ、および石油精製プラントなどにおいて可燃性廃棄ガスを燃焼処理するためのフレアスタックなどに利用されている。

1.3 同軸流拡散火炎の安定機構に関する研究

同軸拡散火炎は実用燃焼機関で多用されている燃焼形態であり、拡散火炎を安定に保つ燃焼技術は重要な要素である。拡散火炎の安定性の要因として、火

炎が形成される根本の火炎基部の要素が大きく影響しているが、その火炎基部の構造はいまだ不明点が多い。そこで安定な拡散火炎の挙動を観察するとともにその火炎の構造や火炎形状などが調べられてきた^{[40],[46]}。

メタンおよびプロパン^[40]、ならびに水素^[41]を燃料に用いた同軸火炎の、燃料流速を増加させた場合の安定燃焼限界は、噴射管端（リム）の厚みおよび燃料流速によって場合分けされて説明されている。水谷らは燃料にメタンおよびプロパンを使用し、リム厚さが火炎安定性におよぼす影響を報告している^[40]。メタン火炎ではリム厚さ 2 - 3 mm、プロパン火炎ではリム厚さ 1 - 2 mm を境にして火炎安定機構が変化する。いずれの燃料を用いた場合でも厚肉バーナではリム上部に燃料および空気の還流領域が存在し、中間生成物が全域に分布している。火炎基部は拡散火炎として還流領域内部に位置しており、この反応領域に支えられることによってリム上部に安定付着される。薄肉バーナの場合も循環領域が存在するがそれは小さいものであり、循環領域内部での燃焼反応が維持されない。そのため、循環領域上部（外縁）に伝播性を持った火炎として安定化される。Takahashi らは燃料に水素を使用し、火炎基部の伝播性による火炎安定機構を提案した^[41]。近年 Takahashi らは、リムから 4 - 5mm 程度浮き上がったメタン拡散火炎を研究対象として、火炎基部において化学反応が活性化されている領域（reaction kernel）が火炎安定化に寄与していると発表している^{[47]-[49]}。火炎基部の直下に予混合層が形成されるが、その幅は消炎距離の 2.2 mm と比較して小さい。そのため火炎基部は予混合層内を伝播することができず、拡散火炎の様態を示す。

第2章 研究目的と手法

2.1 メタノールとエタノール

メタノール拡散火炎の安定機構をエタノールと比較する．メタノールは炭素数が1の最も単純なアルコールであり，分子構造に占めるOHの重みが大きい．OHの影響を強く受けるために，層流燃焼速度などがエタノールを始めとする他のアルコールのそれよりも異なる傾向にある．エタノールの燃焼特性は炭素数2以上のアルコールの燃焼特性を代表した一般的なものであると考え，メタノールの燃焼特性をエタノールのそれと比較する．

2.1.1 物性

メタノールおよびエタノールの物性を Table 2.1 に示す．

Table 2.1 メタノールおよびエタノールの主な物性値[65]

燃料	低位発熱量 [MJ/L]	沸点 [°C]	RON *1	MON *2	比重@ 20 °C
メタノール	15.8	64.7	109	89	0.792
エタノール	21.4	78	109	90	0.794

*1. リサーチ・オクタン価, Research Octane Number

*2. モータ・オクタン価 Motor Octane Number

2.1.2 過去の研究

メタノールの層流燃焼速度に関しては Gülder^[50], Metghalchi^[51], Bradley^[52], Egolfopoulos^[53], Saeed^[54], Zhang^[55], Veloo^[56], Vancoillie^[57], および Sileghem^[58]らの研究が，また着火・消炎に関しては Cooke^[59], Natarajan^[60], Tsuboi^[61], Lee^[62], Fieweger^[63], Noorani^[64]らの研究がある．これらの実験結果に基づき，メタノール燃焼の詳細化学反応機構の構築がなされている．Nortonらは Tsang のデータベース^[67]をもとにして，Westbrook らが発表していたメタノール酸化反応の詳細化学反応機構^[68]を修正した^[69]．さらに修正^[70]されたのち，Li らによって発表された^[71]．現在では $\text{CO} + \text{HO}_2 = \text{CO}_2 + \text{OH}$ などの反応定数を修

正したものが Princeton University, Combustion Lab のウェブサイトで公開されている^[72]。本論文では最新の Princeton C1 Model を C1-2007 と呼ぶ。そのほか、バイオマス燃焼時の窒素酸化物の生成を念頭にして開発された ÅA^[73]などがある。

エタノールの層流燃焼速度に関しては Egolfopoulos^[74], Gülder^[50], Liao^[75], Bradley^[76], Veloo^[56], Eisazadeh^[77], Konnov^[78], van Lipzig^[79], Broustaillet^[80], Varea^{[81], [82]}, Beeckmann^[83], Knorsch^[84], および Sileghem^[58]らの研究が、着火・消炎に関しては, Cooke^[59], Dunphy^[85], Curran^[86], Lee^[62], Noorani^[64], Saxena^[87], Cancino^[88], Heufer^[89], Lee^[90], Mittal^[91]らの研究がある。これらの実験結果に基づき、エタノール燃焼の詳細化学反応機構の構築がなされている。エタノール燃焼の詳細化学反応機構は Mrinov^[92], および Egolfopoulos^[74]によるものが代表的である。

ジメチルエーテル (dimethyl ether, DME) は石油代替燃料の一つであり、その燃焼に関する研究が近年盛んに行われている。DME の詳細化学反応機構の化学種にはメタノールおよびエタノールが含まれることが一般的であるため、DME の反応機構をメタノールおよびエタノールの燃焼に適用することができると思われる。DME の詳細化学反応機構は DME2000^{[94], [95]}のシリーズが代表的なものである。現在は DME2000 を大幅に修正した 2007 年版の DME 燃焼モデル^[96]が発表されている。このモデルはメタノールおよびエタノールの詳細化学反応機構をサブモデルとして含んでいる。DME2000^{[94], [95]}をメタノール・エタノールに適用した例はないが、大幅に修正された 2007 年版の DME 燃焼モデル^[96]はメタノール・エタノール対向流火炎で適用された^[56]。2007 年版の DME モデル^[96]は Li らによって発表されたモデル^[71]をメタノールサブメカニズムとして含んでいるがウェブサイトで公開された修正^[72]が反映されていない。本論文では、2007 年版の DME モデル^[96]のメタノールサブメカニズムを、最新の C1 Model である C1-2007^[72]に修正したものを DME2007 と呼ぶ。

このようにメタノールおよびエタノールの層流燃焼速度、着火遅れ、対向流火炎の消炎、火炎の 1 次元構造、および詳細化学反応機構に関する研究例は多

く存在するが、噴流火炎の安定性に関する研究例は極めて少なく、わずかに立田らの 2 例である^{[97], [98]}。立田らは液体メタノールまたはエタノールを円筒気化室内のホットプレート上に注入し、蒸気となった燃料が静止空気中に形成する自由噴流拡散火炎を対象に研究を行った。立田らは燃料流速、未燃蒸気温度、ノズル出口形状、および水混合が火炎長に及ぼす影響を評価した。立田らはメタノールおよびエタノールの火炎長は、気体炭化水素燃料の同じ要因で決定されること、ならびに発生熱量あたりの火炎長は LPG あるいは都市ガスよりも大きくなることなく、これらの気体炭化水素を拡散燃焼させる既存の実用燃焼器にアルコール蒸気を導入した場合でも、燃焼室寸法を大幅に変更する必要がないことを報告している。

2.2 メタノールおよびエタノール燃焼の詳細化学反応機構

2.2.1 詳細化学反応機構の概要

現在、低級炭化水素やアルコールの燃焼への適用を謳った詳細化学反応機構が発表されており、代表的な 5 種類を Table 2.2 に示す。

Table 2.2 詳細化学反応機構

本論文での呼称	化学種数	素反応数	特徴
DME2000	82	351	ジメチルエーテル燃焼
DME2007	55	290	ジメチルエーテル燃焼
konnov2005	52	444	低級炭化水素、汎用
marinov	57	383	エタノール用
sandiego2014	50	244	低級炭化水素、汎用

DME2000 および DME2007 はジメチルエーテル用の詳細化学反応機構で、Table 2.3 に示すようにメタノールおよびエタノールに関する素反応群をサブメ

カニズムとして含んでいる.

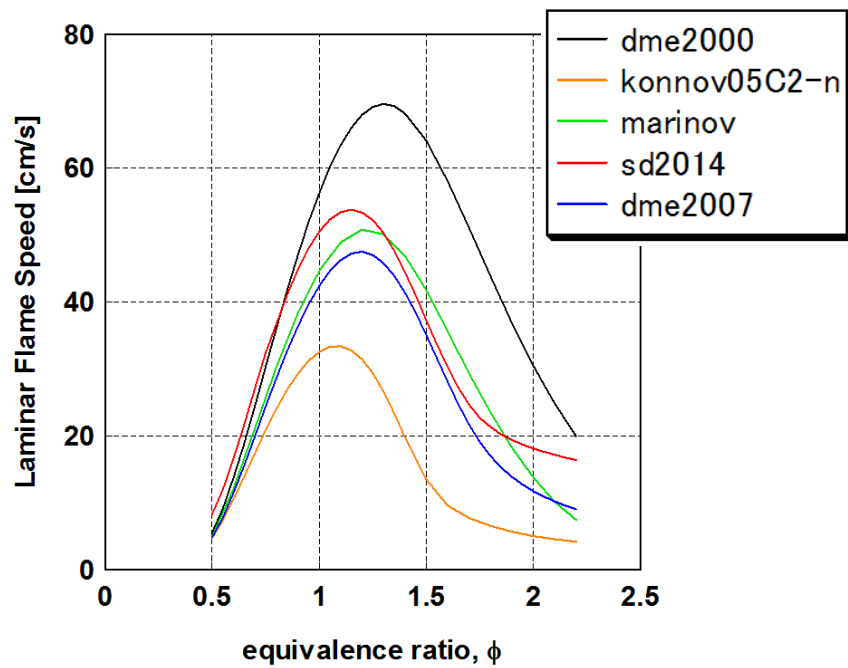
Table 2.3 DME2007 を構成するサブメカニズム群

H ₂ /O ₂ Reactions	<i>CH₃OH Reactions (Princeton C1-mech)</i>
CO/HCO Reactions	C ₂ H ₄ /C ₂ H ₃ Reactions
CH ₂ O Reactions	C ₂ H ₂ /HCCO Reactions
CH ₄ Reactions	CH ₂ /CH ₂ (S) Reactions
CH ₂ OH Reactions	CH ₃ HCO/CH ₂ HCO/CH ₂ CO Reactions
CH ₃ O Reactions	<i>C₂H₅OH Reactions</i>
C ₂ H ₆ /C ₂ H ₅ Reactions	DME Submechanism

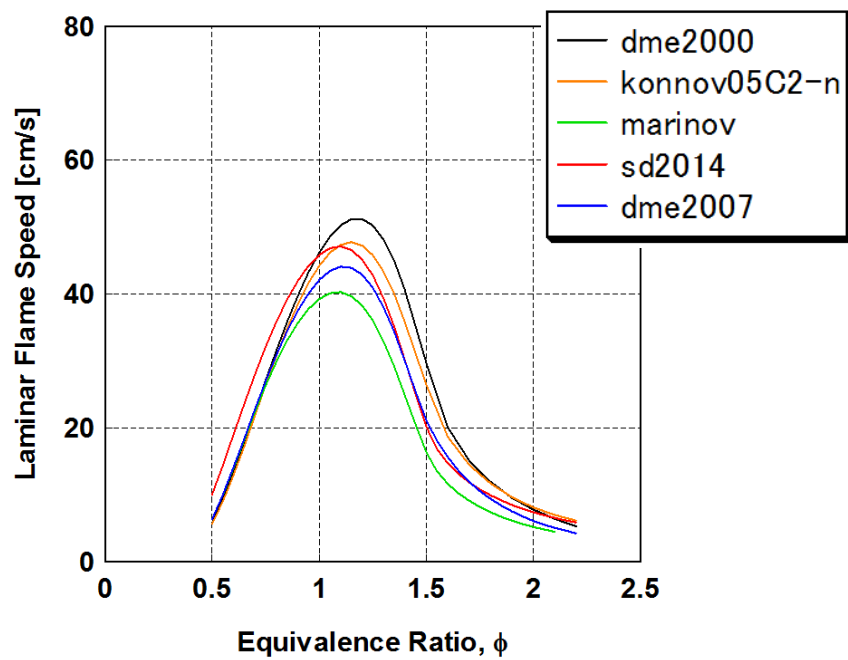
marinov モデルはエタノールの詳細化学反応機構であり, 多くはないがメタノールに関する反応も含む. konnov2005 モデルおよび sandiego2014 モデルは炭化水素燃焼用の汎用モデルである. 本研究ではオリジナルの konnov モデル反応機構から C₃ 以上の化学種および N₂ が関係する化学反応を削除したものを用いた. sandiego2014 モデルは発表されている最新のものをを用いた.

2.2.2 メタノールおよびエタノール燃焼の最適な詳細化学反応機構

CHEMKIN-PREMIX を用いてメタノールおよびエタノール層流燃焼速度を計算した. 当量比で整理した結果を Fig. 2.1 に示す. 初期温度は 300.0 K, 圧力は 0.1 MPa である.



a. メタノール



b. エタノール

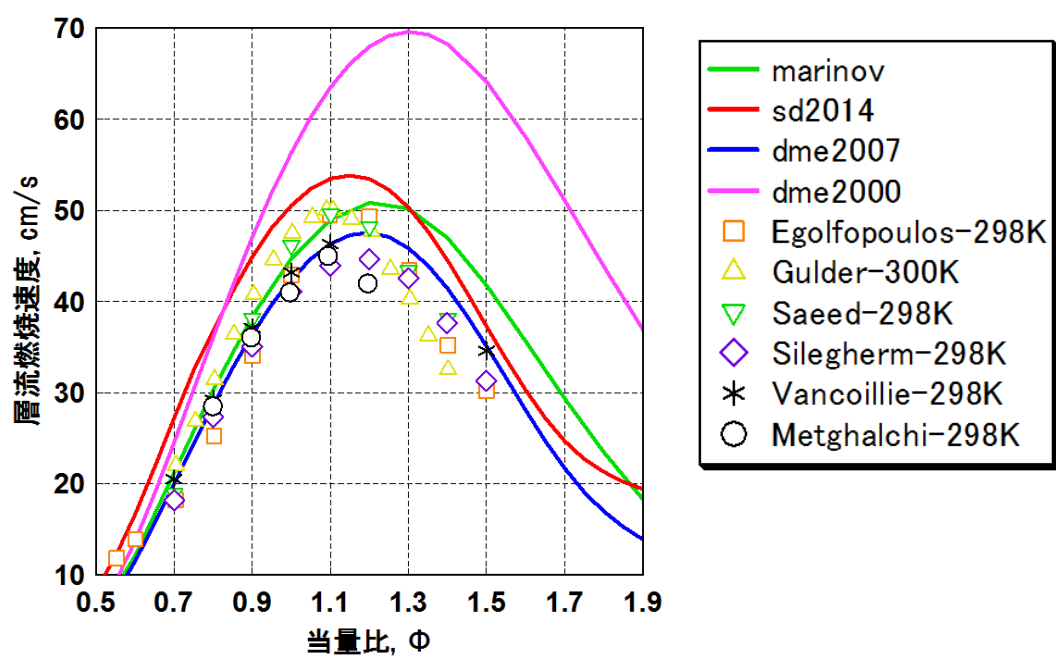
Fig. 2.1 メタノールおよびエタノール層流燃焼速度計算結果

これらの結果から、エタノール層流燃焼速度がメタノール層流燃焼速度よりも大きく計算される konnov2005 モデルが除外される．次に DME2000, DME2007, sandiego2014, および marinov を使用した層流燃焼速度計算値を種々の既往実験値と比較した．比較対象の実験情報を Table 2.4 に示す．初期温度 300.0 K および 318.0 K におけるメタノールの比較結果を Fig. 2.2 - a および Fig. 2.2 - b に示す．また，初期温度 300.0 K および 358.0 K におけるエタノールの比較結果を Fig. 2.3 - a および Fig. 2.3 - b にそれぞれ示す．これらは, Table 2.4 に挙げたもののうち，実験データが 3 セット以上存在する初期温度である．

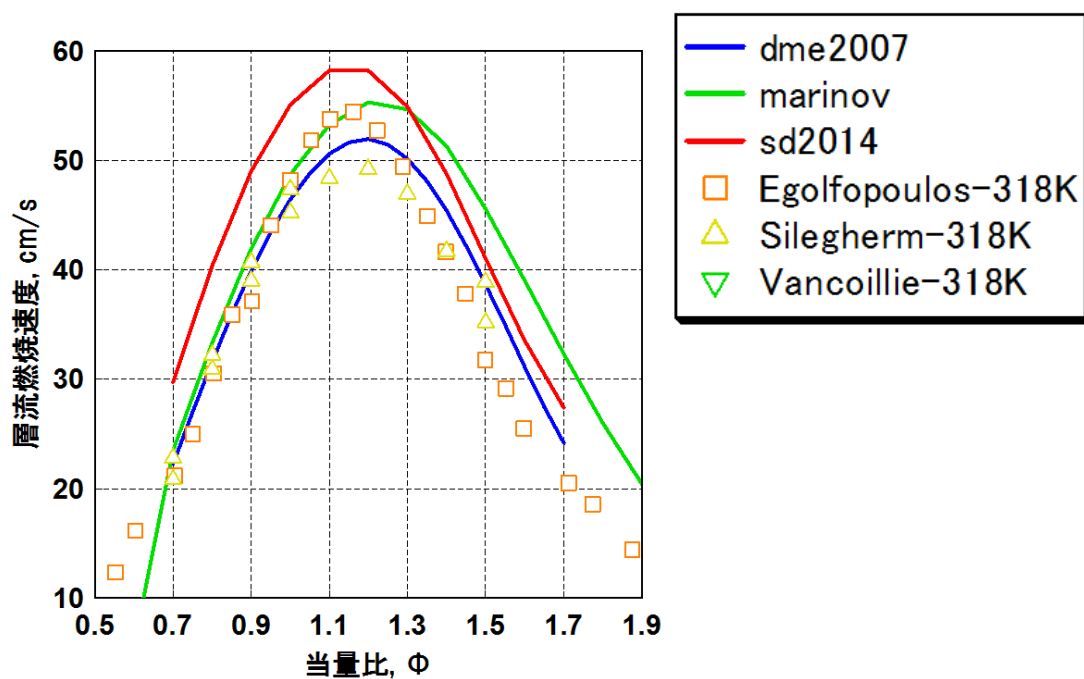
初期温度 300.0 K のメタノール層流燃焼速度比較結果である Fig. 2.2 - a において，DME2000 の計算結果は実験結果ならびに，DME2007, sandiego2014, および marinov を使用した計算結果と大きく異なる．そのため DME2000 を除外し，Fig. 2.2 - b および Fig. 2.3 では DME2007, sandiego2014, ならびに marinov による比較を行った．

Table 2.4 比較対象の実験情報

名称	M or E	T [K]	P [atm]	ϕ	計測手法	ref.
Gülnder	M, E	298-800	1.0-8.0	0.7-1.4	closed vessel	[50]
Egolfopoulos	M, E	318-368	1	0.5-2	counter flow	[53], [74]
Saeed	E	295-650	0.5-13.5	0.7-1.5	closed vessel	[54]
Liao	E	385-480	1	0.7-1.4	closed vessel	[75]
Zhang	M	373-473	1-7.5	0.7-1.8	closed vessel	[55]
Veloo	M, E	343	1	0.7-1.5	counter flow	[56]
Vancoillie	M	298-358	1	0.7-1.5	heat flux	[57]
Sileghem	M, E	298-338	1	0.7-1.5	heat flux	[58]

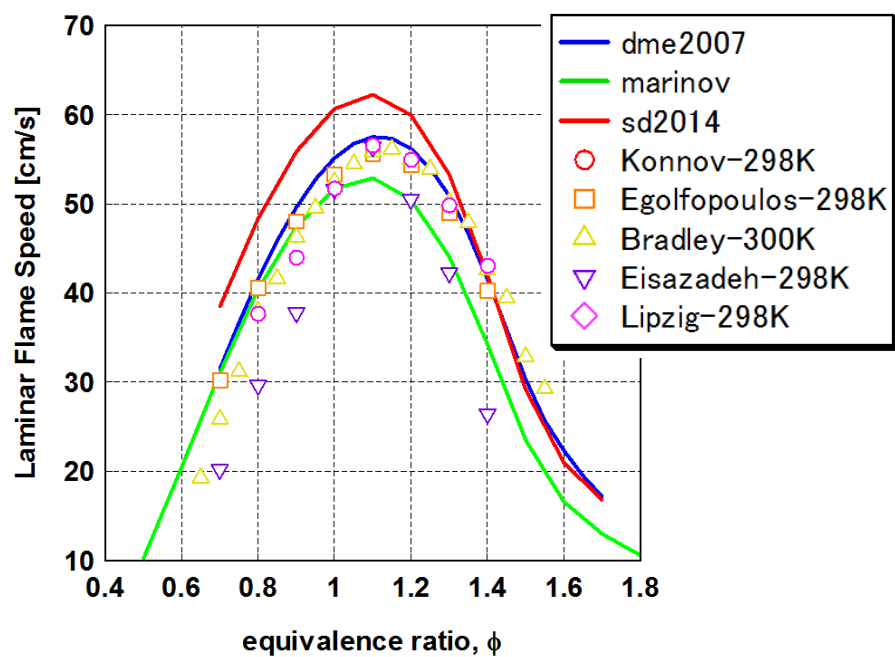


a. 初期温度 298K

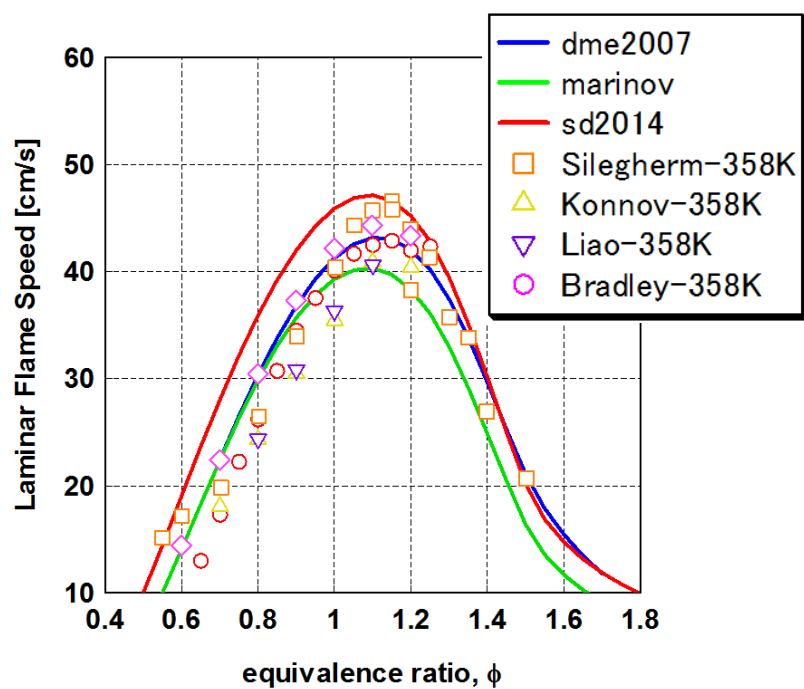


b. 初期温度 318 K

Fig. 2.2 メタノール層流燃焼速度の比較



a. 初期温度 298K



b. 初期温度 358K

Fig. 2.3 エタノール層流燃焼速度の比較

メタノールの比較結果では，sandiego2014 の計算結果は希薄域および過濃域の両方において実験値よりも過大である．marinov の計算結果は希薄域においては実験値とよく一致するが，過濃域では実験値よりも過大である．DME2007 の計算結果は過濃域において実験値よりも過大であるものの，他のモデルよりも実験値の傾向に近い．エタノールの比較結果では，sandiego2014 の計算結果はほぼすべての範囲で実験値よりも過大であり，marinov の計算結果は過濃域において実験値よりも過小である．以上の比較から，DME2007 が 3 つの反応機構（DME2007, marinov, sandiego2014）の中で，メタノールおよびエタノール両方の層流燃焼速度計算値をよりよく再現できるモデルであると判断した．

2.3 実験

実験装置を Fig. 2.4 に示す．液体アルコールは微流量シリンジポンプにより蒸発筒に注入される．蒸発筒は金属製円筒容器およびナス型フラスコからなる．ナス型フラスコには底面および側面の合計 5 か所に熱電対を設置し，各部の温度変化から液面の挙動を知ることができる．蒸発筒の概略を Fig. 2.5 に示す．アルコール蒸気および窒素からなる燃料ガスはテープヒータで保温された配管をとおり，空気整流器の中心をとおり噴射管に流れ込む．周囲空気はオイルレスコンプレッサにより供給され，シリカゲルを具備した乾燥筒を通過したのち，空気整流器に流入する．空気整流器内にはメッシュ，ガラスビーズ，およびハニカム状に配したステンレス細管があり，それらを通過することにより均質な空気流となる．

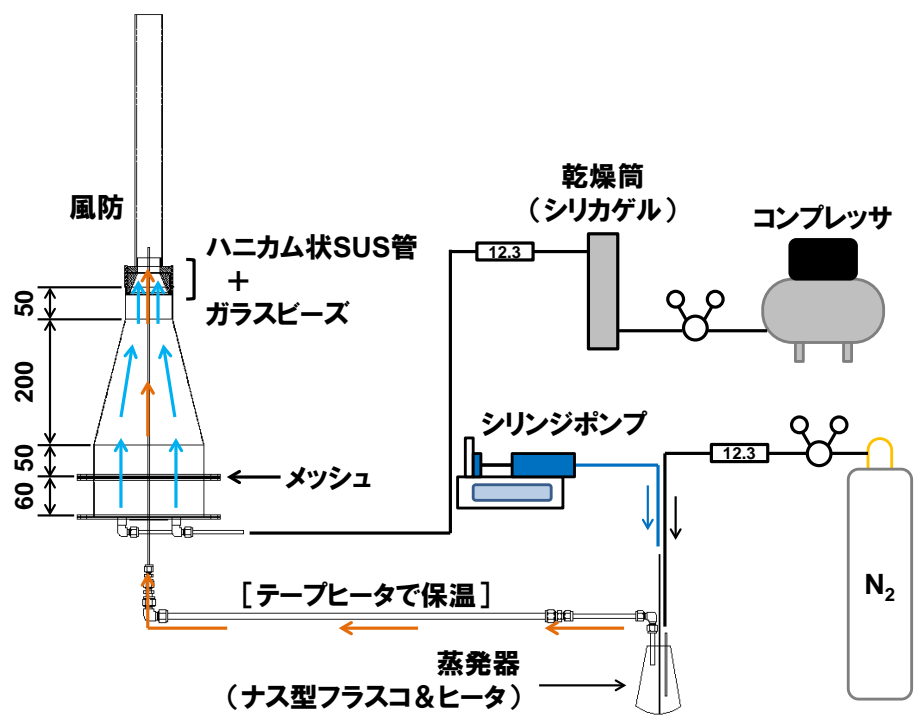


Fig. 2.4 実験装置

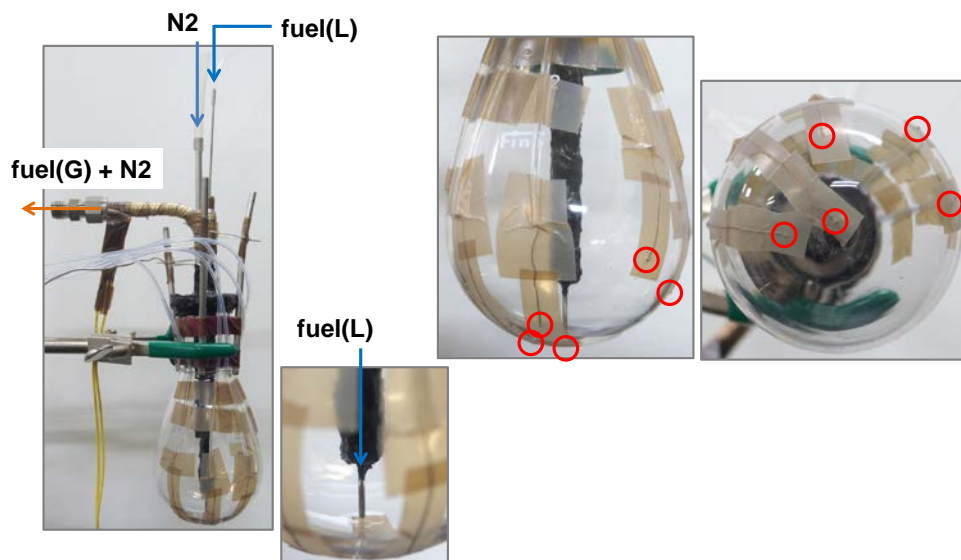


Fig. 2.5 蒸発筒

このような同軸流バーナを用いて、メタノール：窒素＝50：50，エタノール：窒素＝50：50，メタノール：窒素＝60：40，およびエタノール：窒素＝40：60の火炎を対象に吹き飛び限界を調べる．気化アルコールの噴出流量を直接計測することは困難であるため，シリンジポンプにより注入される液体アルコール流量をもとに体積換算の計算を行う．計算には質量保存式および状態方程式より求められる次式を用いる．

$$\dot{V}_g = \frac{\rho_l}{M/V_0} \cdot \frac{T_g}{T_0} \dot{V}_l$$

ここで ρ_l は液体アルコール密度， \dot{V}_l は液体アルコール体積流量， \dot{V}_g は気化アルコール体積流量， M はアルコール分子量， T_0 は標準温度（＝273.15 K）， T_g は気化アルコール温度（＝403 K），および V_0 は標準状態における理想気体のモル体積（＝22.4 L）である．

化学反応機構検討のために，火炎温度測定およびOHラジカル分布計測を行う．火炎温度測定には線径25 μm のR型熱電対を用いた．熱電対は3軸微動ステージ上に設置され，火炎の熱による熱電対素線の変動を抑えるためにおもりを荷重している．白金の触媒作用による火炎温度の上昇をさけるために，ヘキサメチルジシロキサンを使用して測温部周辺を二酸化ケイ素でコーティングした．3軸微動ステージ上に設置された熱電対をFig. 2.6に示す．

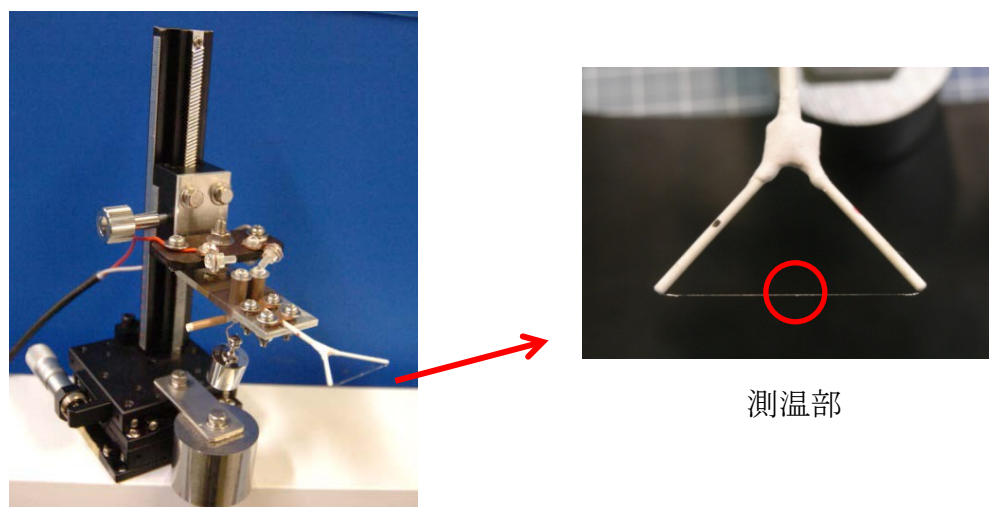


Fig. 2.6 熱電対

OH ラジカル分布計測は PLIF (Planar Laser Induced Fluorescence: 平面レーザー誘起蛍光) 法によりおこなった. 本研究では OH の $A^2 \Sigma^+ - X^2 \Pi$ 遷移における (1,0) バンド吸収線を励起した. この吸収スペクトルは波長 280 - 290 nm 付近に存在する. $A^2 \Sigma^+ - X^2 \Pi$ (1,0) 吸収線のうち, 強度が比較的強くかつ高音でも強度が低下しにくい $Q_1(7)$ を励起線として選択した^{[100],[101]}. この場合の励起波長は 283.222 nm である.

Fig. 2.7 に PLIF 計測系を示す. 励起光源として Nd:YAG レーザの第 2 高調波 (波長 568 nm) を使用し, 色素レーザに導入して波長 283 nm 付近のレーザー光を得る. 使用した色素は Rhodamine590 で, エタノールを溶媒に用いた. 色素レーザからのレーザー光はシリンドリカルレンズを通過することにより, 厚さ 1 mm 以下のシート光になる. このシート状レーザー光を火炎中に照射することにより OH ラジカルが励起され, 蛍光を発する. その励起蛍光の発光強度をイメージインテンシファイア付 ICCD カメラで測定する. ICCD カメラには紫外用レンズおよび中心波長 310 nm・半減幅 10 nm のバンドパスフィルタを装着し, 312 nm 付近の蛍光を選択的に透過させるとともに, 迷光の混入を防止している.

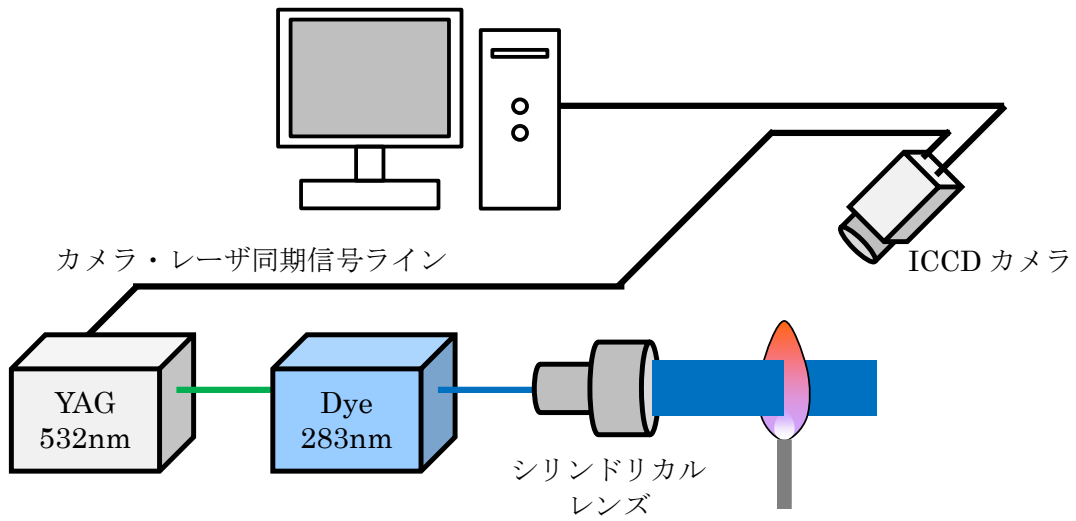


Fig. 2.7 PLIF 計測系の概要

2.4 数値計算

本研究での解析モデルおよび境界条件を Fig. 2.8 に示す．座標系は $x - r$ 円筒座標系である．燃料流は 2 次元ポアズイユ流れであり，周囲空気流は一様流である．

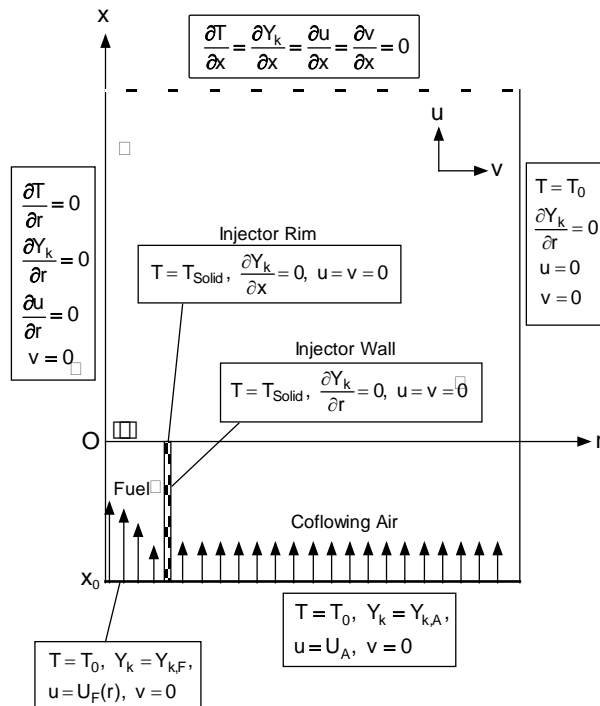


Fig. 2.8 解析モデルおよび境界条件

本モデルに対して以下の仮定を用いた.

1. 流れおよび火炎は完全に軸対称である.
2. 流速の回転方向成分は存在しない.
3. 混合気は理想気体である.
4. 圧力拡散は無視できる.
5. 流れ場を通して熱力学的圧力は一定である.
6. エネルギー式において **Dufour** 効果, 圧力仕事, 粘性散逸は無視できる.
7. 輻射には **Optically Thin** モデルが適用できる.

円筒座標系における支配方程式は以下のとおりである.

連続の式

$$r \frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x}(r \rho u) + \frac{\partial}{\partial r}(r \rho v) = 0,$$

x 方向運動量保存式

$$\begin{aligned} & \frac{\partial(r \rho u)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x}(r \rho u u) + \frac{\partial}{\partial r}(r \rho v u) \\ &= -r \frac{\partial p}{\partial x} + \frac{\partial}{\partial x} \left\{ \frac{4}{3} \mu r \frac{\partial u}{\partial x} - \frac{2}{3} \mu \frac{\partial(r v)}{\partial r} \right\} + \frac{\partial}{\partial r} \left\{ \mu r \left(\frac{\partial u}{\partial r} + \frac{\partial v}{\partial x} \right) \right\} - r \rho g, \end{aligned}$$

r 方向運動量保存式

$$\begin{aligned} & \frac{\partial(r \rho v)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x}(r \rho u v) + \frac{\partial}{\partial r}(r \rho v v) \\ &= -r \frac{\partial p}{\partial r} + \frac{\partial}{\partial x} \left\{ \mu r \left(\frac{\partial u}{\partial r} + \frac{\partial v}{\partial x} \right) \right\} + \frac{\partial}{\partial r} \left\{ \frac{2 \mu}{3} \left(2 r \frac{\partial v}{\partial r} - r \frac{\partial u}{\partial x} - v \right) \right\} + \frac{2 \mu}{3} \left(\frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial v}{\partial r} - \frac{2 v}{r} \right), \end{aligned}$$

エネルギー保存式

$$\begin{aligned} & \frac{\partial(r\rho h^T)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x}(r\rho u h^T) + \frac{\partial}{\partial r}(r\rho v h^T) \\ &= -r \sum_{k=1}^K h_k^0 W_k \dot{\omega}_k + \frac{\partial}{\partial x}\left(r\lambda \frac{\partial T}{\partial x}\right) + \frac{\partial}{\partial r}\left(r\lambda \frac{\partial T}{\partial r}\right) - \frac{\partial}{\partial x}\left(r\rho \sum_{k=1}^K h_k^T Y_k V_{k,x}\right) - \frac{\partial}{\partial r}\left(r\rho \sum_{k=1}^K h_k^T Y_k V_{k,r}\right) \end{aligned}$$

成分保存式

$$\begin{aligned} & \frac{\partial(r\rho Y_k)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x}(r\rho u Y_k) + \frac{\partial}{\partial r}(r\rho v Y_k) \\ &= \frac{\partial}{\partial x}(r\rho Y_k V_{k,x}) + \frac{\partial}{\partial r}(r\rho Y_k V_{k,r}) + rW_k \dot{\omega}_k \quad (k=1, \dots, K), \end{aligned}$$

気体の状態方程式

$$p = \frac{\rho R^0 T}{\bar{W}}.$$

ここで t は時間, p は圧力, g は重力加速度である. ρ , μ , λ , c_p , \bar{W} は各々混合気の密度, 粘性係数, 熱伝導率, 定圧比熱, 平均分子量で, Y_k , X_k , W_k , h_k^0 , α_k , $a_{p,k}$ は各々 k 成分の質量分率, モル分率, 分子量, 基準温度 T^0 における生成エンタルピー, モル生成速度, プランクの平均吸収係数である. また R^0 は普遍気体定数, K は成分の総数である. これらの支配方程式に対し, Patankar の SIMPLE 法^[102]を適用して数値計算を行なった. 各方程式の対流項の離散化には QUICK Scheme^[103]を用いている. 計算に必要な熱化学的定数及び輸送係数の導出には CHEMKIN サブルーチン^[104]を用いている.

火炎温度および主要化学種の分布については, CO - H₂ - N₂ 火炎, H₂-N₂ 火炎, および CH₄ - N₂ 火炎を対象として本研究と同一の数値計算方法を用いた場合の計算結果と実験結果の比較と検討が行われ, 本計算コードが妥当であることが確認されている^[105].

第3章 実験結果および数値計算結果の比較

3.1 火炎温度および OH ラジカル分布

Table 3.1 に示す実験条件でメタノール火炎の温度測定を行った．火炎写真を Fig. 3.1 に，高さ 9.7 mm および 40.7 mm で計測した火炎温度を Fig. 3.2 にそれぞれ示す．

Table 3.1 実験条件

燃料	窒素比率 vol%	ガス温度 K	液体アルコール流量 cm ³ /min	総ガス流量 L/min	総ガス流速 cm/s
メタノール	50	403.15	0.58	0.94	500.2

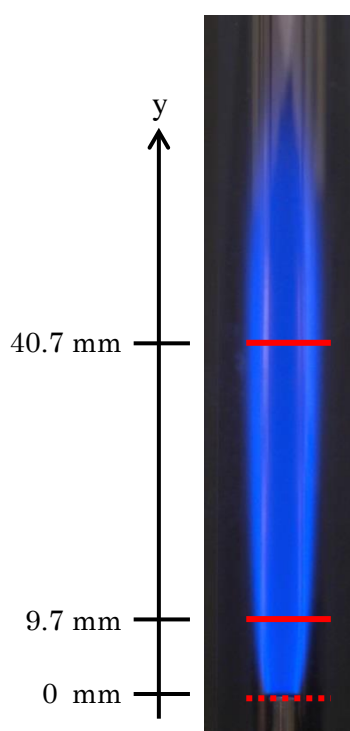
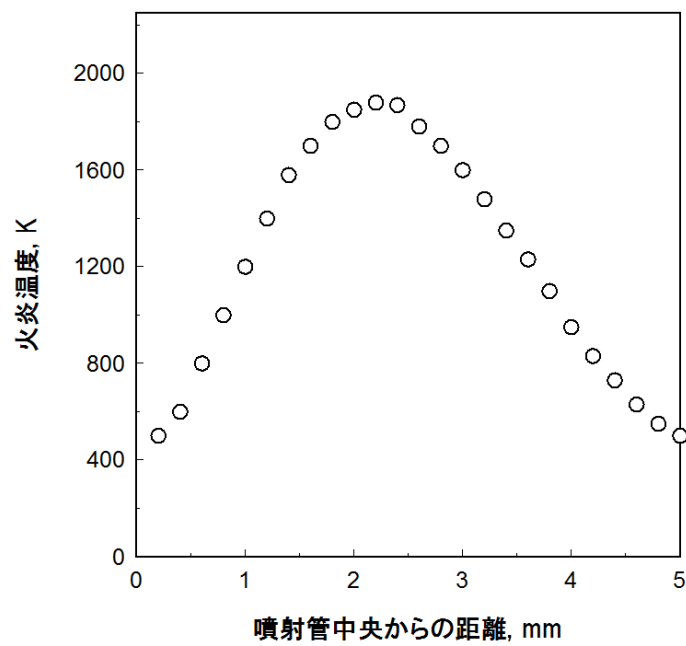
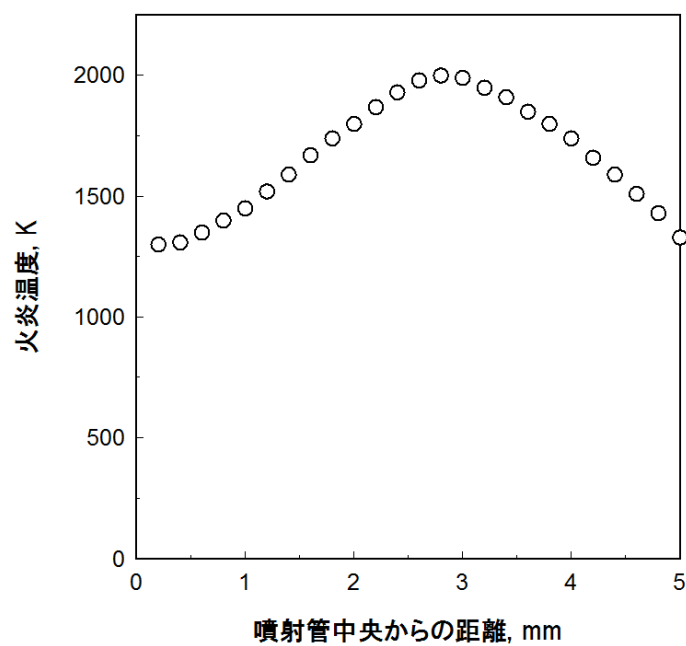


Fig. 3.1 メタノール火炎



a. 高さ 9.7mm



b. 高さ 40.7mm

Fig. 3.2 メタノール火炎温度測定結果

次いで，Table 3.2 に示す実験条件でエタノール火炎の温度測定を行った．火炎写真を Fig. 3.3 に，高さ 9.4 mm および 20.2 mm で計測した火炎温度を Fig. 3.4 にそれぞれ示す．

Table 3.2 実験条件

燃料	窒素比率 vol%	ガス温度 K	液体アルコール流量 cm ³ /min	総ガス流量 L/min	総ガス流速 cm/s
エタノール	50	403.15	0.409	0.47	249.6

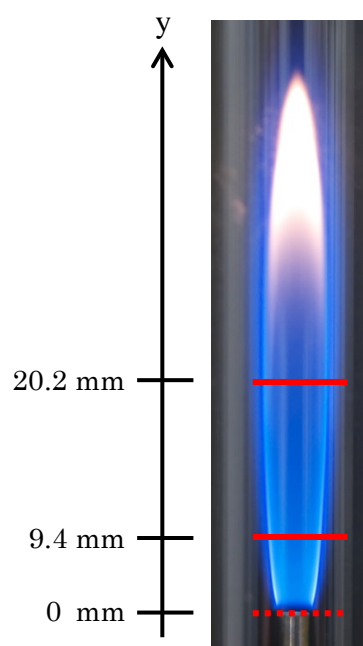
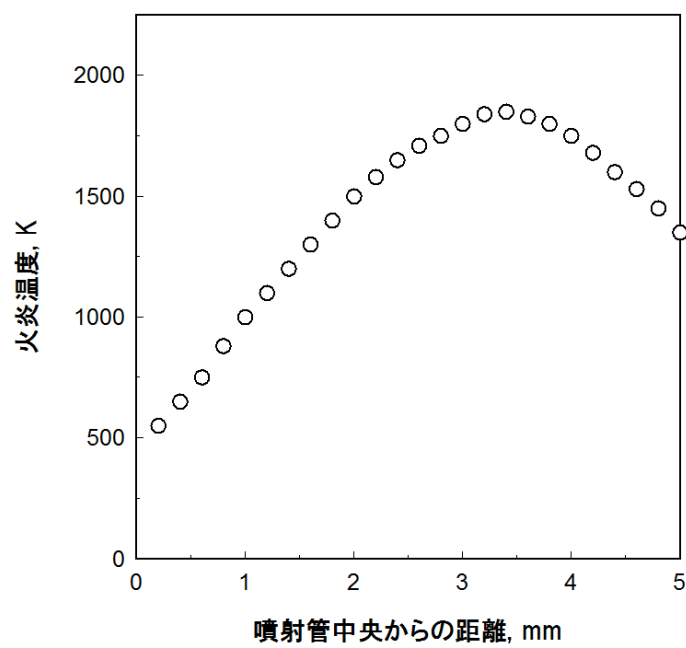
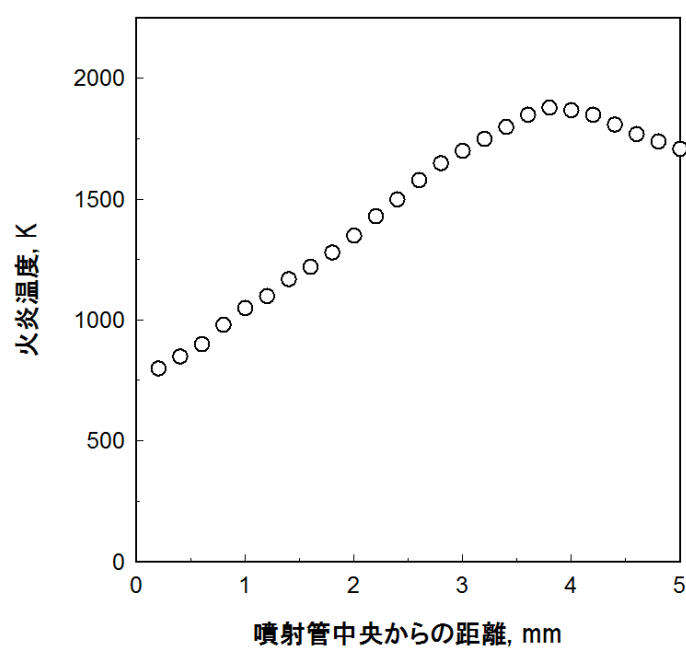


Fig. 3.3 エタノール火炎



a. 高さ 9.4 mm



b. 高さ 20.2 mm

Fig. 3.4 エタノール火炎温度測定結果

これらの測定結果と2次元火炎計算結果との比較を行う。DME2007, marinov, および sandiego2014を使用したメタノール2次元火炎計算結果を Fig. 3.5 に示す。また、メタノール火炎の実験結果および数値計算結果の比較を Fig. 3.6 に示す。Fig. 3.6 - a の計算結果は、DME2007 では高さ 9.74571 mm, marinov では高さ 9.75033 mm, sandiego2014 では高さ 9.68407 mm で整理したものである。Fig. 3.6 - b の計算結果は、DME2007 では高さ 40.74206 mm, marinov では高さ 40.80842 mm, sandiego2014 では高さ 40.6734 mm で整理したものである。

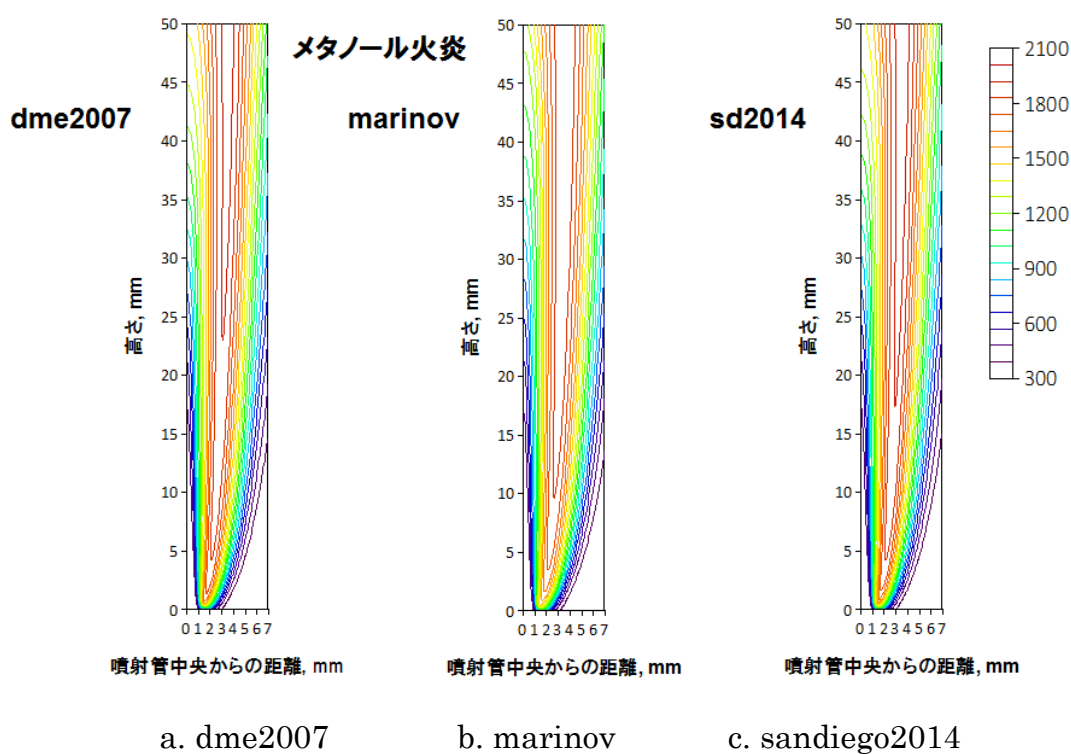
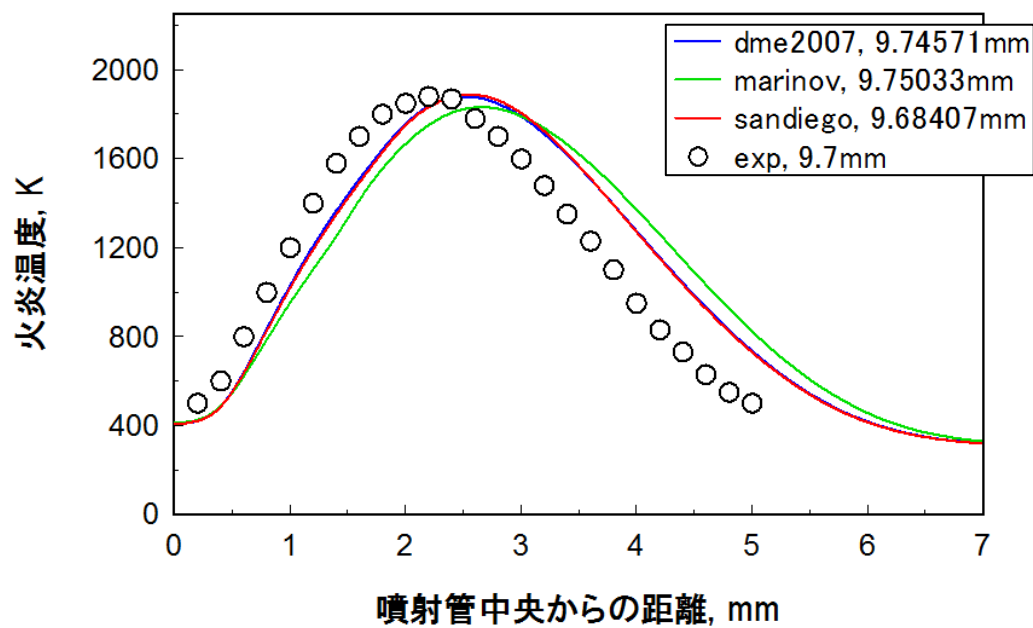
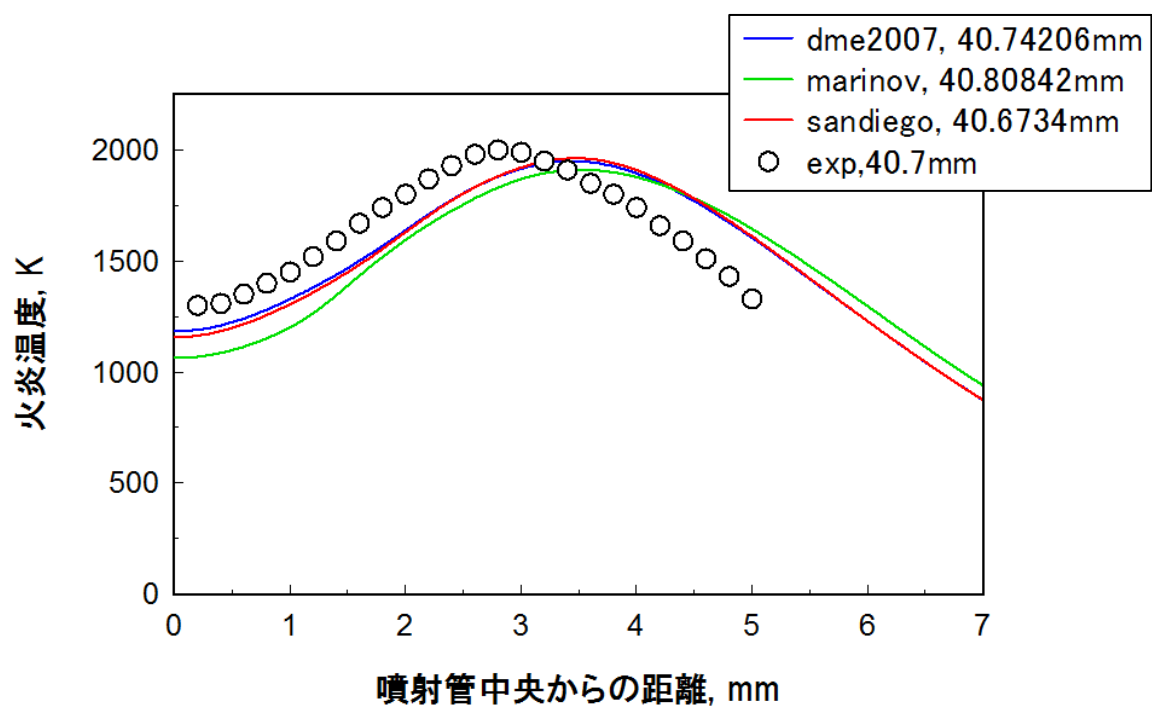


Fig. 3.5 メタノール火炎の2次元温度分布



a. 実験結果および高さ 9.7mm 付近での計算結果の比較



b. 実験結果および高さ 40.7mm 付近での計算結果の比較

Fig. 3.6 実験結果および計算結果の比較：メタノール火炎

次に、DME2007, marinov, および sandiego2014 を使用したエタノール 2 次元火炎計算結果を Fig. 3.7 に示す. また, エタノール火炎の実験結果および数値計算結果の比較を Fig. 3.8 に示す. Fig. 3.8 - a は, 計算結果を DME2007 では高さ 9.33066 mm, marinov では高さ 9.28269 mm, sandiego2014 では高さ 9.40795 mm で整理したものである. Fig. 3.6 - b は, DME2007 では高さ 20.48876 mm, marinov では高さ 20.19063 mm, sandiego2014 では高さ 20.07391 mm で整理したものである.

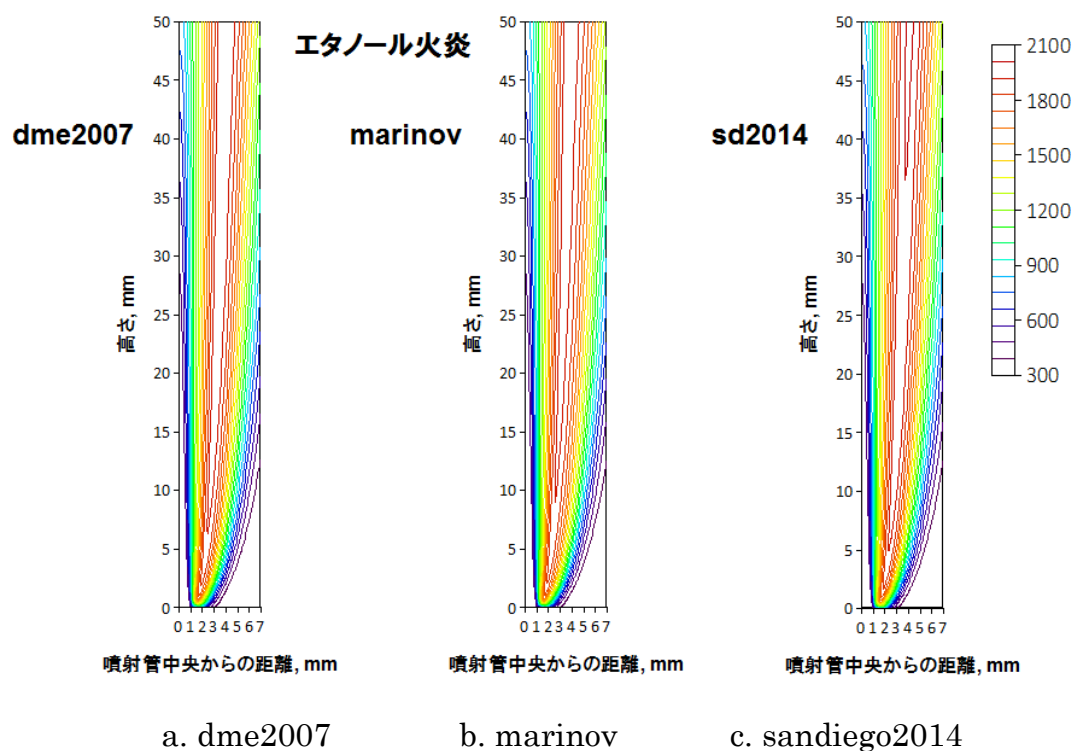
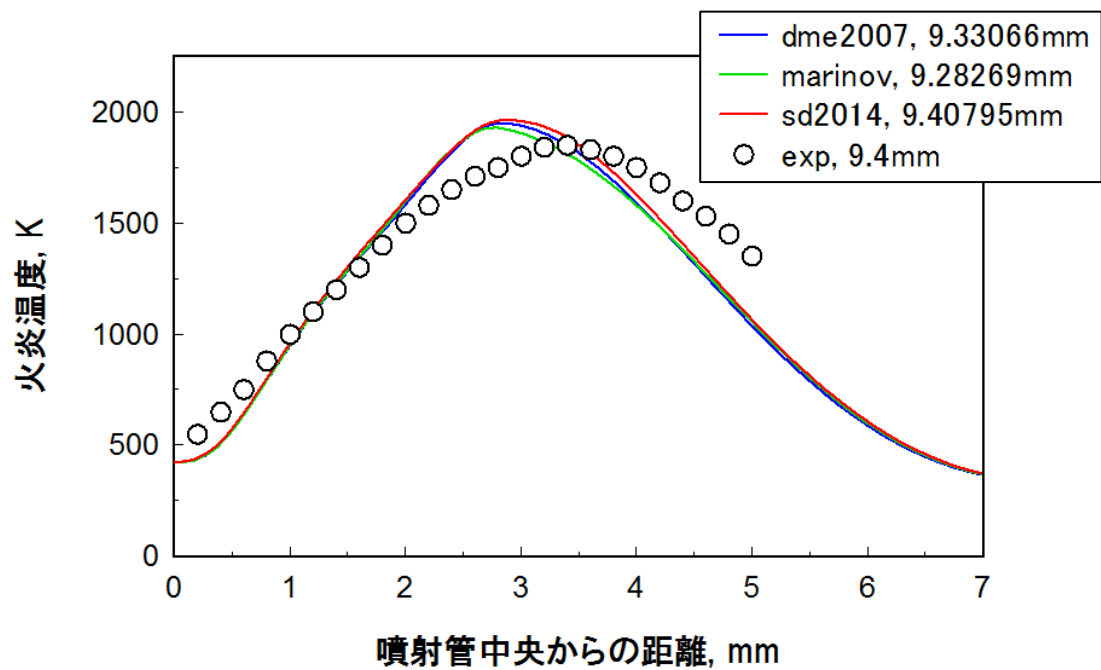
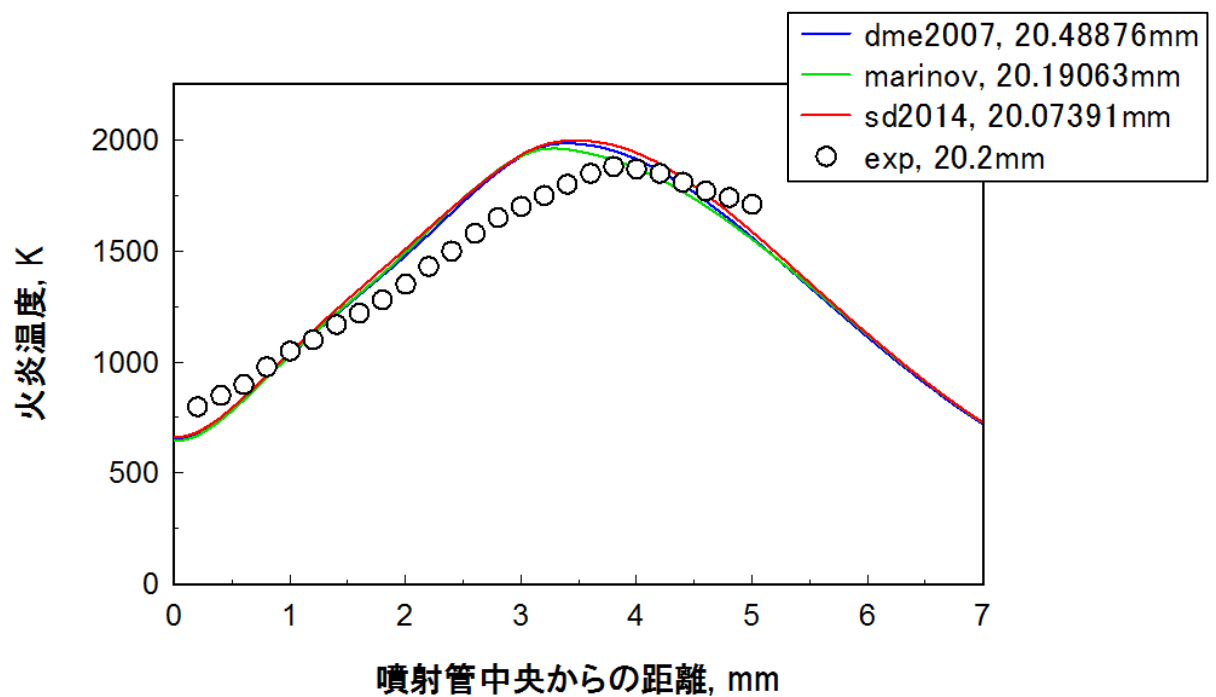


Fig. 3.7 エタノール火炎の 2 次元温度分布



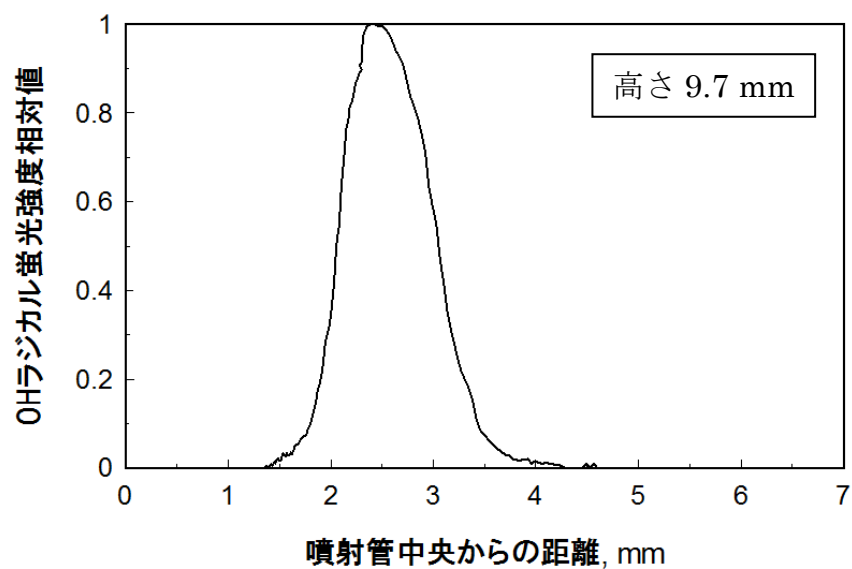
a. 実験結果および高さ 9.4 mm 付近での計算結果の比較



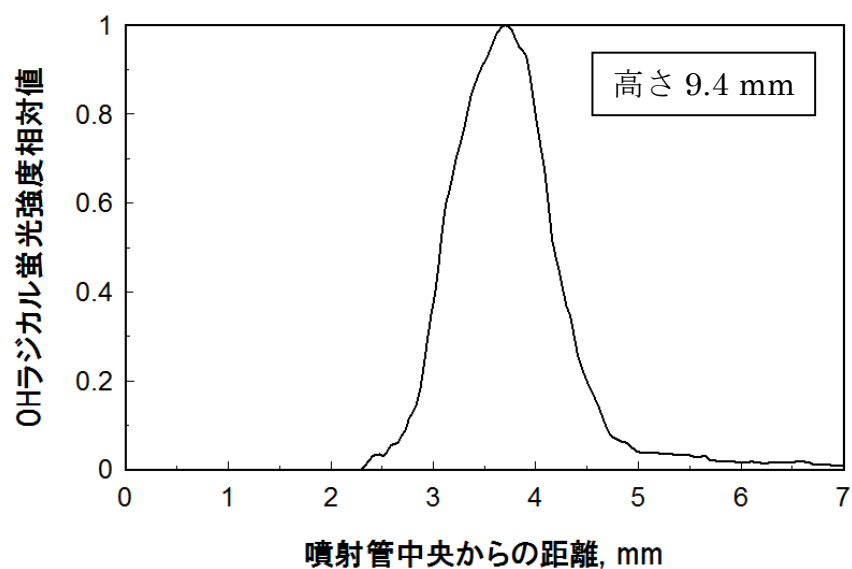
b. 実験結果および高さ 20.2 mm 付近での計算結果の比較

Fig. 3.8 実験結果および計算結果の比較：エタノール火炎

メタノールおよびエタノール火炎の OH ラジカル分布測定結果を Fig. 3.9 に示す．実験条件は前述の Table 3.1 および Table 3.2 と同一である．



a. メタノール火炎



a. エタノール火炎

Fig. 3.9 メタノールおよびエタノール火炎の OH ラジカル分布測定結果

これらの測定結果と 2 次元火炎計算結果との比較を行う。DME2007, marinov, および sandiego2014 を使用したメタノール火炎 2 次元 OH ラジカル濃度計算結果を Fig. 3.10 に示す。火炎温度の比較と同様に 2 次元計算結果を高さ 9.7 mm 付近で整理して, 実験結果および計算結果と比較した。結果を Fig. 3.11 に示す。次いで, エタノール火炎の計算結果を Fig. 3.12 に, 高さ 9.7 mm 付近で整理したものを Fig. 3.13 に示す。3 つの反応機構を用いた 2 次元火炎計算との比較では, marinov モデルのメタノール計算結果で若干違いが見られたもの, おおむね同様の結果となった。いずれも実験結果とよい一致を示した。

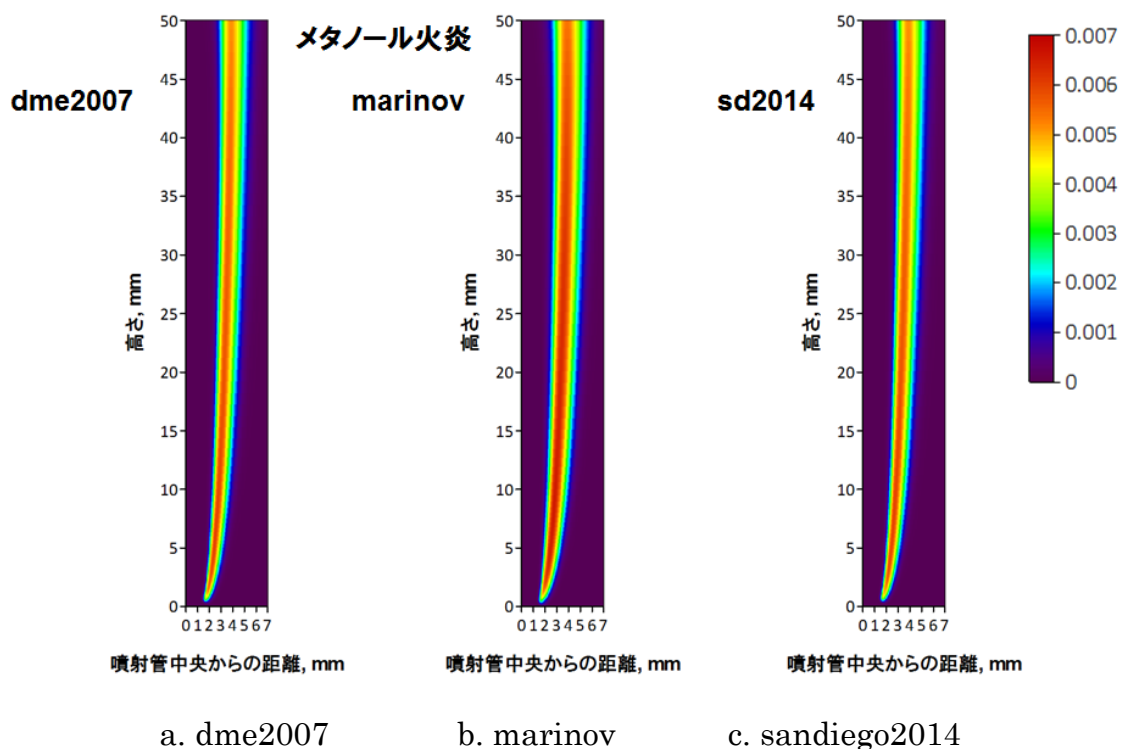


Fig. 3.10 メタノール火炎の 2 次元 OH ラジカル濃度分布

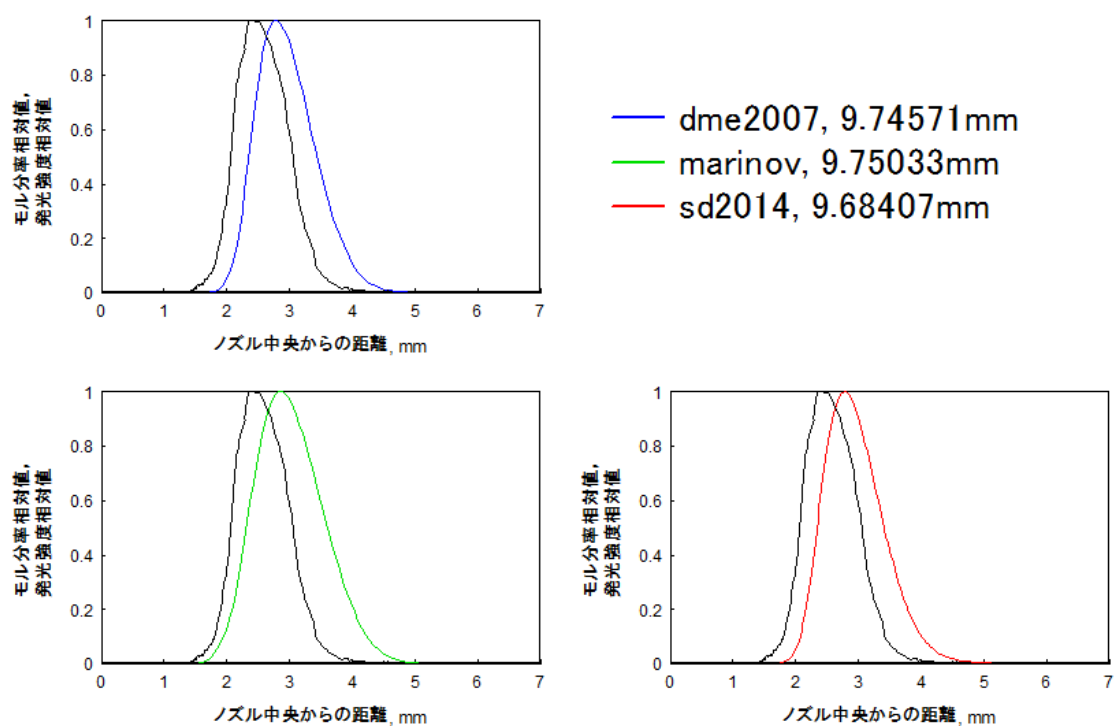


Fig. 3.11 実験結果および計算結果の比較：メタノール火炎

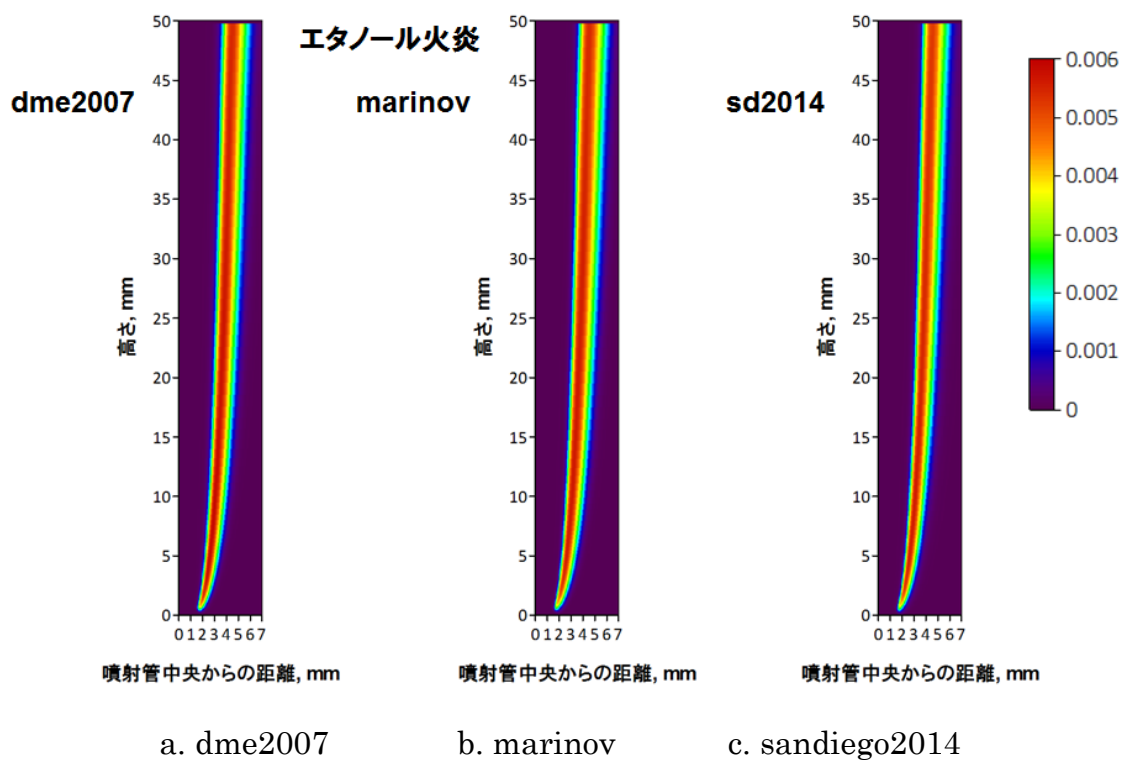


Fig. 3.12 エタノール火炎の2次元 OH ラジカル濃度分布

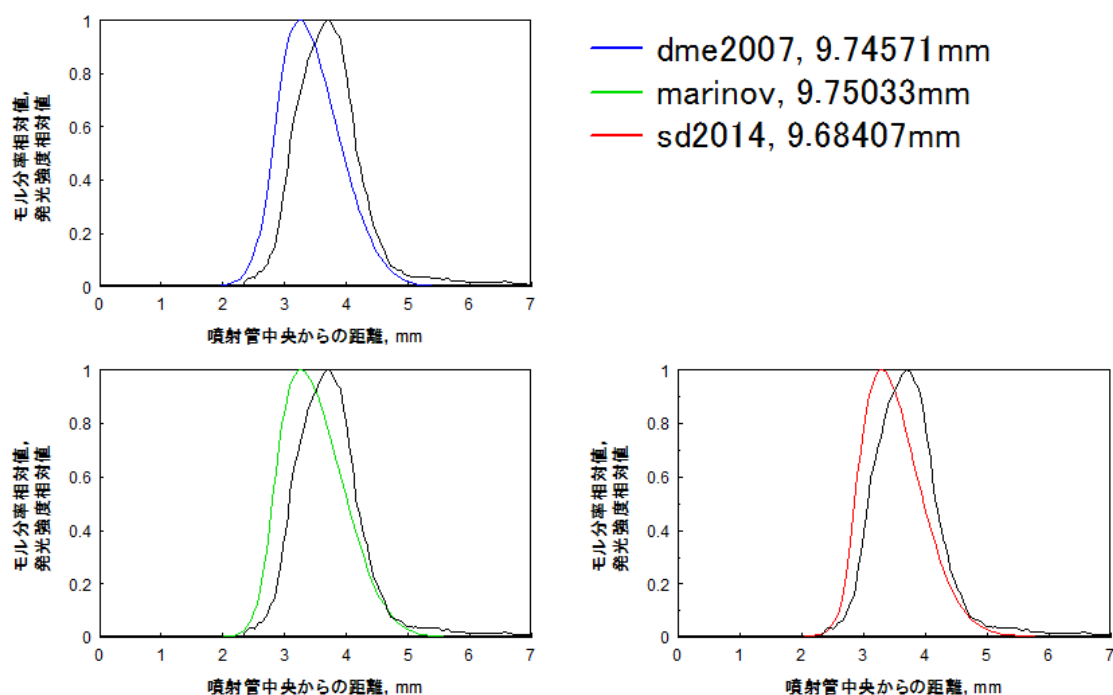


Fig. 3.13 実験結果および計算結果の比較：エタノール火炎

3.2 吹飛び

周囲空気流速を増加させることにより得られた、メタノール 50 vol% - 窒素 50 vol%およびエタノール 50 vol% - 窒素 50 vol%の吹飛び限界を Fig. 3.14 に、メタノール 60 vol% - 窒素 40 vol%およびエタノール 40 vol% - 窒素 60 vol%の吹飛び限界を Fig. 3.15 にそれぞれ示す。メタノールおよびエタノールが対窒素比率 50 vol%と同一であるときは、吹飛び限界は同様の傾向を示した。メタノール火炎は吹飛び後、全ての条件において下流で浮上り火炎を形成することなく消炎した。エタノール火炎は主流速が 150 cm/s 程度の比較的低速であるときには、吹飛び後に高さ 5 cm 程度の位置で数秒間不安定な浮上り火炎を形成し、消炎にいたる。他の流速では浮上り火炎を形成することなく消炎する。そのため本研究での流速域ではエタノール火炎も浮上り火炎を形成しないものと判断する。断熱火炎温度が等しくなるように濃度を設定したメタノール 60 vol% - 窒素 40 vol%およびエタノール 40 vol% - 窒素 60 vol%の場合、メタノールの吹飛び

限界周囲空気流速はエタノールのそれよりもはるかに大きい。メタノール火炎は吹飛び後、50 vol%と同様に全ての条件において下流で浮上り火炎を形成することなく消炎した。エタノール火炎では、主流速が約 250cm/s 以下である場合、吹飛びののち安定な浮上り火炎を形成する。その後、浮上り火炎は周囲空気の増加に伴って上昇し、消炎にいたる。また浮上り火炎形成後に周囲空気を減少させた場合はそれに伴って下降し、リムに再付着する。主流速が 250 - 300 cm/s 程度である場合も吹飛びののち安定な浮上り火炎を形成し、先ほど同様の火炎上昇、その後の消炎が確認される。浮上り火炎形成後に周囲空気を減少させた場合は火炎が徐々に下降するが、周囲空気の供給を停止するまでリムに再付着しない。

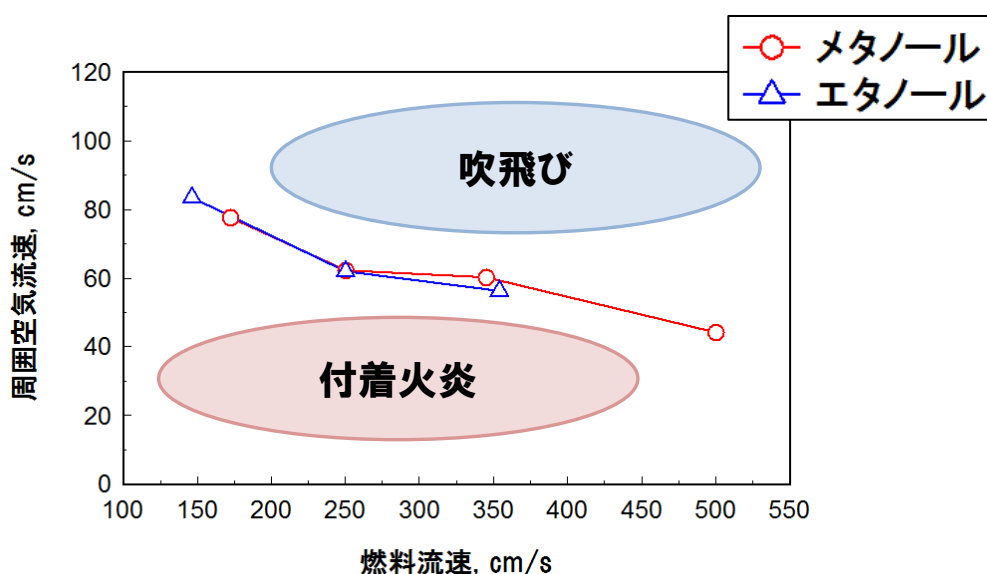


Fig. 3.14 メタノール 50 vol% - 窒素 50 vol%火炎および
エタノール 50 vol% - 窒素 50 vol%火炎の吹飛び限界

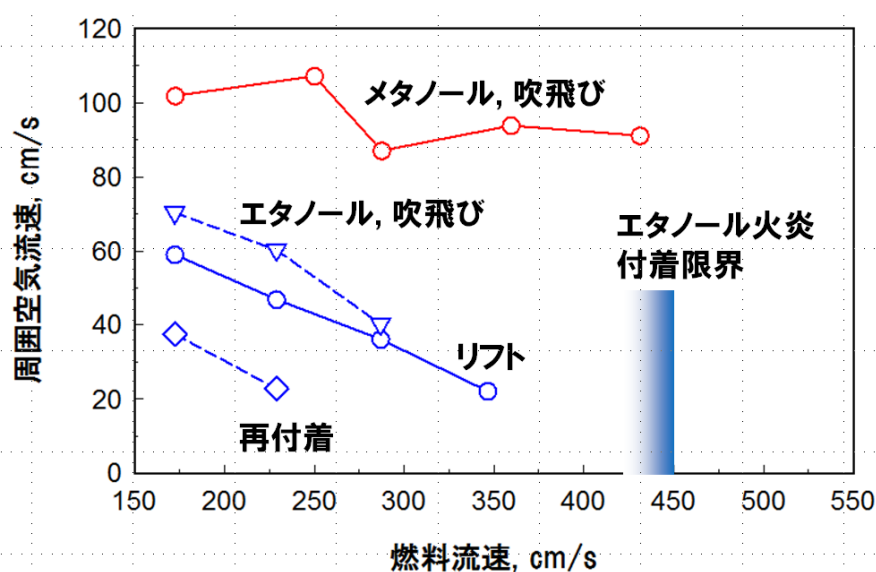
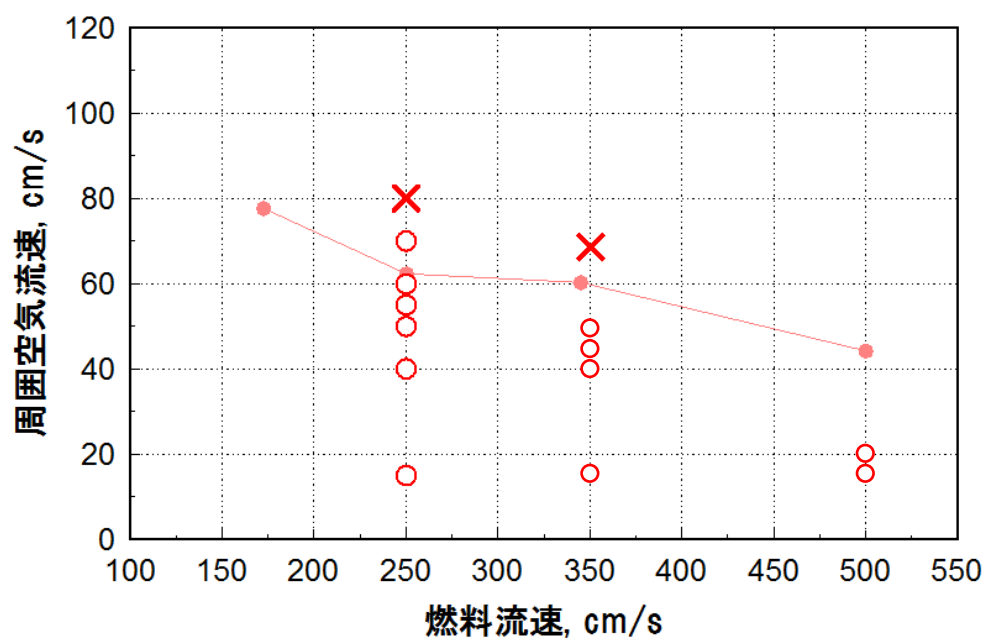
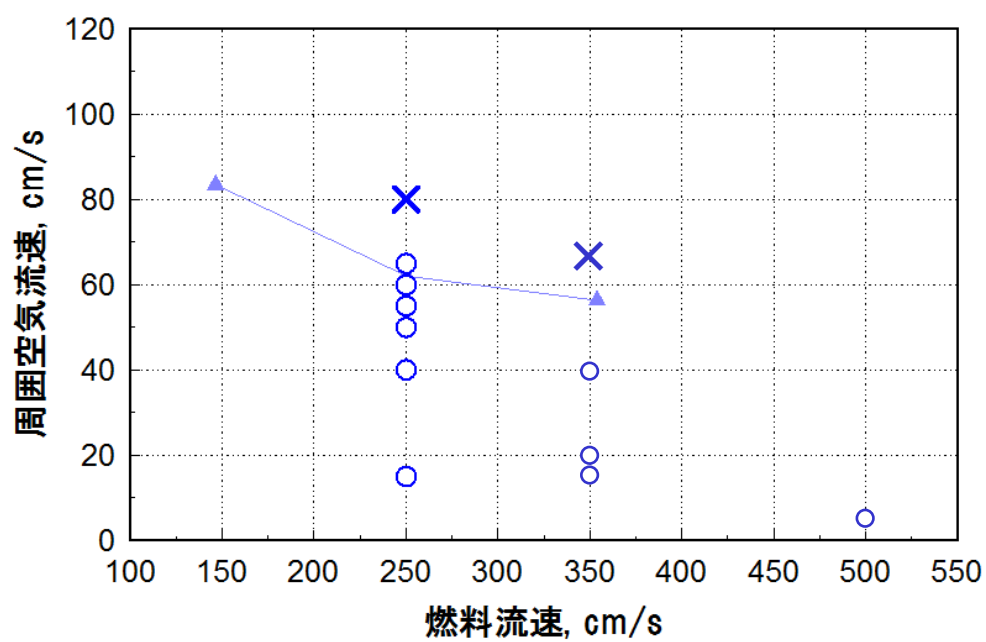


Fig. 3.15 メタノール 60 vol% - 窒素 40 vol% 火炎および
エタノール 40 vol% - 窒素 60 vol% 火炎の吹飛び限界

次に、2次元火炎計算によって得られた、主流速 250cm/s でのメタノール 50 vol% - 窒素 50 vol% およびエタノール 50 vol% - 窒素 50 vol% 火炎の安定燃焼範囲を Fig. 3.16 に示す。また、メタノール 60 vol% - 窒素 40 vol% およびエタノール 40 vol% - 窒素 60 vol% の安定燃焼範囲を Fig. 3.17 に示す。これらには実験結果も再掲する。十分な計算時間が経過した後に安定火炎が維持された場合には○を、火炎が維持されない場合には×をそれぞれ付している。2次元火炎計算における安定燃焼限界は実験から求められた吹飛びまたは浮上り限界とよく一致しており、2次元火炎計算によってメタノールおよびエタノールの吹飛び・浮上り限界を見積もることが可能であることを示している。



a. メタノール 50 vol% - 窒素 50 vol%



b. エタノール 50 vol% - 窒素 50 vol%

Fig. 3.16 数値計算から求められた安定燃焼範囲

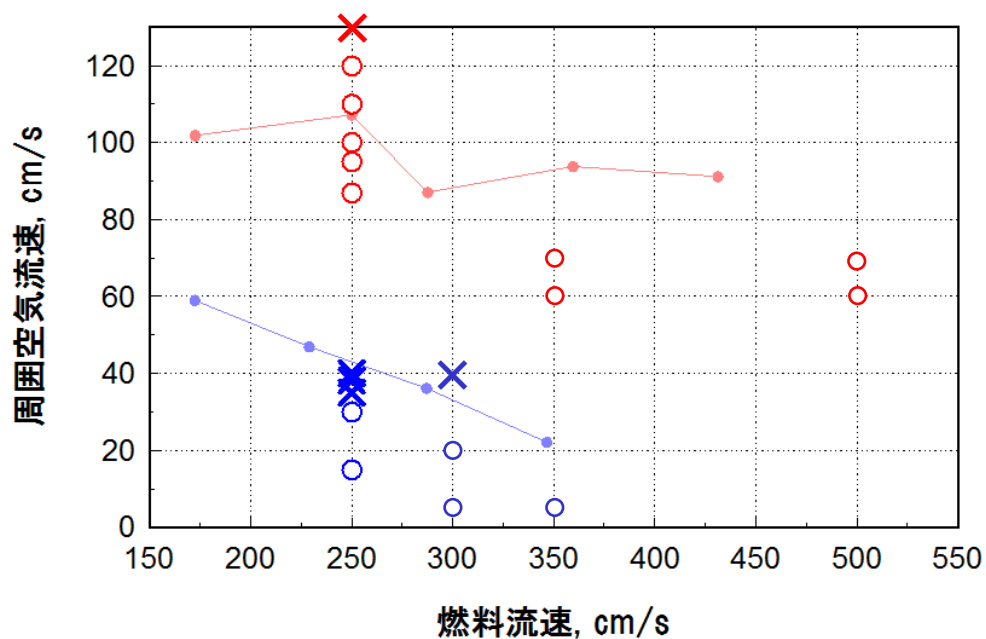


Fig. 3.17 数値計算から求められた安定燃焼範囲

メタノール 60 vol% - 窒素 40 vol%およびエタノール 40 vol% - 窒素 60 vol%

3.3 下流の火炎構造

本研究は火炎基部を解析対象としているが、下流にも一般的な拡散火炎とは異なる構造が見られたので、本節で数値計算結果を掲載する。通常、拡散火炎は Fig. 3.18^[106]に示すような模式図で説明される。これは同軸拡散火炎をある高さで水平方向に評価したもので、化学反応が極めて薄い面内で無限大に速く完結すると仮定した場合の火炎構造である。この場合、燃料および酸化剤は反応面で濃度ゼロとなる。実際の化学反応は有限の反応速度を持ち、反応帯はある厚みを持って存在する。そのような場合の拡散火炎の模式図を Fig. 3.19^[107]に示す。すなわち燃料および酸化剤は最高火炎温度を取る半径位置でゼロにならず、互いに相手側へ浸み出すような様態となる。

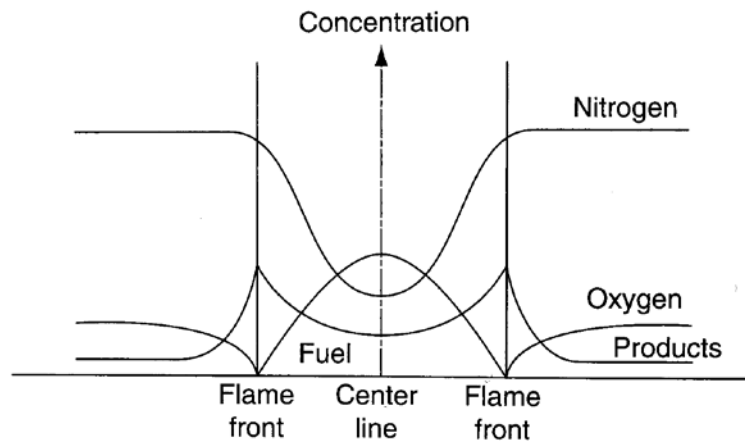


Fig. 3.18 気体燃料拡散火炎の模式図^[106]

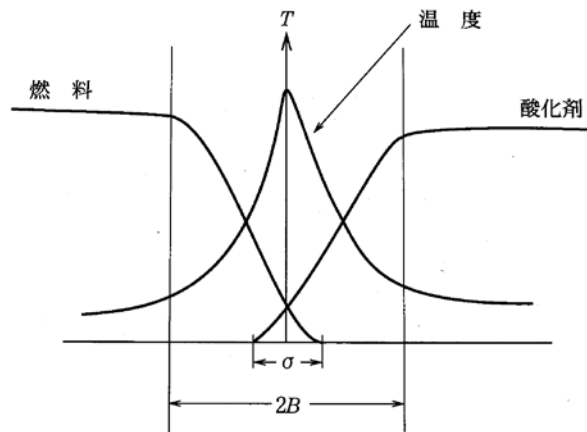


Fig. 3.19 厚みのある反応帯を有する気体燃料拡散火炎の模式図^[107]

本研究での数値計算結果の一例として、エタノール火炎の化学種濃度および発熱速度、ならびに火炎温度を Fig. 3.20 および Fig. 3.21 にそれぞれ示す。これは燃料濃度エタノール 50 vol% - 窒素 50 vol%，主流速 250 cm/s，および周囲空気流速 15 cm/s での 2 次元火炎計算結果を、高さ 30 mm で水平方向に評価したものである。Fig. 3.20 においてエタノールおよび酸素の分布は Fig. 3.19 とは逆の傾向を示している。すなわち、互いに混合する前に濃度ゼロになっている。エタノールの減少に伴ってアセチレン、エチレン、およびエタン (C_2H_2 , C_2H_4 , および C_2H_6) の濃度が増加していることから、エタノールが分解され、それらを生成していることが分かる。黒色で描画された発熱速度が負号すなわち吸熱

を示しており，そのことからエタノール分解反応が生じていることが分かる．

Fig. 3.21 に示すとおり火炎温度分布がブロードであり， エタノールが幅広く熱を受けて早い段階で熱分解されているものと推測される．

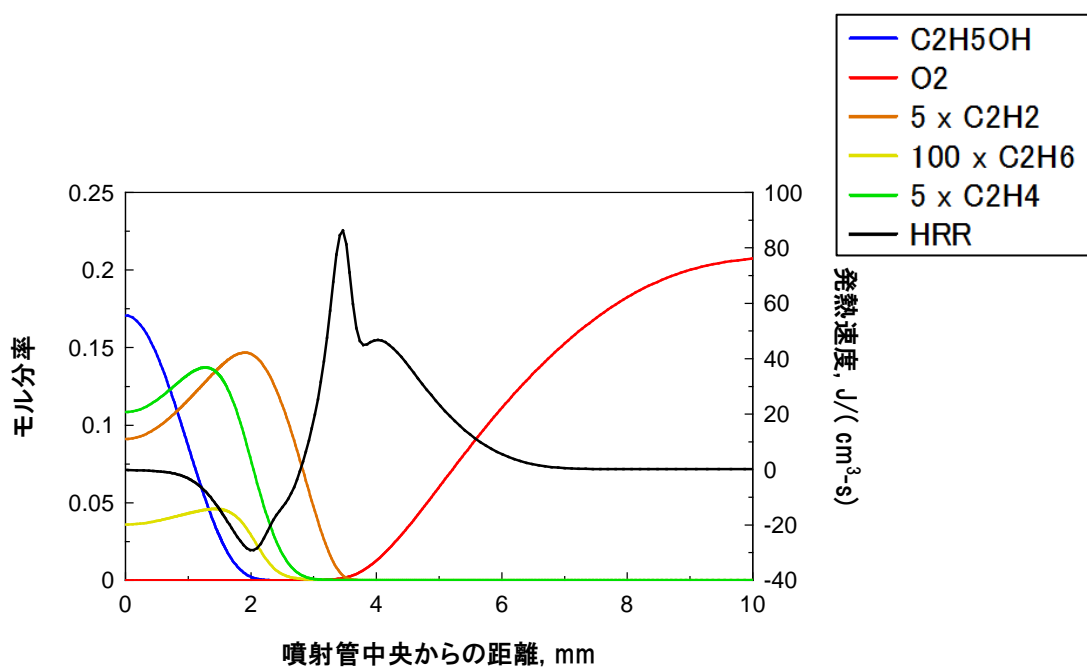


Fig. 3.20 化学種濃度および発熱速度

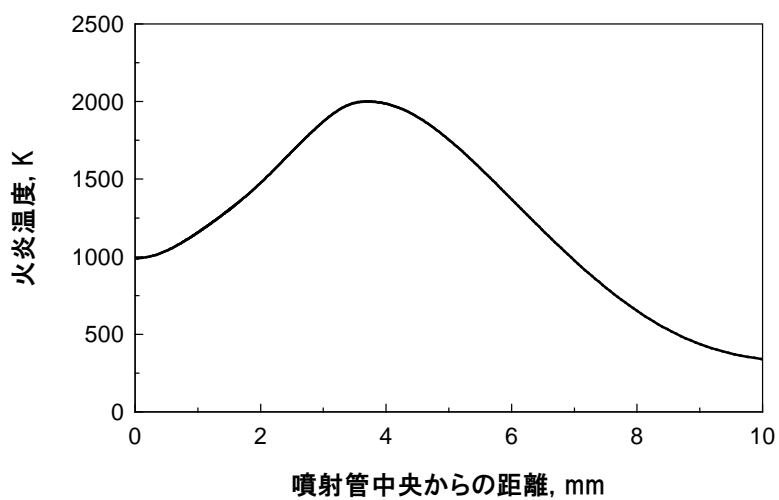


Fig. 3.21 火炎温度

第4章 メタノールおよびエタノール拡散火炎の吹飛び現象を支配する要因

4.1 拡散火炎基部の予混合性

メタノールおよびエタノール拡散火炎の吹飛び現象を支配する要因を考察するために、まず燃料濃度エタノール 50 vol% - 窒素 50 vol%で、主流速 250 cm/s・周囲空気流速 15 cm/s の火炎を調べる。火炎基部の燃料モル分率および酸素モル分率、火炎温度、発熱速度、ならびに周囲空気流速を Fig. 4.1 から Fig. 4.4 にそれぞれ示す。周囲空気の評価には、流速をその点の密度で除した質量流速（単位； $\text{g}/(\text{cm}^2\cdot\text{s})$ ）を用いる。火炎近傍では温度が高く、そのような場の流速には気体の膨張による見かけ上の流速増分が含まれる。その効果を差し引くためである。

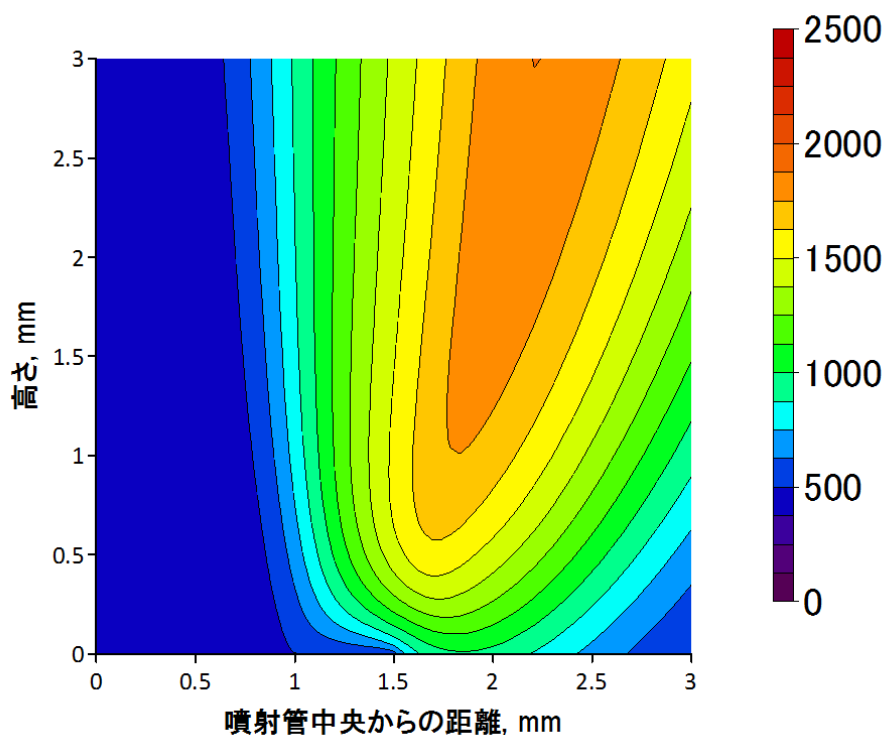


Fig. 4.1 火炎温度；
エタノール 50 vol%，周囲空気流速 15 cm/s

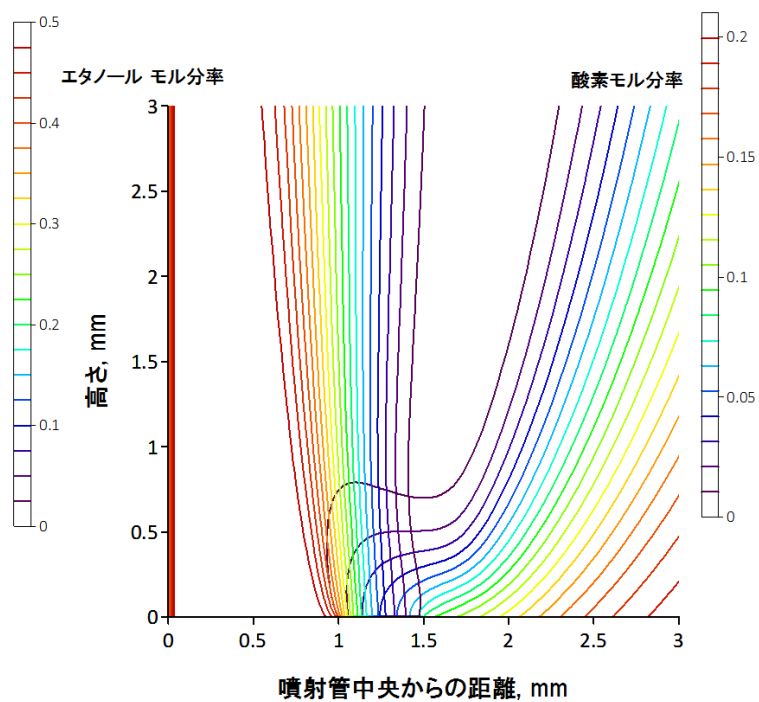


Fig. 4.2 エタノールおよび酸素モル分率；
エタノール 50 vol%， 周囲空気流速 15 cm/s

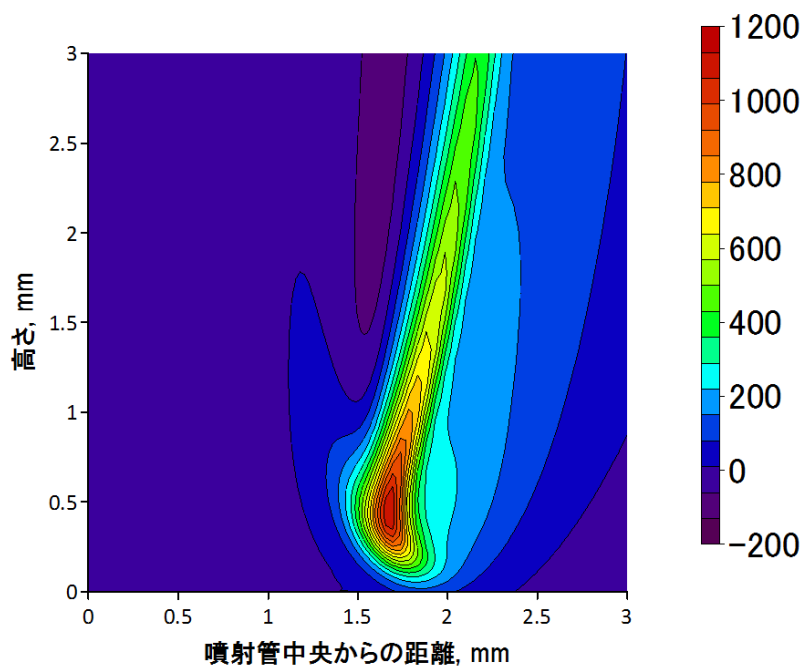


Fig. 4.3 発熱速度；エタノール 50 vol%， 周囲空気流速 15 cm/s

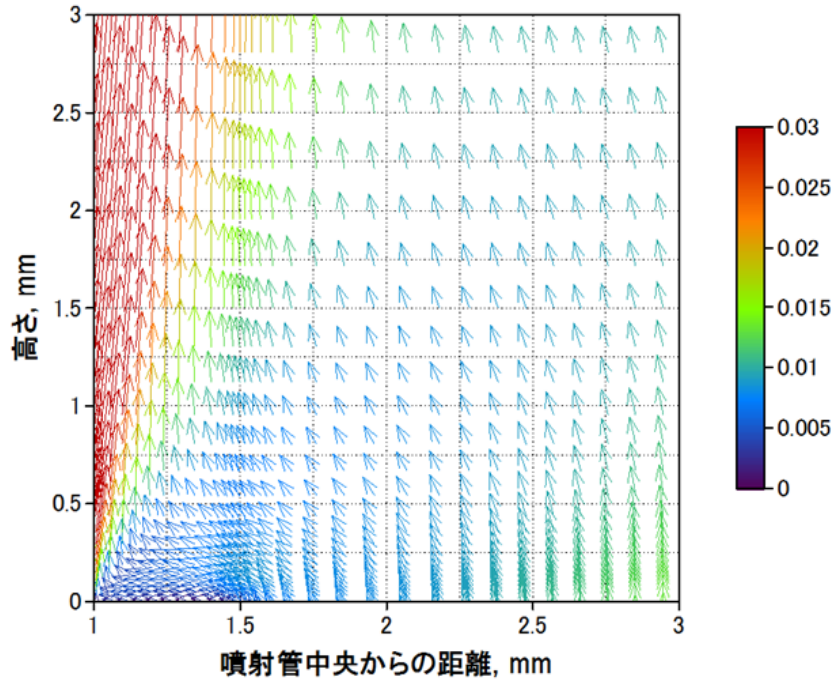


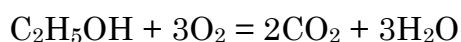
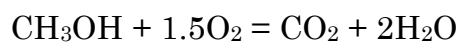
Fig. 4.4 質量流束；エタノール 50 vol%，周囲空気流速 15 cm/s

Fig. 4.2 に示す結果から，リム上部には未燃のメタノールおよび酸素から成る予混合気が存在することが確認できる．予混合気の性質を定量的に評価するために $\text{mixedness}^{[99]}$ を用いる． mixedness とは燃料および酸化剤の混合強度を表すもので，以下のように定義される．

$$Z_{FO} \equiv \begin{cases} \frac{Y_O}{j} & \left(Y_F \geq \frac{Y_O}{j} \right) \\ -Y_f & \left(\frac{Y_O}{j} > Y_F \right) \end{cases}$$

$$j = \frac{W_O v_O}{W_F v_F}$$

ν , Y , および W は量論比, 質量分率, および分子量をそれぞれ表し, 添え字の F および O は燃料成分および酸化剤成分をそれぞれ表す. ここで, メタノールおよびエタノールの総括一段酸化反応は以下の示すとおりである.



よって, メタノール火炎では $\nu_F=1$, $\nu_O=1.5$ となり, エタノール火炎では $\nu_F=1$, $\nu_O=3$ である. またメタノール分子量, エタノール分子量, および酸素分子量がそれぞれ 32.04243 g/mol, 46.06952 g/mol, および 31.99880 g/mol である. 以上より, メタノール火炎では $j = 1.49796$, エタノール火炎では $j = 2.08373$ と計算される.

ある混合気の **mixedness** が正号と計算された場合にはその混合気は燃料過多であることを, 負号と計算された場合には燃料希薄であることを意味する. また **mixedness** の絶対値が大きいほどより強く混合されている. **mixedness** の適用例として, 燃焼途中で消炎したときの噴流拡散火炎の構造を Fig. 4.5 に示す^[99]. このように **mixedness** を用いることにより, 燃料および酸化剤の混合強度を定量的かつ視覚的に表すことができる.

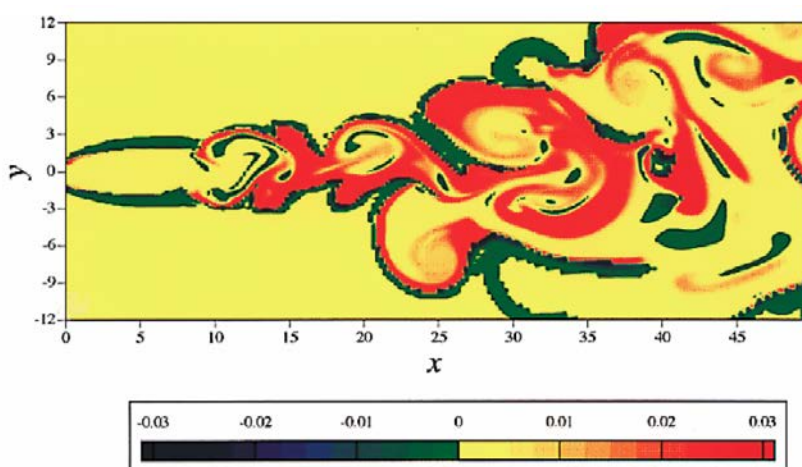


Fig. 4.5 メタン噴流拡散火炎の **mixedness**^[99]

燃料濃度エタノール 50 vol% - 窒素 50 vol%で周囲空気流速 15 cm/s の火炎の mixedness を Fig. 4.6 に示す.

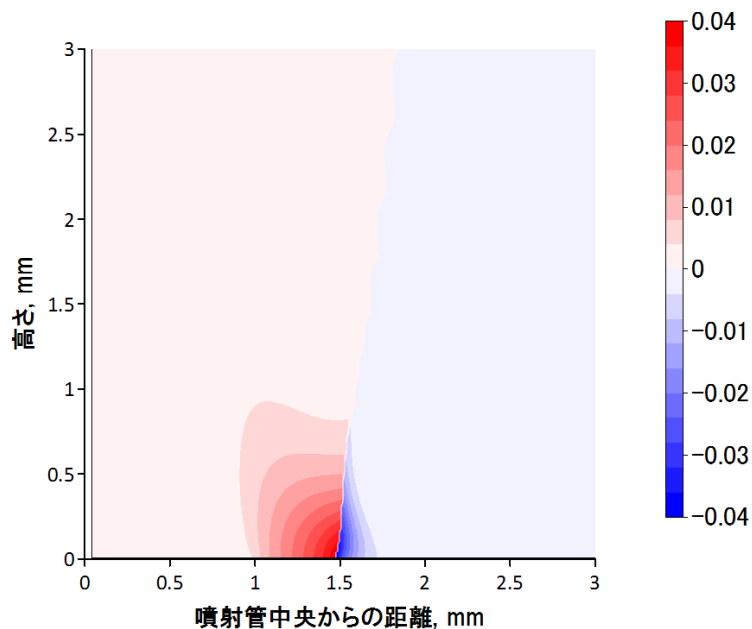


Fig. 4.6 mixedness ; メタノール 50 vol%, 周囲空気 15cm/s

続いて, Table 4.1 に示す燃料濃度および周囲空気流速の火炎を対象に mixedness を求めた. 結果を Fig. 4.7 から Fig. 4.13 に示す. これらの結果から, 全ての場合で火炎基部に未燃混合気が存在することが確認できる.

Table 4.1 他の解析対象の火炎

燃料種類	燃料濃度 vol%	主流速 cm/s	周囲空気流速 cm/s
エタノール	50	250	55
	40		15
	40		30
メタノール	50		15
	50		55
	60		15
	60		100

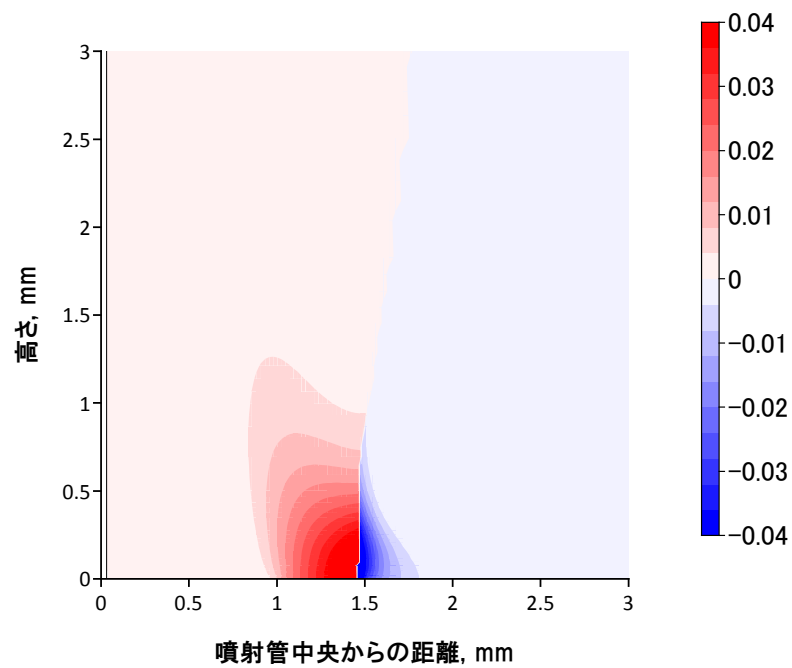


Fig. 4.7 mixedness ; エタノール 50 vol%, 周囲空気 55 cm/s

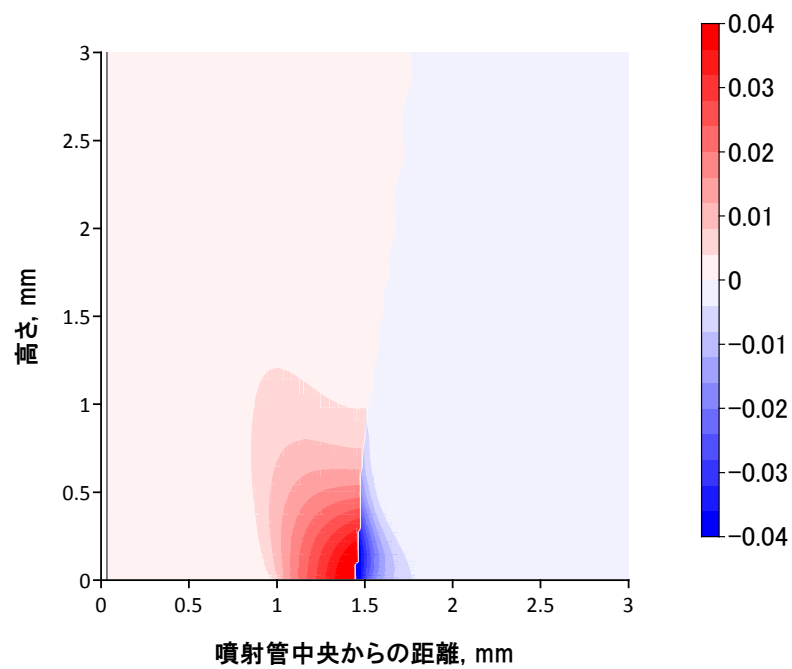


Fig. 4.8 mixedness ; エタノール 40 vol%, 周囲空気 15 cm/s

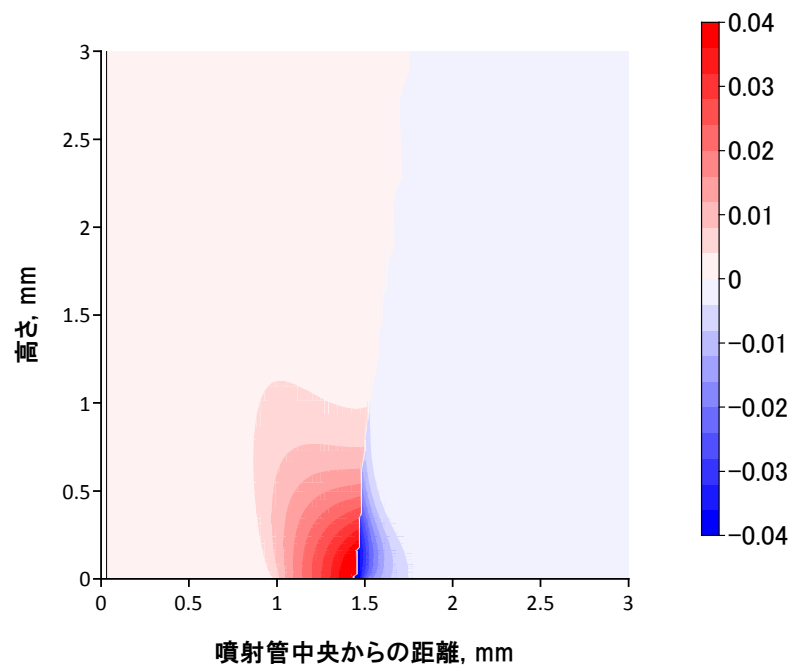


Fig. 4.9 mixedness ; エタノール 40 vol%, 周囲空気 30 cm/s

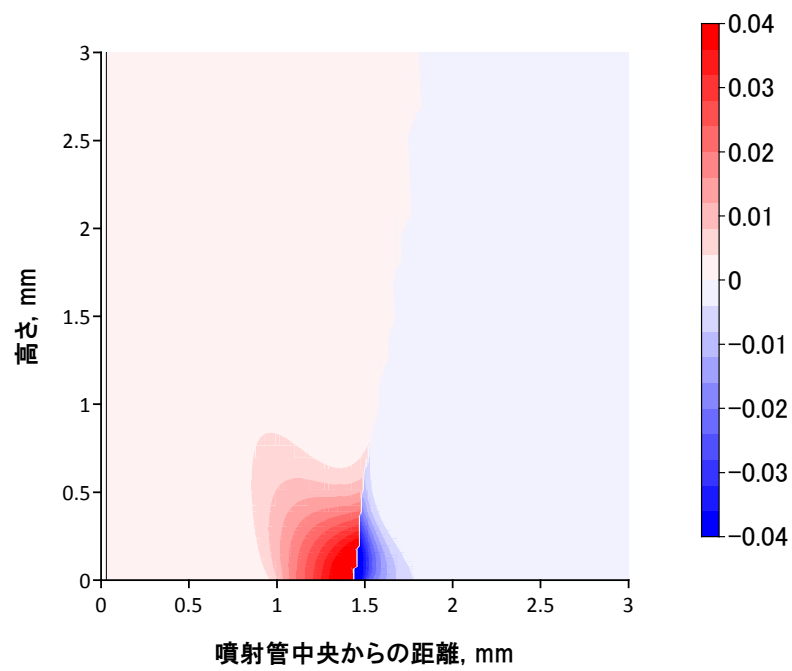


Fig. 4.10 mixedness ; メタノール 50 vol%, 周囲空気 15 cm/s

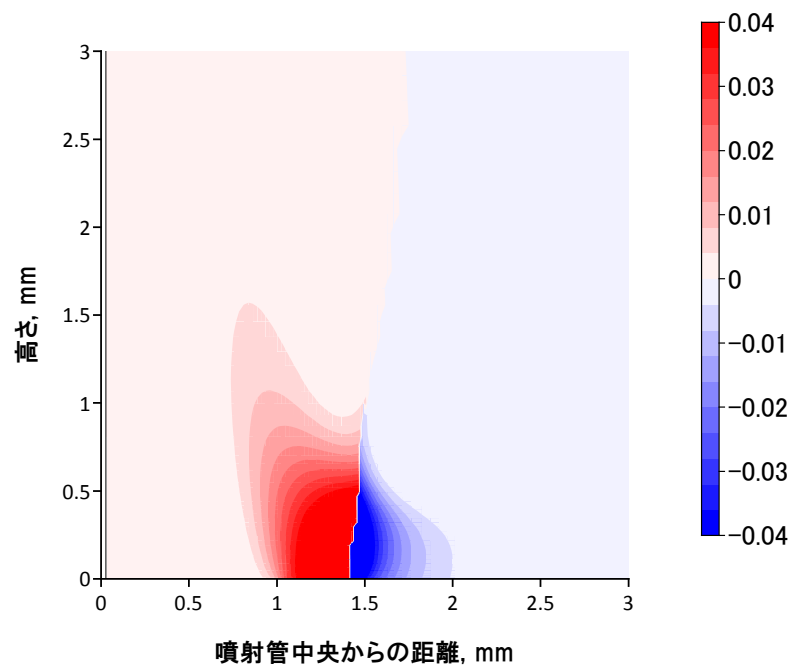


Fig. 4.11 mixedness ; メタノール 50 vol%, 周囲空気 55 cm/s

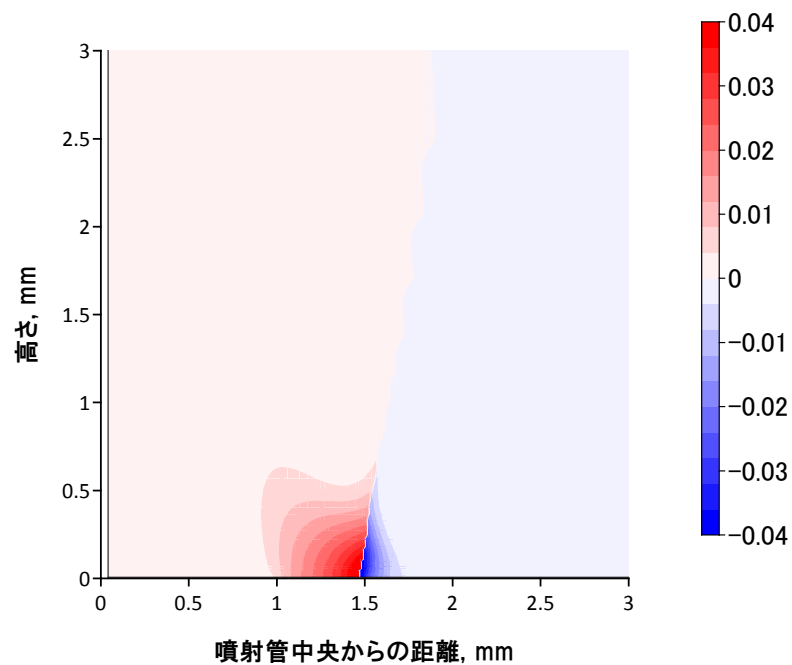


Fig. 4.12 mixedness ; メタノール 60 vol%, 周囲空気 15 cm/s

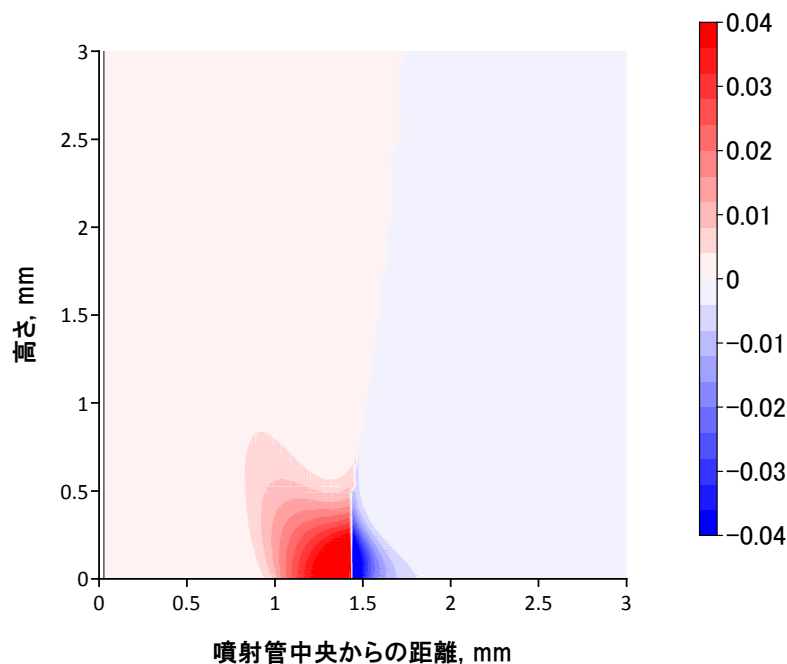


Fig. 4.13 mixedness ; メタノール 60 vol%, 周囲空気 100 cm/

4.2 吹飛び現象の考察

リム上部の混合気濃度および温度から計算される 1 次元層流燃焼速度を「潜在燃焼速度」と定義し、吹飛び現象の差異を潜在燃焼速度および火炎位置の変化から考察する。

4.2.1 潜在燃焼速度

前節で示したとおりリム上部には未燃混合気が存在するが、それに加えて下流の火炎帯から拡散および対流によって輸送された既燃ガスが存在する。本論文ではリム上部に存在する化学種濃度で初期温度 800 K とした場合の、CHEMKIN-PREMIX で計算される 1 次元層流燃焼速度を「潜在燃焼速度」と定義する。CHEMKIN-PREMIX で計算された層流燃焼速度にはその気体の膨張による見かけ上の燃焼速度増分が含まれるが、初期温度が 800 K と高いためにその効果が比較的大きい。その効果をキャンセルするために、層流燃焼速度を 800 K の未燃混合気の密度で除し、質量燃焼速度（単位； $\text{g}/(\text{cm}^2\cdot\text{s})$ ）として評

価に用いる。

燃料濃度がエタノール 50 vol% - 窒素 50 vol%で周囲空気流速 15 cm/s である火炎の基部付近の当量比および火炎温度分布を Fig. 4.14 に示す。表示範囲は半径方向 1.45 - 1.55 mm, 高さ方向 0 - 1 mm である。当量比 1 および火炎温度 800 K の境界がそれぞれ太く描画されている。Fig. 4.14 に示した 1 - 8 番の箇所で潜在燃焼速度を評価する。

同様の火炎のエタノール消費速度および火炎温度分布を Fig. 4.15 に示す。エタノール消費速度 $1.0 \times 10^{-4} \text{ mol}/(\text{cm}^3 \cdot \text{s})$ および火炎温度 800 K の境界がそれぞれ太く描画されている。800 K を取る位置でのエタノール消費速度は最大値の 2 - 3 % 程度であり、当該位置のエタノールは未燃状態で存在すると判断される。

Fig. 4.14 に示した 1 - 8 番の潜在燃焼速度を Table 4.2 および Fig. 4.16 に示す。Table 4.2 には各位置に存在する化学種の濃度および当量比も示している。

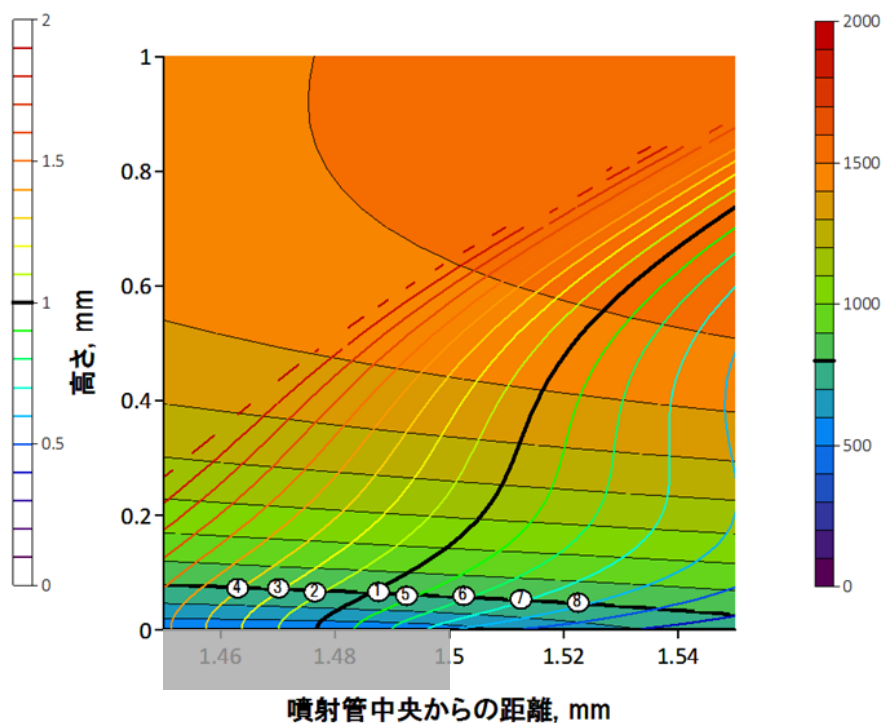


Fig. 4.14 当量比および火炎温度；エタノール 50 vol%, 周囲空気 15 cm/s

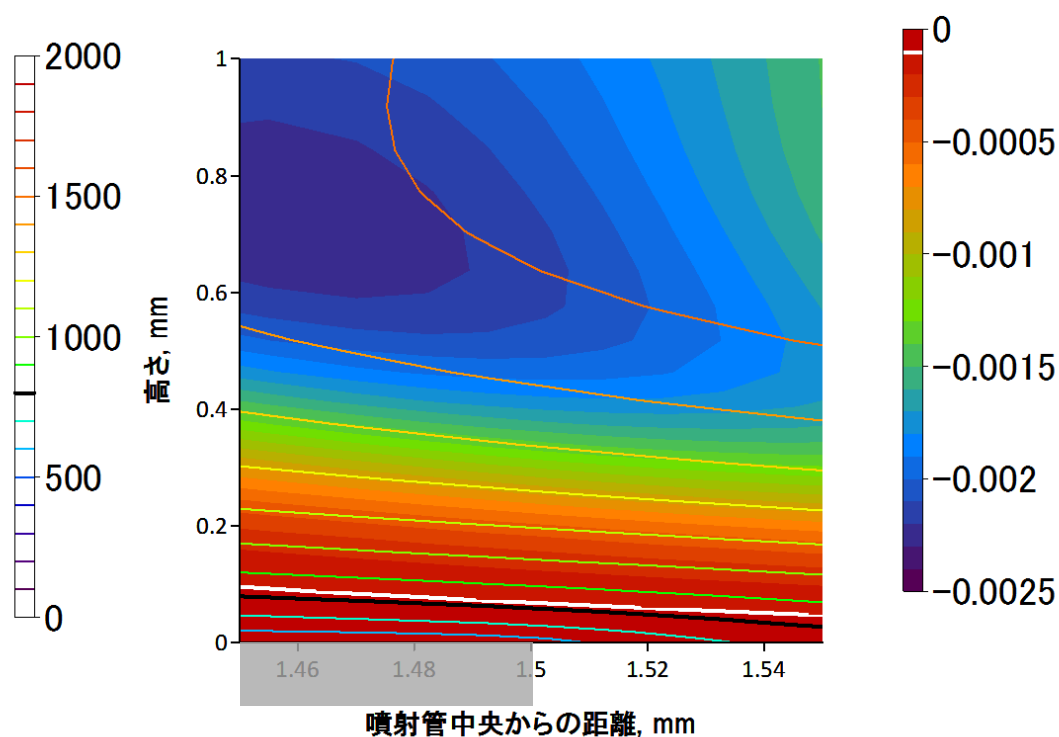


Fig. 4.15 エタノール消費速度および火炎温度；
エタノール 50 vol%，周囲空気 15 cm/s

Table 4.2 各位置の潜在燃焼速度および化学種濃度（モル分率）

#	C ₂ H ₅ OH	N ₂	O ₂	CO ₂	H ₂ O	CO	H ₂	モル分率 合計	温度, K	Su, g/(cm ² -s)	Φ
①	2.34E-2	0.711	7.11E-2	4.39E-2	0.104	2.93E-2	6.12E-3	0.9890	804.98	1.65E-2	0.99
②	2.58E-2	0.710	6.94E-2	4.41E-2	0.104	2.96E-2	6.18E-3	0.9900	791.48	1.00E-2	1.12
③	2.73E-2	0.709	6.76E-2	4.45E-2	0.105	3.00E-2	6.33E-3	0.9892	803.61	7.10E-3	1.21
④	2.91E-2	0.708	6.66E-2	4.45E-2	0.105	3.01E-2	6.37E-3	0.9890	795.92	5.11E-3	1.31
⑤	2.23E-2	0.714	7.27E-2	4.36E-2	0.103	2.90E-2	5.98E-3	0.9901	792.57	1.74E-2	0.92
⑥	2.03E-2	0.715	7.43E-2	4.34E-2	0.103	2.87E-2	5.93E-3	0.9904	806.65	1.95E-2	0.82
⑦	1.83E-2	0.717	7.68E-2	4.28E-2	0.102	2.81E-2	5.76E-3	0.9908	804.21	1.90E-2	0.71
⑧	1.64E-2	0.720	7.94E-2	4.23E-2	0.101	2.75E-2	5.61E-3	0.9913	804.42	1.76E-2	0.62

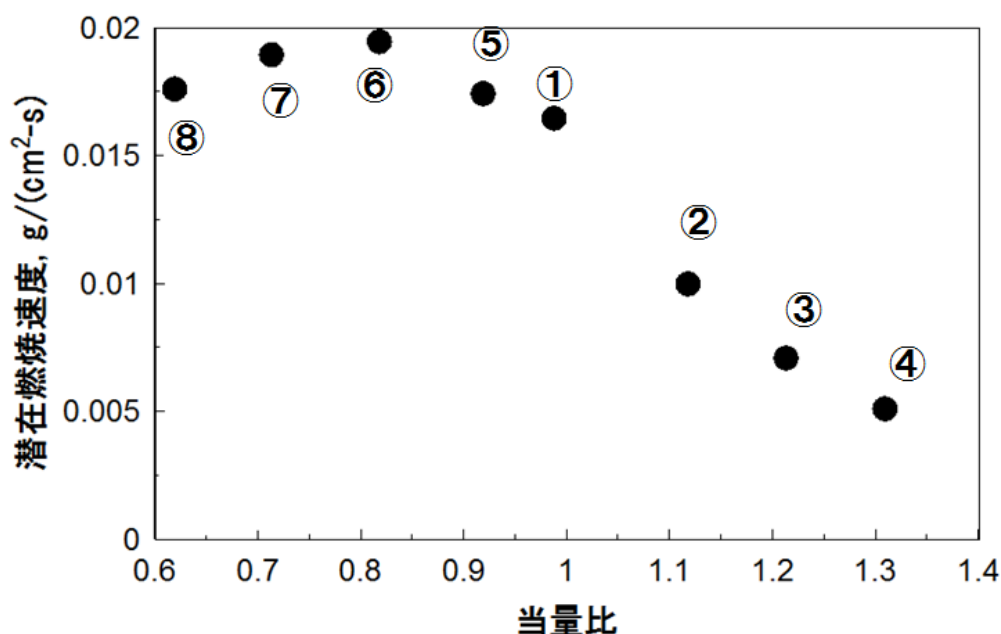


Fig. 4.16 潜在燃焼速度；エタノール 50 vol%，周囲空気流速 15 cm/s

基部付近の発熱速度および当量比を Fig. 4.17 に示す．表示範囲は半径方向 1.45 - 2 mm，高さ 0 - 2 mm である．Fig. 4.17 には，1 番の箇所を表す点，ならびにその点の対流流束，拡散流速，およびそれらの合成ベクトルも併せて示されている．燃料流側上方（左上方）へ向いているものが対流流束ベクトルで，空気流側へ向いているものが拡散流束ベクトルであり，それぞれ灰色で表されている．合成ベクトルは赤色で表されており，正味の流束を意味する．

次いで，基部付近の発熱速度および周囲空気流束を Fig. 4.18 に示す．本図には，Fig. 4.17 で示した正味流束ベクトルから類推される未燃混合気の輸送先も白線で矩形に示されている．この領域は発熱速度 $500 \text{ J}/(\text{cm}^3\cdot\text{s})$ を取る位置を囲むもので，周囲空気流束はおよそ $8.3 \times 10^{-2} \text{ g}/(\text{cm}^2\cdot\text{s})$ 程度である．

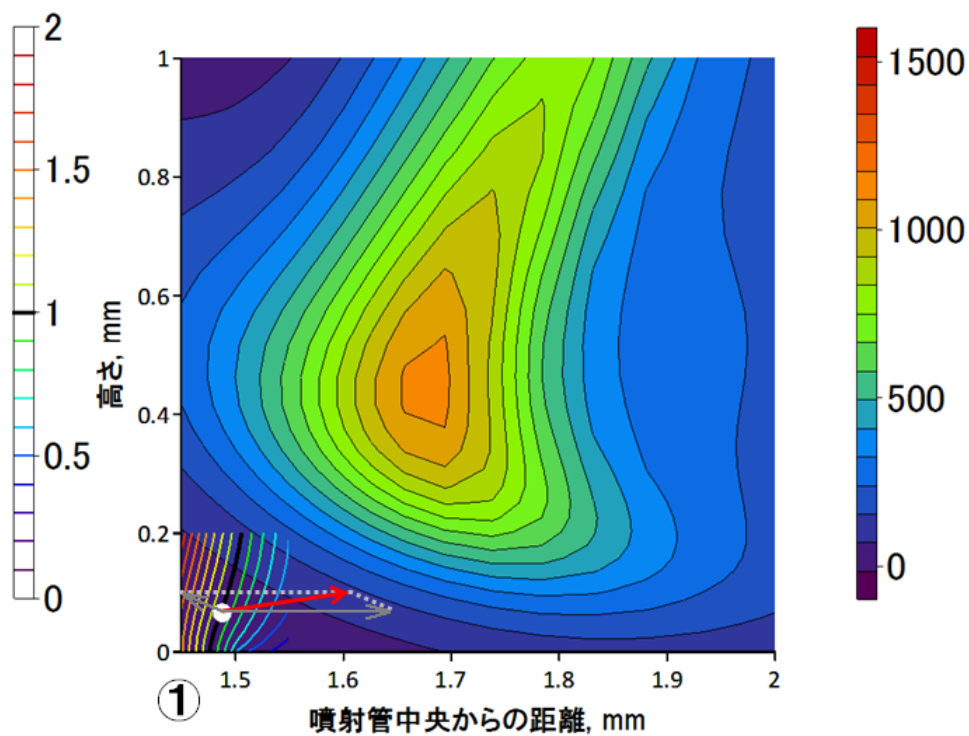


Fig. 4.17 発熱速度，当量比，および1番における正味流束；

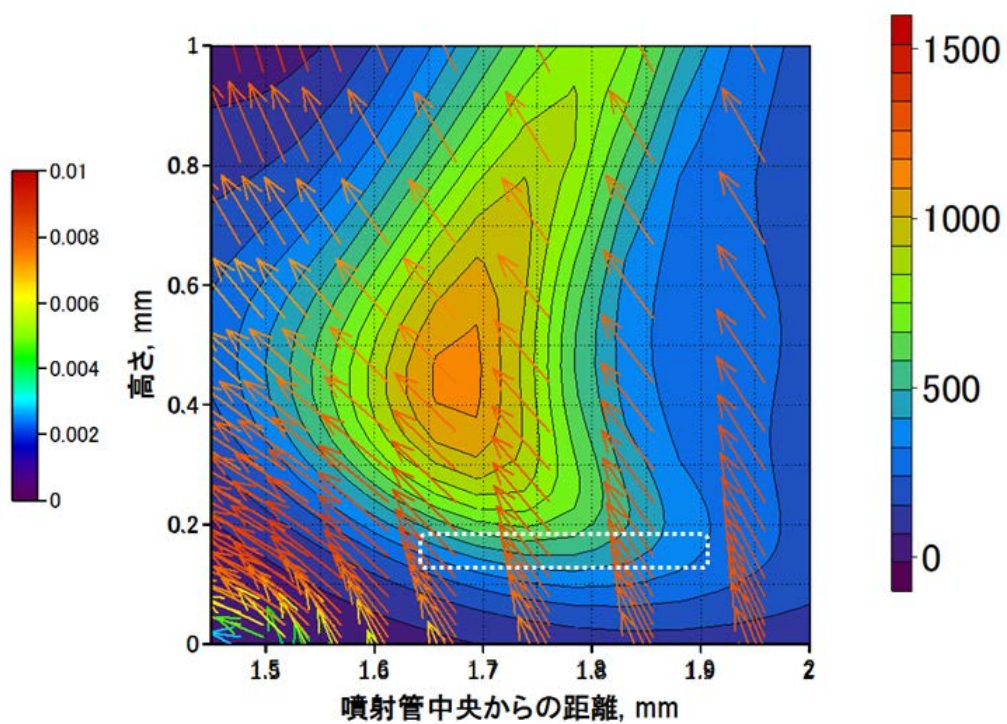


Fig. 4.18 発熱速度および周囲空気流束；

次に、基部付近の濃度分布構造を考察する．火炎温度 600 K, 700 K, および 800 K の等温線，ならびに，エタノールおよび酸素のモル分率等値線を Fig. 4.19 に示す．Fig. 4.19 には，各等温線上の評価点（5 点ずつ，合計 15 点）の位置も示されている．各評価点上の化学種モル分率，その点の化学種濃度および温度で計算される潜在燃焼速度，ならびに当量比を温度ごとに Table 4.3, Table 4.4, および Table 4.5 に示す．下流の火炎から拡散および対流によって輸送される CO_2 , H_2O , CO , および H_2 の濃度に大きな差はなく，あたかもバックグラウンドのように存在している．エタノールおよび酸素はその既燃ガスのバックグラウンド中を拡散および対流で漂い，潜在的に燃焼速度を持ちうる予混合気をリム上で形成する．

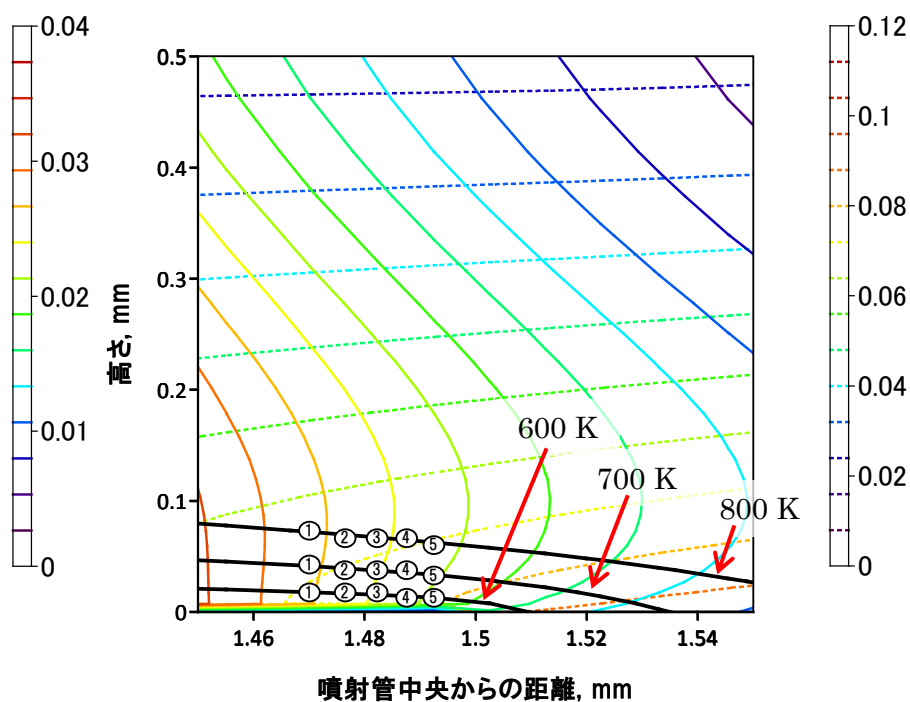


Fig. 4.19 濃度分布構造の評価点

Table 4.3 600 K での濃度分布構造

#	C ₂ H ₅ OH	N ₂	O ₂	CO ₂	H ₂ O	CO	H ₂	temp	Su g/(cm ² -s)	Φ
①	2.69E-2	0.712	7.27E-2	4.28E-2	0.101	2.86E-2	5.28E-3	599.69	2.96E-3	1.11
②	2.52E-2	0.714	7.42E-2	4.26E-2	0.101	2.83E-2	5.23E-3	605.74	5.11E-3	1.02
③	2.36E-2	0.715	7.57E-2	4.23E-2	0.101	2.80E-2	5.18E-3	612.57	7.65E-3	0.94
④	2.21E-2	0.717	7.76E-2	4.19E-2	0.100	2.76E-2	5.01E-3	592.09	7.85E-3	0.85
⑤	2.07E-2	0.718	7.91E-2	4.16E-2	0.099	2.73E-2	4.96E-3	601.07	7.82E-3	0.79

Table 4.4 700 K での濃度分布構造

#	C ₂ H ₅ OH	N ₂	O ₂	CO ₂	H ₂ O	CO	H ₂	temp	Su g/(cm ² -s)	Φ
①	2.72E-2	0.711	7.07E-2	4.34E-2	0.103	2.91E-2	5.79E-3	706.21	5.04E-3	1.15
②	2.55E-2	0.712	7.25E-2	4.31E-2	0.102	2.87E-2	5.65E-3	694.37	7.59E-3	1.06
③	2.41E-2	0.714	7.37E-2	4.29E-2	0.102	2.85E-2	5.61E-3	701.97	1.06E-2	0.98
④	2.29E-2	0.715	7.47E-2	4.28E-2	0.101	2.83E-2	5.58E-3	709.52	1.26E-2	0.92
⑤	2.16E-2	0.716	7.64E-2	4.24E-2	0.101	2.80E-2	5.45E-3	697.90	1.27E-2	0.85

Table 4.5 800 K での濃度分布構造

#	C ₂ H ₅ OH	N ₂	O ₂	CO ₂	H ₂ O	CO	H ₂	temp	Su g/(cm ² -s)	Φ
①	2.73E-2	0.709	6.76E-2	4.45E-2	0.105	3.00E-2	6.33E-3	803.61	7.10E-3	1.21
②	2.58E-2	0.710	6.94E-2	4.41E-2	0.104	2.96E-2	6.18E-3	791.48	1.00E-2	1.12
③	2.45E-2	0.711	7.03E-2	4.40E-2	0.104	2.95E-2	6.15E-3	798.44	1.37E-2	1.05
④	2.34E-2	0.711	7.11E-2	4.39E-2	0.104	2.93E-2	6.12E-3	804.98	1.65E-2	0.99
⑤	2.23E-2	0.714	7.27E-2	4.36E-2	0.103	2.90E-2	5.98E-3	792.57	1.74E-2	0.92

続いて、燃料濃度がエタノール 50 vol% - 窒素 50 vol%で周囲空気流速 55 cm/s である場合の同軸火炎を対象に、先ほど同様の解析を行う。2次元温度分布および発熱速度分布を Fig. 4.20 および Fig. 4.21 にそれぞれ示す。また、基部付近の当量比および火炎温度分布を Fig. 4.22 に、ならびに潜在燃焼速度を Fig. 4.23 にそれぞれ示す。

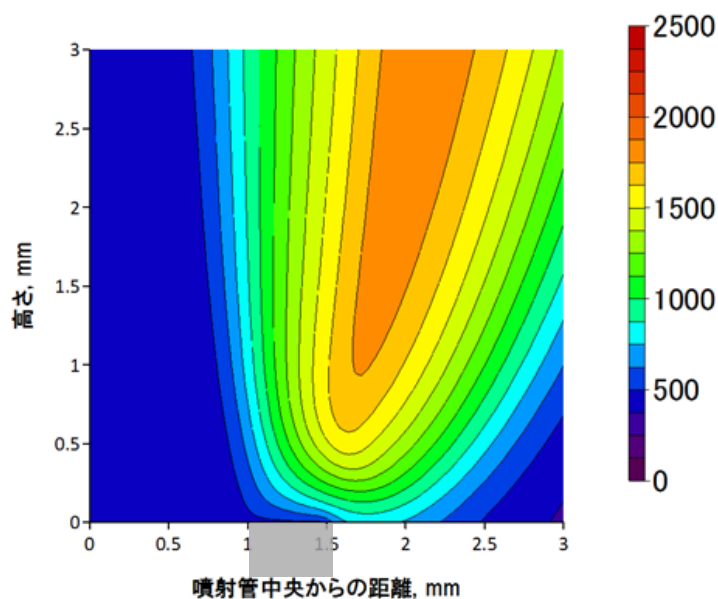


Fig. 4.20 火炎温度；エタノール 50 vol%，周囲空気流速 55 cm/s

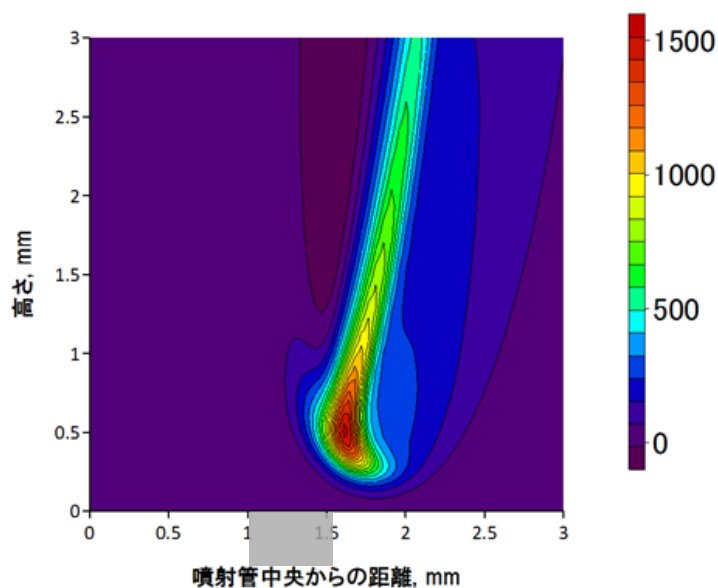


Fig. 4.21 発熱速度；エタノール 50 vol%，周囲空気流速 55 cm/s

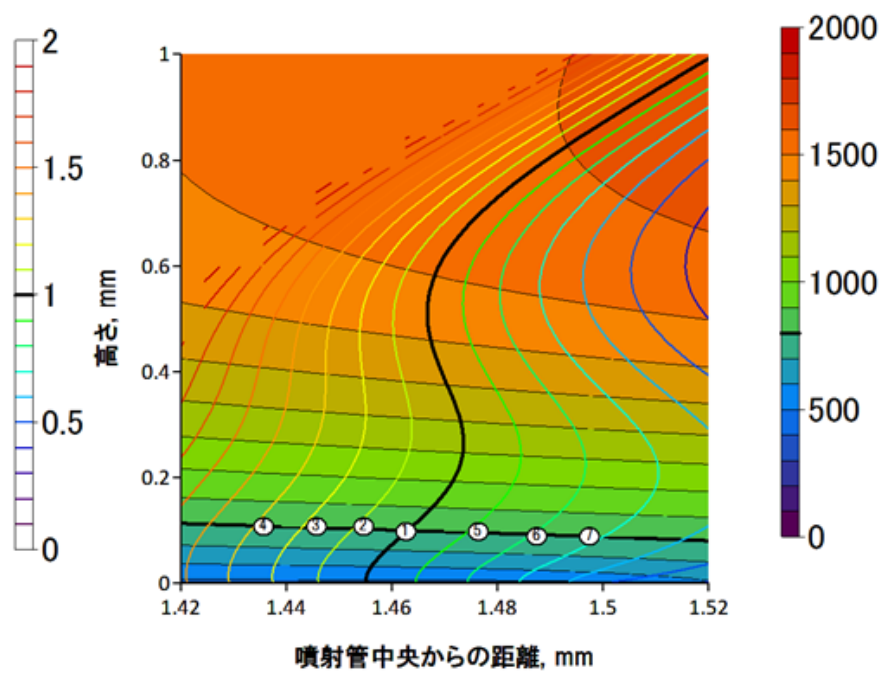


Fig. 4.22 発熱速度；エタノール 50 vol%， 周囲空気流速 55 cm/s

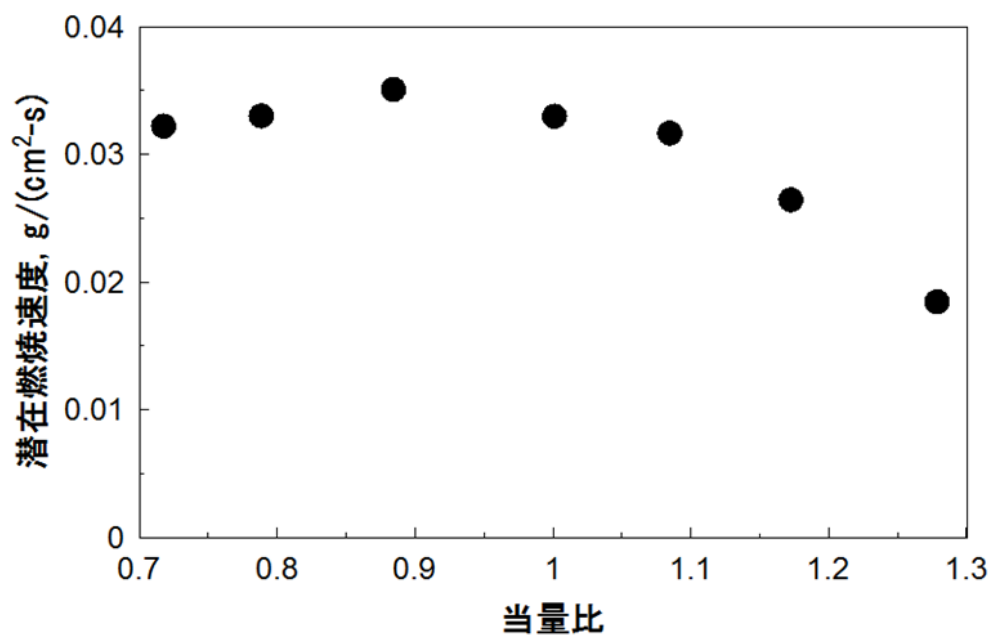


Fig. 4.23 潜在燃焼速度；エタノール 50 vol%， 周囲空気流速 55 cm/s

基部付近の発熱速度および周囲空気流束を Fig. 4.24 に示す. Fig. 4.18 と同様に, 未燃混合気の輸送先より類推される, 発熱速度 $500 \text{ J}/(\text{cm}^3\text{-s})$ を取る位置を囲む領域も白線で矩形に示されている. この領域の周囲空気流束はおよそ $0.9 \times 10^{-2} - 1.0 \times 10^{-2} \text{ g}/(\text{cm}^2\text{-s})$ 程度である.

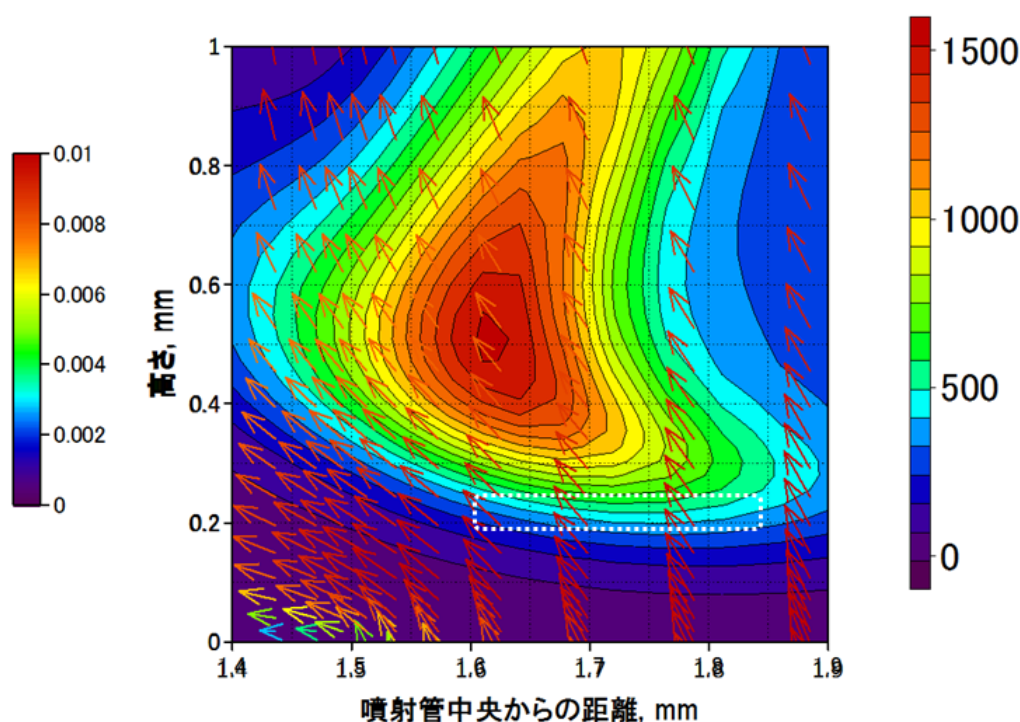


Fig. 4.24 発熱速度および周囲空気流束 ;
エタノール 50 vol%, $U_{\text{air}}=15 \text{ cm/s}$

燃料濃度がエタノール 50 vol% - 窒素 50 vol% で周囲空気流速が 15 cm/s および 55 cm/s それぞれの場合の当量比 1.0 の潜在燃焼速度, ならびに, 発熱速度 $500 \text{ J}/(\text{cm}^3\text{-s})$ を囲む領域の周囲空気流束を Table 4.6 にまとめる. Table 4.6 において, 潜在燃焼速度に関しては当量比 1.0 で温度 800 K である点の座標を, 周囲空気流速に関しては発熱速度 $500 \text{ J}/(\text{cm}^3\text{-s})$ で最もリムに近い点の座標を, それぞれ併せて示す. Table 4.6 より, 周囲空気の増速にともない潜在燃焼速度が増加することが分かる. より大きい空気流速下ではリムと火炎面との距離が

大きくなり、未燃のエタノールおよび酸素の流入量が増加する．そのためリム上部に存在するガスに占める未燃予混合気の割合が大きくなり、潜在燃焼速度が増大するものと思われる．Fig. 4.25 にそれぞれの発熱速度分布を再掲する．本図および Table 4.6 の座標値から、リムと火炎面との距離が大きくなっていることが分かる．また、周囲空気の増加に伴い半径方向に 0.03mm 遷移している．絶対的な距離としては小さな遷移であるが、本研究の系においてはこの程度の距離の遷移が火炎安定性を議論する上で重要であることを示唆している．

Table 4.6 潜在燃焼速度および周囲空気流束のまとめ

周囲空気流速 cm/s	潜在燃焼速度 および座標	周囲空気流束 および座標
15.0	(1.49 , 0.066) $1.65 \times 10^{-2} \text{ g/(cm}^2\text{-s)}$	(1.76 , 0.148) $0.82 \times 10^{-2} \text{ g/(cm}^2\text{-s)}$
55.0	(1.46 , 0.098) $3.3 \times 10^{-2} \text{ g/(cm}^2\text{-s)}$	(1.74 , 0.22) $0.9\text{-}1.0 \times 10^{-2} \text{ g/(cm}^2\text{-s)}$

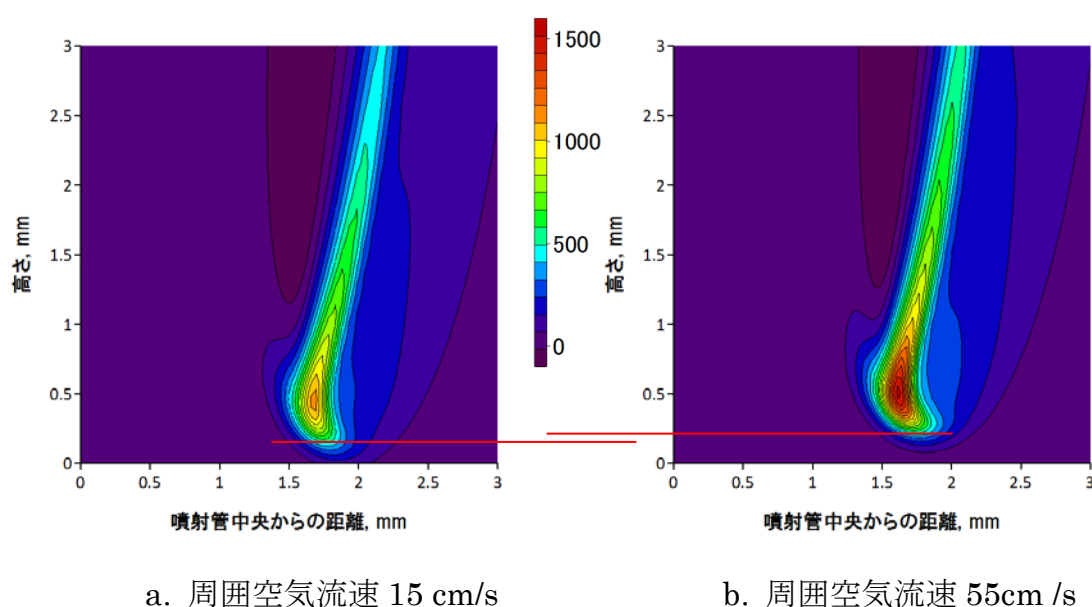


Fig. 4.25 発熱速度分布

燃料濃度がエタノール 50vol% - 窒素 50 vol%で周囲空気流速 80 cm/s の火炎のエタノールおよび酸素モル分率，ならびに火炎温度分布を Fig. 4.26 に示す．この濃度および周囲空気流速の組合せは安定限界を超えているために火炎は吹飛ぶ．Fig. 4.26 は吹飛び後のある瞬間の状況を表現したもので，リムから 5 mm 程度浮き上がっている．火炎基部とリムの間から周囲空気が燃料流側に潜り込んでいることが確認できる．これはエタノールと酸素の拡散性の違いなどによるものであると推測される．また火炎が空気流側に大きく遷移していることが確認できる．これは，エタノールが量論比で 3 倍の酸素を必要とすることによるもので，より高濃度の酸素との反応性を求めて空気流側へ遷移するものと思われる．

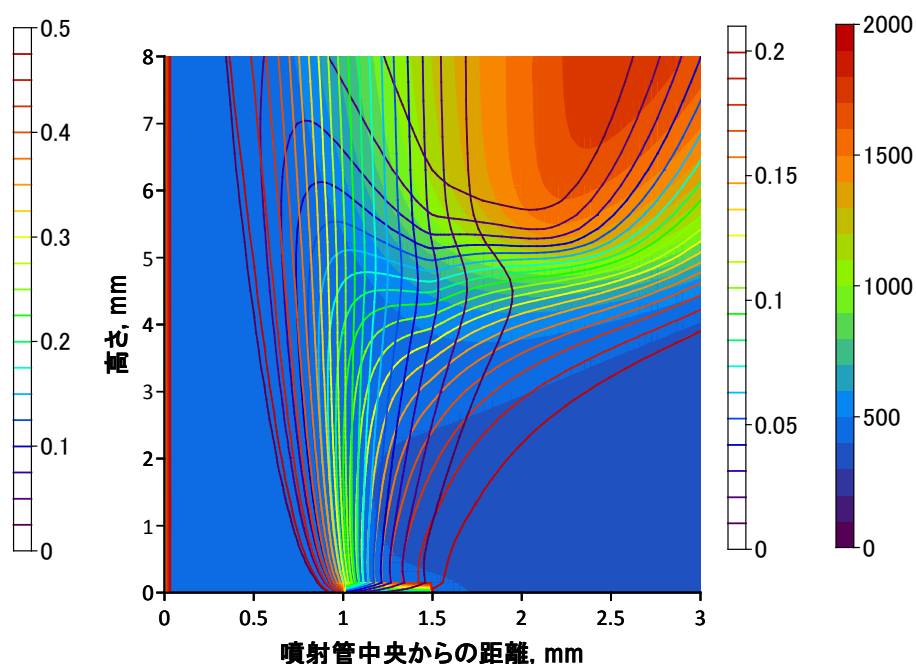


Fig. 4.26 エタノール・酸素モル分率，および火炎温度分布；
エタノール 50 vol%，周囲空気流速 80 cm/s

その他の場合の潜在燃焼速度を安定燃焼限界実測値とともに Fig. 4.27, Fig. 4.28, および Fig. 4.29 に示す. 解析を行った全ての場合において, これまでと同様の傾向が確認された.

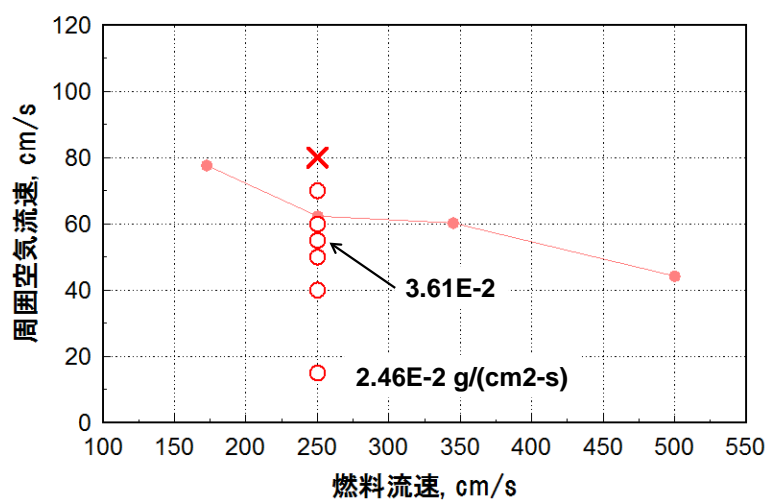


Fig. 4.27 潜在燃焼速度 ; メタノール 50 vol% - 窒素 50 vol%

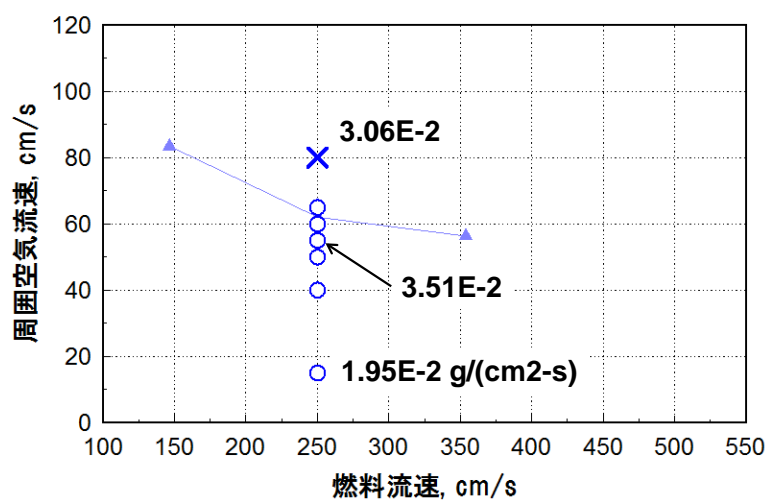


Fig. 4.28 潜在燃焼速度 ; エタノール 50 vol% - 窒素 50 vol%

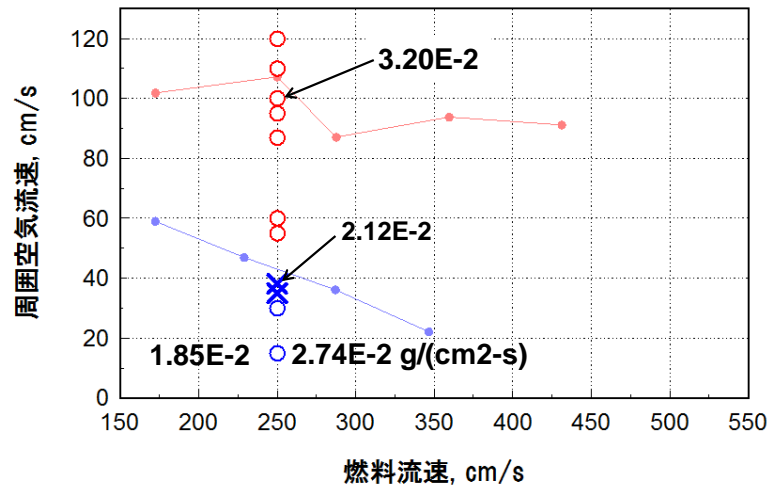


Fig. 4.29 潜在燃焼速度；メタノール 60 vol% - 窒素 40 vol%
およびエタノール 40 vol% - 窒素 60 vol%

4.2.2 燃料濃度が異なる火炎の吹飛び現象

本節では燃料濃度が異なる火炎の吹飛び現象を考察するために、エタノール 40 vol% - 窒素 60 vol% 火炎で周囲空気流速 30 cm/s の火炎，およびエタノール 50 vol% - 窒素 50 vol% で周囲空気流速 60 cm/s の火炎を比較する．これらの空気流速はそれぞれの燃料濃度での吹飛び流速に比較的近いものである．それぞれの潜在燃焼速度を Fig. 4.30 に，発熱速度を Fig. 4.31 にそれぞれ示す．Fig. 4.31 では発熱速度 500 J/(cm³·s) の境界面を太く示している．エタノール 50 vol% 火炎はエタノール 40 vol% 火炎よりもエタノールの絶対濃度が大きく，そのため潜在燃焼速度が大きくなっている．また Fig. 4.31 より，発熱速度 500 J/(cm³·s) で最もリムに近い点の半径方向位置の差は小さい．

以上より，燃料濃度が異なる火炎の吹飛び現象は潜在燃焼速度の差により説明される．

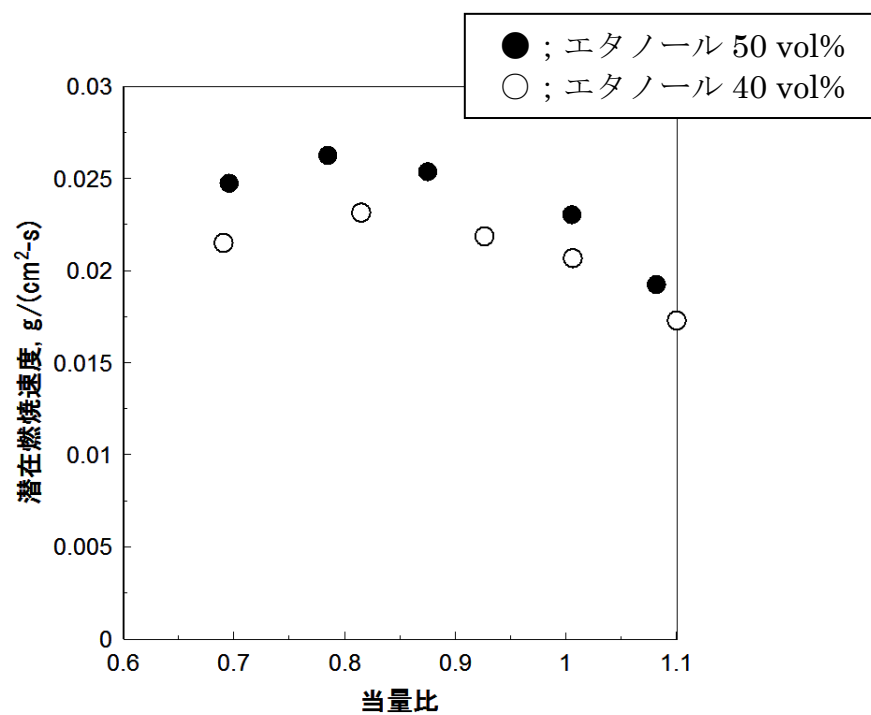


Fig. 4.30 潜在燃焼速度

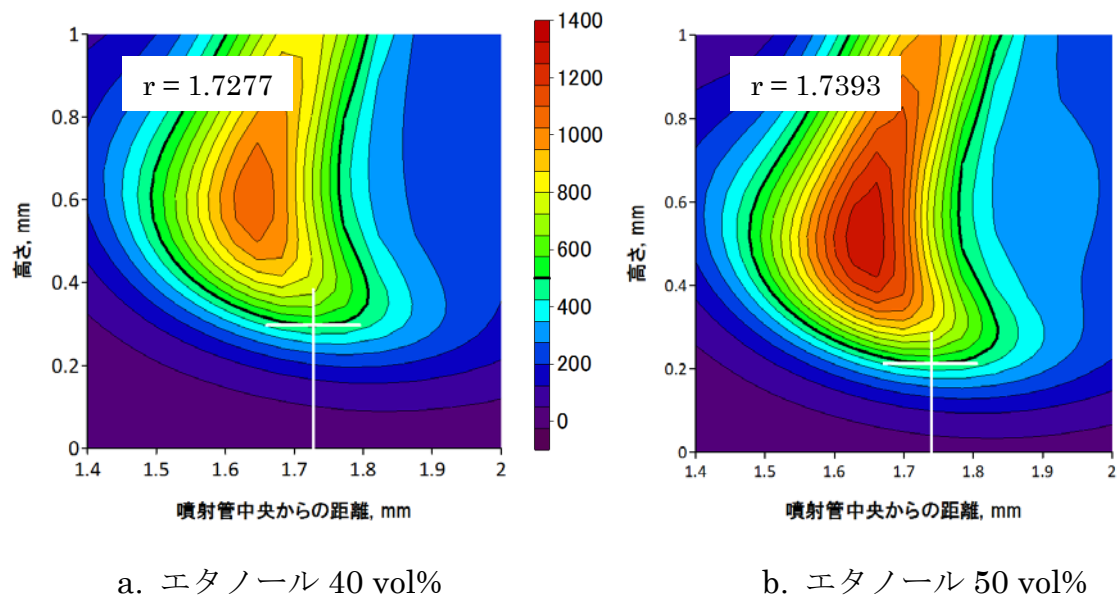


Fig. 4.31 発熱速度

4.2.3 燃料種類が異なる火炎の吹飛び現象

本節では燃料種類が異なる火炎の吹飛び現象を考察するために、エタノール 40 vol% - 窒素 60 vol%で周囲空気流速 15cm/s の火炎、およびメタノール 60 vol% - 窒素 40 vol%で周囲空気流速 100 cm/s の火炎を比較する。この条件でのエタノール火炎は安定に燃焼しているが、メタノール火炎は比較的吹飛び限界に近いものである。安定状況および周囲空気流速が大きく異なるにも関わらず、エタノール火炎の潜在燃焼速度は $2.74 \times 10^{-2} \text{ g/(cm}^2\text{-s)}$ で、メタノール火炎の潜在燃焼速度は $3.20 \times 10^{-2} \text{ g/(cm}^2\text{-s)}$ であり、前節のように潜在燃焼速度で両者の吹飛び特性の差を説明することができない。そこで本節では燃料種類が異なる火炎の吹飛び現象を、必要酸素量の差から生じる火炎半径方向位置の差での考察する。

4.1 節で示したメタノールおよびエタノールの総括一段酸化反応のとおり、量論比で考えた場合、メタノールおよびエタノールの必要酸素量には 2 倍の差がある。そのためエタノール火炎はメタノール火炎よりも空気流側に遷移する傾向にある。それぞれの火炎の発熱速度を Fig. 4.32 に示す。火炎が空気流側に遷移する場合、より大きな空気流束中に位置することになり、より吹飛びされやすい状況となる。

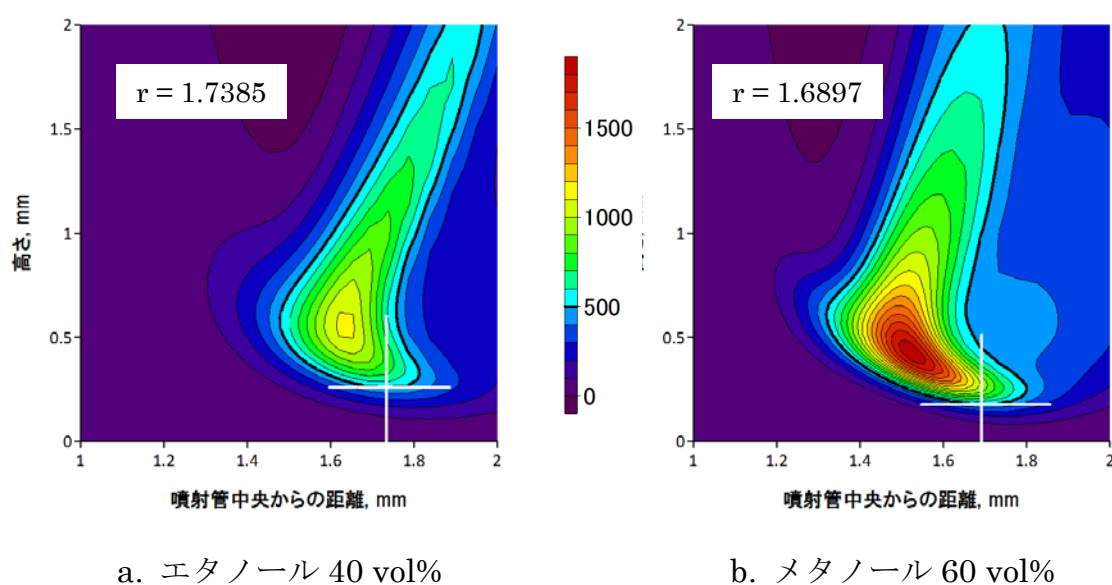


Fig. 4.32 発熱速度

第5章 総括

本研究ではメタノールおよびエタノールの吹飛び現象を観察し、拡散火炎基部で明確に予混合気が形成されていることを示した。その予混合気が持ちうる燃焼速度である「潜在燃焼速度」の概念を導入し、潜在燃焼速度によって吹飛び現象の説明を試みた。

1. 吹飛び現象の観察

まず、燃料成分としてメタノール 50 vol% - 窒素 50 vol%, エタノール 50 vol% - 窒素 50 vol%, メタノール 60 vol% - 窒素 40 vol%, およびエタノール 40 vol% - 窒素 60 vol%の同軸火炎の吹飛びまたは浮上り限界を、周囲空気の流速を変化させることにより調べた。メタノールおよびエタノール濃度が 50 vol% と同一の場合、吹飛び限界は同様の傾向を示した。メタノール 60 vol% - 窒素 40 vol%およびエタノール 40 vol% - 窒素 60 vol%では、断熱火炎温度が等しいにもかかわらずメタノール火炎の吹飛び限界はエタノールのそれよりもはるかに大きいものであった。また、本研究で実施した濃度および流速範囲では、メタノール火炎は浮上り火炎を形成することなく吹飛びに至った。エタノール火炎では、燃料濃度 40 vol%の場合に明確な浮上り火炎を形成した。浮上り火炎形成後、周囲空気流速を増加させた場合はその増速とともに浮上り高さが増加し、最終的に吹飛びに至る。周囲空気流速を減少させた場合はその原則とともに浮上り高さが減少し、ある空気流速に達したときにリムへ再付着する。このようにメタノールおよびエタノールでは吹飛び・浮上り現象に顕著な差があることを示した。

2. 詳細化学反応機構の決定

DME2000, DME2007, konnov2005, marinov, および sandiego2014 の各モデルを用いて CHEMKIN-PREMIX によりメタノールおよびエタノールの層流燃焼速度を計算し、既往の層流燃焼速度実験値と比較した。その結果、DME2007 を用いて計算した燃焼速度が最も妥当であった。また DME2007 を用いた 2 次元火炎計算結果は実験結果とよい一致を示した。

3. 数値計算による火炎吹飛び現象の再現

DME2007 を用いて種々の空気流速条件での 2 次元火炎計算を行った。その結果、火炎温度分布がリム上に維持されず下流に遷移する現象が見られた。この空気流速は、それぞれの混合気における吹飛び・浮上り空気流速実験値とよく一致しており、このことは 2 次元火炎計算によってメタノールおよびエタノールの吹飛び・浮上り限界を見積もることが可能であることを示している。

4. 拡散火炎基部の予混合気を持つ性質

各混合気の計算結果から **mixedness** を算出し、メタノールおよびエタノール拡散火炎のリム上部には未燃予混合気が存在することを定量的に示した。次いで火炎基部に存在する化学種濃度の精査し、リム上部には未燃予混合気、および下流の火炎から発生した既燃ガスが存在していることを示した。この混合気を持ちうる 1 次元層流燃焼速度を「潜在燃焼速度」と定義し、燃料種類、燃料濃度、および周囲空気流速 が異なる場合での潜在燃焼速度の変化を体系的に調査した。

5. 吹飛び現象の考察

燃料濃度が異なる条件で比較的吹飛びに近い状況の火炎を考察し、その差異を潜在燃焼速度によって説明した。また燃料種類が異なり、潜在燃焼速度が比較的近い状況の火炎を考察し、そのような場合の吹飛び現象の差異は火炎位置の違いによる周囲空気流束の影響で説明ができることを示した。

参考文献

- [1] 平成 25 年度エネルギーに関する年次報告（エネルギー白書 2014），経済産業省資源エネルギー庁（2014）
- [2] NEDO 再生可能エネルギー技術白書・第 2 版，独立行政法人新エネルギー・産業技術総合開発機構（2014）
- [3] 第三次エネルギー基本計画，経済産業省資源エネルギー庁（2010）
- [4] 第四次エネルギー基本計画，経済産業省資源エネルギー庁（2014）
- [5] 平成 25 年度森林・林業白書，農林水産省林野庁（2014）
- [6] State of the World's Forests 2011, Food and Agriculture Organization (2011)
- [7] 平成 25 年木材需給表，農林水産省林野庁（2014）
- [8] 村田博一ほか，都市域バイオマスのガス化発電，日本エネルギー学会大会講演要旨集, 20: 120-121 (2011)
- [9] 村田博一ほか，都市域廃棄物のガス化・メタノール合成による地域エネルギーシステム実用化に関する実証試験事業，NEDO 平成 22 年度バイオマスエネルギー関連事業（成果報告会）予稿集: 181-191 (2011)
- [10] 坂井正康，草木バイオマスの浮遊外熱式ガス化と液体燃料合成 -実証プラント「農林バイオマス 3 号機」の成果-，第 50 回近畿アグリハイテク講演会・講演要旨
- [11] 久保田宏・松田智，幻想のバイオ燃料，第 1 版，日刊工業新聞社（2009）
- [12] 久保田宏・松田智，幻想のバイオマスエネルギー，第 1 版，日刊工業新聞社（2010）
- [13] POET-DSM Advanced Biofuels 社プレスリリース，“First commercial-scale cellulosic ethanol plant in the U.S. opens for business”，<http://poetdsm.com/pr/first-commercial-scale-cellulosic-plant> (2014)
- [14] 折笠貴寛，バイオエタノール生産に関する LCA 解析，食糧-その科学と技術-, 51: 85-97 (2013)

- [15] 経団連低炭素社会実行計画, 定期航空協会エグゼクティブサマリー,
<http://www.keidanren.or.jp/policy/2013/003/summary36.pdf>
- [16] 国土交通省航空局資料「温室効果ガス排出削減対策に係る議論」,
<http://www.mlit.go.jp/common/001031771.pdf>
- [17] 岡井敬一, 航空用代替燃料の動向, *日本航空宇宙学会第 42 期年会講演会講演集 (Proceedings of the 42nd JSASS Annual Meeting)*, JSASS-2011-1039 (2011)
- [18] 平成 25 年二国間クレジット取得等インフラ整備調査事業 (エネルギー効率向上に関与する国際パートナーシップ (GSEP 電力 WG 等) を活用した途上国の技術支援ニーズ等に関する調査) 報告書, プライスウォーターハウスクーパース サステナビリティ株式会社 (2014)
- [19] 中島陸博, 航空用バイオジェット燃料の最新動向, *日本エネルギー学会誌*, 93(1): 52-55 (2014)
- [20] IATA Technology Roadmap 4th edition, IATA (2013)
- [21] L. Bromberg and W.K. Cheng, Methanol as an alternative transportation fuel in the US: Options for sustainable and/or energy-secure transportation, *Technical Report of Sloan Automotive Laboratory, MIT*, UT-Battelle Subcontract Number: 4000096701 (2010)
- [22] D. G. Pelaccio et al., Low-cost, Methanol-Fueled, Rocket Propulsion Technology, *34th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference and Exhibit* (1998)
- [23] R. M. Zubrin et al., An Examination of the Potential Performance of Methanol Ejector Ramjets, *32nd Joint Propulsion Conference and Exhibit* (1996)
- [24] R. M. Zubrin et al., Development of a Low-Cost, Methanol-Fueled, Ejector Ramjet, *34th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference and Exhibit* (1998)
- [25] Stephen R. Turns, An Introduction to Combustion,

- [26] P. Dagaut, On the Kinetics of Hydrocarbons Oxidation from Natural Gas to Kerosene and Diesel Fuel, *Physical Chemistry and Chemical Physics*, 4: 2079-2094 (2002)
- [27] H. J. Curran et al., A Comprehensive Modeling Study of Iso-Octane Oxidation, *Combustion and Flame*, 129: 253-280 (2002)
- [28] H. J. Curran et al., Oxidation of Automotive Primary Reference Fuels at Elevated Pressures, *Twenty-Seventh Symposium (International) on Combustion*, The Combustion Institute, Pittsburg, PA, 379-387 (1998)
- [29] J. C. G. Andrae et al., Autoignition of Toluene Reference Fuels at High Pressures, *Combustion and Flame*, 149: 2-24 (2007)
- [30] J. C. G. Andrae, Development of a Detailed Chemical Kinetic Model for Gasoline Surrogate Fuels, *Fuel*, 87: 2013-2022 (2008)
- [31] S. Humer et al., Non-Premixed and Premixed Extinction and Autoignition of C_2H_4 , C_2H_6 , C_3H_6 and C_3H_8 , *Twenty-Ninth Symposium (International) on Combustion*: 1597-1604 (2002)
- [32] R. Chen and R. L. Axelbaum, Scalar Dissipation Rate at Extinction and the effects of Oxygen-Enriched Combustion, *Combustion and Flame*, 142: 62-71 (2005)
- [33] S. P. Burke and T. E. W. Surke, Diffusion Flames, *Proceedings of the Symposium on Combustion*, 1: 2-11 (1928)
- [34] H. G. Wolfhard and W. G. Parker, A New Technique for the Spectroscopic Examination of Flames at Normal Pressures, *Proceedings of the Physical Society Section A*, 62: 722-730 (1949)
- [35] K. C. Smith et al., *Combustion and Flame*, 62: 157-181 (1985)
- [36] B. A. V. Bennett et al., Computational and Experimental Study of Axisymmetric Coflow Partially Premixed Ethylene/Air Flames, *Combustion and Flame*, 127: 2004-2022 (2001)
- [37] M. D. Smook et al., Soot Formation in Laminar Diffusion Flames, *Combustion and Flame*, 143: 613-628 (2005)
- [38] C. S. McEnally et al., Computational and Experimental Study of Soot

- Formation in a Coflow, Laminar Ethylene Diffusion Flame, *Twenty-Seventh Symposium (International) on Combustion*, 1497-1505 (1998)
- [39] S. B. Dworkin et al., Computational and Experimental Study of a Forced, Time-Dependent, Methane-Air Coflow Diffusion Flame, *Proceedings of the Combustion Institute*, 31: 971-978 (2007)
- [40] 水谷幸夫ほか, 同軸流拡散火炎の安定条件と付着機構, *日本機械学会論文集*, 44 (379): 1036-1052 (1978)
- [41] F. Takahashi et al., Lifting Mechanism of Free Jet Diffusion Flames, *20th Symposium (International) on Combustion*, 295-302 (1984)
- [42] F. Takahashi et al., Lifting Criteria of Jet Diffusion Flames, *23rd Symposium (International) on Combustion*, 677-683 (1990)
- [43] 辻正一, 燃焼機器工学第 8 版, 日刊工業新聞社 (1977)
- [44] 立石学ほか, CCD カメラを用いた噴流拡散火炎形状の計測, *鹿児島大学工学部研究報告第 37 号* (1995)
- [45] 新岡嵩ほか, 燃焼現象の基礎, 第 1 版, オーム社 (2006)
- [46] F. Takahashi et al., Lifting Criteria of Jet Diffusion Flames, *23rd Symposium (International) on Combustion*, 23 (1): 677-683 (1991)
- [47] F. Takahashi et al., Attachment Mechanisms of Diffusion Flames, *27th Symposium (International) on Combustion*, 675-684 (1998)
- [48] F. Takahashi and V. R. Katta, A Reaction Kernel Hypothesis for the Stability of Methane Jet Diffusion Flames, *Proceedings of Combustion Institute*, 28: 2071-2078 (2000)
- [49] F. Takahashi et al., Further Studies of the Reaction Kernel Structure and Stabilization of Jet Diffusion Flames, *Proceedings of the Combustion Institute*, 30: 383-390 (2005)
- [50] O. L. Gülder, Laminar Burning Velocities of Methanol, Ethanol and Isooctane-air Mixture, *Proceedings of the Combustion Institute*, Vol. 19: 275-281 (1982)
- [51] M. Metghalchi and J. C. Keck, Burning Velocities of Mixtures of Air

- with Methanol, Isooctane, and Indolene at High Pressure and Temperature, *Combustion and Flame*, 48: 191-210 (1982)
- [52] D. Bradley et al., Laminar Flame Structure and Burning Velocities of Premixed Methanol-Air, *Combustion and Flame*, 85 (1): 105-120 (1991)
- [53] F. N. Egolfopoulos et al., A Comprehensive Study of Methanol Kinetics in Freely-Propagating and Burner-Stabilized Flames, Flow and Static Reactors, and Shock Tubes, *Combustion Science and Technology*, 83 (1): 33-75 (1992)
- [54] K. Saeed and C. R. Stone, Measurements of the Laminar Burning Velocity for Mixtures of Methanol and Air from a Constant-Volume Vessel Using a Multizone Model, *Combustion and Flame*, 139: 152-166 (2004)
- [55] Z. Zhang et al., Measurements of Laminar Burning Velocities and Markstein Lengths for Methanol-Air-Nitrogen Mixtures at Elevated Pressures and Temperatures, *Combustion and Flame*, 155: 358-368 (2008)
- [56] P. S. Veloo et al., a Comparative Experimental and Computational Study of Methanol, Ethanol, and n-Butanol Flames, *Combustion and Flame*, 157: 1989-2004 (2010).
- [57] J. Vancoillie et al., Temperature Dependence of the Laminar Burning Velocity of Methanol Flames, *Energy and Fuels*, 26: 1557-1564 (2012)
- [58] L. Sileghem et. al., Laminar burning velocities of primary reference fuels and simple alcohols, *Fuel*, 115: 32-40 (2014)
- [59] D. F. Cooke et al., a Shock-Tube Study of the Ignition of Methanol and Ethanol with Oxygen, *Combustion Flame*, 16: 233-236 (1971)
- [60] K. Natarajan and K. A. Bhaskaran, an Experimental and Analytical Study of Methanol Ignition behind Shock Waves, *Combustion and Flame*, 43: 35-49 (1981)
- [61] T. Tsuboi and K. Hashimoto, Shock Tube Study on Homogeneous

- Thermal Oxidation of Methanol, *Combustion and Flame*, 42: 61-76 (1981)
- [62] D. Lee et al., Autoignition of Alcohols and Ethers in a Rapid Compression Machine, SAE Technical Paper 932755: 1-8 (1993)
- [63] K. Fieweger et al., Self-Ignition of S.I. Engine Model Fuels: a Shock Tube Investigation at High Pressure, *Combustion and Flame*, 109: 599-619 (1997)
- [64] E. K. Noorani, Comparative High Temperature Shock Tube Ignition of C1-C4 Primary Alcohols, *Energy and Fuels*, 24: 5834-5843 (2010)
- [65] S. M. Sarathy et al., Alcohol Combustion Chemistry, *Progress in Energy and Combustion Science*, 44: 40-102 (2014)
- [66] F. N. Egolfopoulos et al., A comprehensive Study of Methanol Kinetics in Freely - Propagating and Burner - Stabilized Flames, Flow and Static Reactors, and Shock Tubes, *Combustion Science and Technology*, 83: 33-75 (1992)
- [67] W. Tsang, Chemical Kinetic Data Base for Combustion Chemistry. Part2. Methanol, *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, 16 (3): 471-508 (1987)
- [68] C.K. Westbrook, et al., Comprehensive Mechanism for Methanol Oxidation, *Combustion Science and Technology*, 20 (3): 125-140 (1979)
- [69] T. S. Norton, et al., Toward a comprehensive mechanism for methanol pyrolysis, *International Journal of Chemical Kinetics*, 22(3): 219-241
- [70] T. J. Held et al., A comprehensive mechanism for methanol oxidation, *International Journal of Chemical Kinetics*, 30(11): 805-830 (1998)
- [71] J. Li et al., A Comprehensive Kinetic Mechanism for CO, CH₂O, and CH₃OH Combustion, *International Journal of Chemical Kinetics*, 39 (3): 109-136 (2007)
- [72] Combustion Lab Website, Mechanical and Aerospace Engineering, School of Engineering and Applied Science, Princeton University: http://www.princeton.edu/mae/people/faculty/dryer/homepage/kinetic_

models/c1-model/

- [73] E. C. Zabetta and M. Hupa, A detailed kinetic mechanism including methanol and nitrogen pollutants relevant to the gas-phase combustion and pyrolysis of biomass-derived fuels, *Combustion and Flame*, 152: 14–27 (2008)
- [74] F. N. Egolfopoulos et al., a Study on Ethanol Oxidation Kinetics in Laminar Premixed Flames, Flow Reactors, and Shock Tubes, *Proceedings of Combustion Institute*, 24: 833-841 (1992)
- [75] S. Y. Liao et al., Determination of the Laminar Burning Velocities for Mixtures of Ethanol and Air at Elevated Temperatures, *Applied Thermal Engineering*, 27: 374-380 (2007)
- [76] D. Bradley, Explosion Bomb Measurements of Ethanol Air Laminar Gaseous Flame Characteristics at Pressures up to 1.4MPa. *Combustion and Flame*, 156: 1462-1470 (2009)
- [77] K. Eisazadeh-Far, Laminar Burning Speeds of Ethanol/Air/Diluent Mixtures, *Proceedings of Combustion Institute*, 33: 1021-1027 (2011)
- [78] A. A. Konnov, the Temperature Dependence of the Laminar Burning Velocity of Ethanol Flames, *Proceedings of Combustion Institute*, 33: 1011-1019 (2011)
- [79] J. P. J. van Lipzig et al., Laminar Burning Velocities of n-Heptane, iso-Octane, Ethanol and Their Binary and Tertiary Mixtures, *Fuel*, 90: 2773-27781 (2011)
- [80] G. Broustaillet al., Experimental Determination of Laminar Burning Velocity for Butanol and Ethanol Isooctane Blends, *Fuel*, 90: 1-6 (2011)
- [81] E. Varea et al., Measurement of Laminar Burning Velocity and Markstein Length Relative to Fresh Gases Using a New Postprocessing Procedure: Application to Laminar Spherical Flames for Methane, Ethanol and Isooctane/Air Mixtures, *Combustion and Flame*, 159: 577-590 (2012)

- [82] E. Varea et al., Pressure Effects on Laminar Burning Velocities and Markstein Lengths for Isooctane-Ethanol-Air Mixtures, *Proceedings of Combustion Institute*, 34: 735-744 (2013)
- [83] J. Beeckmann et al., Experimental Investigation of the Laminar Burning Velocities of Methanol, Ethanol, n-Propanol, and n-Butanol at High Pressure, *Fuel*, 117: 340-350 (2014)
- [84] T. Knorsch, Comparison of Different Gasoline Alternative Fuels in Terms of Laminar Burning Velocity at Increased Gas Temperatures and Exhaust Gas Recirculation Rates, *Energy and Fuels*, 28: 1446-1452 (2014)
- [85] M. P. Dunphy and J. M. Simmie, High-Temperature Oxidation of Ethanol. Part 1. Ignition Delays in Shock-Waves, *Journal of the Chemical Society, Faraday Transactions*, 87: 1691-1696 (1991)
- [86] H. J. Curran, Shock Tube Ignition of Ethanol, Isobutene and MTBE: Experiments and Modeling, *Proceedings of Combustion Institute*, 24: 769-776 (1992)
- [87] P. Saxena, Numerical and Experimental Studies of Ethanol Flames, *Proceedings of Combustion Institute*, 31: 1149-1156 (2007)
- [88] L. R. Cancino, Measurement and Chemical Kinetics Modeling of Shock-Induced Ignition of Ethanol-Air Mixtures, *Energy and Fuels*, 24: 2830-2840 (2010)
- [89] K. A. Heufer and H. Olivier, Determination of Ignition Delay Times of Different Hydrocarbons in a New High Pressure Shock Tube, *Shock Waves*, 20: 307-316 (2010)
- [90] C. Lee C et al., On the Chemical Kinetics of Ethanol Oxidation: Shock Tube, Rapid Compression Machine and Detailed Modeling Study, *Zeitschrift für Physikalische Chemie (Journal of Physical Chemistry)*, 226: 1-28 (2012)
- [91] G. Mittal, Autoignition of Ethanol in a Rapid Compression Machine, *Combustion and Flame*, 161: 1164-1171 (2014)

- [92] N. M. Marinov, A Detailed Chemical Kinetic Model for High Temperature Ethanol Oxidation, *International Journal of Chemical Kinetics*, 31: 183-220 (1999)
- [93] "Chemical-Kinetic Mechanisms for Combustion Applications", San Diego Mechanism web page, Mechanical and Aerospace Engineering (Combustion Research), University of California at San Diego (<http://combustion.ucsd.edu>)
- [94] S. L. Fischer et al., The Reaction Kinetics of Dimethyl Ether. I: High-Temperature Pyrolysis and Oxidation in Flow Reactors, *International Journal of Chemical Kinetics*, 32: 713–740, 2000
- [95] H. J. Curran et al., The Reaction Kinetics of Dimethyl Ether. II: Low-Temperature Oxidation in Flow Reactors, *International Journal of Chemical Kinetics*, 32: 741–759 (2000)
- [96] Z. Zhao, Thermal Decomposition Reaction and a Comprehensive Kinetic Model of Dimethyl Ether, *International Journal of Chemical Kinetics*, 40: 1–18 (2008)
- [97] 立田節雄 et al., メタノールおよびエタノール開放拡散火炎の火炎長, 北海道大学工学部研究報告 (*Bulletin of the Faculty of Engineering, Hokkaido University*) , 112: 15-24 (1983)
- [98] 立田節雄, メタノールおよびエタノールの蒸発燃焼—開放拡散火炎の安定性について—, 旭川工業高等専門学校研究報文, 20: 67-76 (1983)
- [99] H. Yamashita et al., A Numerical Study on Flame Stability at the Transition Point of Jet Diffusion Flames, *Proceedings of Combustion Institute*, 26: 27-34 (1996)
- [100] R. A. Strehlow, 基礎燃焼学, 森北出版 (2000)
- [101] 堀江竜太 et. al., PLIF による同軸流拡散火炎中の OH 分布の測定, 日本機械学会論文集 (B 編) , 629 (65): 54-61 (1999)
- [102] S. V. Patanker, Numerical Heat Transfer and Fluid Flow (1980)
- [103] B. P. Leonard, Handbook of Numerical Heat Transfer, 347 - 378 (1988)
- [104] R. J. Kee et. al., Sandia Report, SAND89-8009 (1990)

- [105] 西岡牧人 et. al., 一酸化炭素-水素-窒素同軸流拡散火炎の燃焼特性, *日本燃焼学会誌*, 143 (48): 136 - 150 (2006)
- [106] Irvine Glassman and Richard A. Yetter, COMBUSTION Fourth Edition, pp.316, fig.6.5, Elsevier Academic Press (2008)
- [107] 新岡嵩, 燃焼現象の基礎 第1版, pp.81, 図 3.1, 株式会社オーム社 (2001)

付録

本研究で用いた DME2007 モデルを以下に示す. これは 2007 年版の DME 燃焼モデルのメタノール・サブメカニズムを, 最新の C1 Model である C1-2007 に修正したものである.

DME2007 で考慮される化学種

H	H2	CH2	CH2(S)	CH3
O	CH4	OH	H2O	C2H
C2H2	C2H3	CO	N2	C2H4
HCO	C2H5	CH2O	C2H6	CH2OH
CH3O	O2	CH3OH	H2O2	H2O2
HCCO	CH2CO	HCCOH	CH2HCO	CH3CO
CO2	CH3HCO	OCHO	CH3CHOH	C2H4OH
CH3CH2O	CH3OCH2	HC00H	CH3OCH3	C2H5OH
HOCH2O	CH3OCO	CH3OCHO	CH3OCH2O	CH3OCH2OH
OCH2OCHO	HOCH2OCO	HOC2H4O2	CH3OCH2O2	CH2OCH2O2H
CH3OCH2O2H	HO2CH2OCHO	O2CH2OCH2O2H	AR	HE

DME2007 素反応群

(k = A T**b exp(-E/RT))			
	A	b	E
1. H+O2=O+OH	3. 55E+15	-0. 4	16599. 0
2. O+H2=H+OH	5. 08E+04	2. 7	6290. 0
3. H2+OH=H2O+H	2. 16E+08	1. 5	3430. 0
4. O+H2O=OH+OH	2. 97E+06	2. 0	13400. 0
5. H2+M=H+H+M	4. 58E+19	-1. 4	104380. 0
H2	Enhanced by	2. 500E+00	
H2O	Enhanced by	1. 200E+01	
CO	Enhanced by	1. 900E+00	
CO2	Enhanced by	3. 800E+00	
AR	Enhanced by	0. 000E+00	
HE	Enhanced by	0. 000E+00	
6. H2+AR=H+H+AR	5. 84E+18	-1. 1	104380. 0
7. H2+HE=H+H+HE	5. 84E+18	-1. 1	104380. 0
8. O+O+M=O2+M	6. 16E+15	-0. 5	0. 0
H2	Enhanced by	2. 500E+00	
H2O	Enhanced by	1. 200E+01	
AR	Enhanced by	0. 000E+00	
HE	Enhanced by	0. 000E+00	
CO	Enhanced by	1. 900E+00	
CO2	Enhanced by	3. 800E+00	

9.	O+O+AR=O2+AR		1. 89E+13	0. 0	-1788. 0
10.	O+O+HE=O2+HE		1. 89E+13	0. 0	-1788. 0
11.	O+H+M=OH+M		4. 71E+18	-1. 0	0. 0
	H2	Enhanced by	2. 500E+00		
	H2O	Enhanced by	1. 200E+01		
	AR	Enhanced by	7. 500E-01		
	HE	Enhanced by	7. 500E-01		
	CO	Enhanced by	1. 900E+00		
	CO2	Enhanced by	3. 800E+00		
12.	H+OH+M=H2O+M		3. 80E+22	-2. 0	0. 0
	H2	Enhanced by	2. 500E+00		
	H2O	Enhanced by	1. 200E+01		
	AR	Enhanced by	3. 800E-01		
	HE	Enhanced by	3. 800E-01		
	CO	Enhanced by	1. 900E+00		
	CO2	Enhanced by	3. 800E+00		
13.	H+O2(+M)=HO2(+M)		1. 48E+12	0. 6	0. 0
	Low pressure limit:	0. 63660E+21	-0. 17200E+01	0. 52480E+03	
	TR0E centering:	0. 80000E+00	0. 10000E-29	0. 10000E+31	
	H2	Enhanced by	2. 000E+00		
	H2O	Enhanced by	1. 100E+01		
	O2	Enhanced by	7. 800E-01		
	CO	Enhanced by	1. 900E+00		
	CO2	Enhanced by	3. 800E+00		
14.	HO2+H=H2+O2		1. 66E+13	0. 0	823. 0
15.	HO2+H=OH+OH		7. 08E+13	0. 0	295. 0
16.	HO2+O=O2+OH		3. 25E+13	0. 0	0. 0
17.	HO2+OH=H2O+O2		2. 89E+13	0. 0	-497. 0
18.	HO2+HO2=H2O2+O2		4. 20E+14	0. 0	11982. 0
	Declared duplicate reaction...				
19.	HO2+HO2=H2O2+O2		1. 30E+11	0. 0	-1629. 3
	Declared duplicate reaction...				
20.	H2O2(+M)=OH+OH(+M)		2. 95E+14	0. 0	48430. 0
	Low pressure limit:	0. 12020E+18	0. 00000E+00	0. 45500E+05	
	TR0E centering:	0. 50000E+00	0. 10000E-29	0. 10000E+31	
	H2	Enhanced by	2. 500E+00		
	H2O	Enhanced by	1. 200E+01		
	CO	Enhanced by	1. 900E+00		
	CO2	Enhanced by	3. 800E+00		
	AR	Enhanced by	6. 400E-01		
	HE	Enhanced by	6. 400E-01		
21.	H2O2+H=H2O+OH		2. 41E+13	0. 0	3970. 0
22.	H2O2+H=HO2+H2		4. 82E+13	0. 0	7950. 0
23.	H2O2+O=OH+HO2		9. 55E+06	2. 0	3970. 0
24.	H2O2+OH=HO2+H2O		1. 00E+12	0. 0	0. 0
	Declared duplicate reaction...				
25.	H2O2+OH=HO2+H2O		5. 80E+14	0. 0	9557. 0
	Declared duplicate reaction...				

26.	$\text{CO} + \text{O} (+\text{M}) = \text{CO}_2 (+\text{M})$		1. 80E+10	0. 0	2384. 0
	Low pressure limit:	0. 15500E+25	-0. 27900E+01	0. 41910E+04	
	H2	Enhanced by	2. 500E+00		
	H2O	Enhanced by	1. 200E+01		
	AR	Enhanced by	8. 700E-01		
	CO	Enhanced by	1. 900E+00		
	CO2	Enhanced by	3. 800E+00		
27.	$\text{CO} + \text{O}_2 = \text{CO}_2 + \text{O}$		2. 53E+12	0. 0	47700. 0
28.	$\text{CO} + \text{H}_2\text{O}_2 = \text{CO}_2 + \text{OH}$		1. 57E+05	2. 2	17940. 0
29.	$\text{CO} + \text{OH} = \text{CO}_2 + \text{H}$		2. 23E+05	1. 9	-1158. 7
30.	$\text{HCO} + \text{M} = \text{H} + \text{CO} + \text{M}$		4. 75E+11	0. 7	14874. 0
	H2	Enhanced by	2. 500E+00		
	H2O	Enhanced by	1. 200E+01		
	CO	Enhanced by	1. 900E+00		
	CO2	Enhanced by	3. 800E+00		
31.	$\text{HCO} + \text{O}_2 = \text{CO} + \text{H}_2\text{O}$		7. 58E+12	0. 0	410. 0
32.	$\text{HCO} + \text{H} = \text{CO} + \text{H}_2$		7. 23E+13	0. 0	0. 0
33.	$\text{HCO} + \text{O} = \text{CO} + \text{OH}$		3. 02E+13	0. 0	0. 0
34.	$\text{HCO} + \text{OH} = \text{CO} + \text{H}_2\text{O}$		3. 02E+13	0. 0	0. 0
35.	$\text{HCO} + \text{O} = \text{CO}_2 + \text{H}$		3. 00E+13	0. 0	0. 0
36.	$\text{HCO} + \text{H}_2\text{O}_2 = \text{CO}_2 + \text{OH} + \text{H}$		3. 00E+13	0. 0	0. 0
37.	$\text{HCO} + \text{HCO} = \text{H}_2 + \text{CO} + \text{CO}$		3. 00E+12	0. 0	0. 0
38.	$\text{HCO} + \text{CH}_3 = \text{CO} + \text{CH}_4$		1. 20E+14	0. 0	0. 0
39.	$\text{HCO} + \text{HCO} = \text{CH}_2\text{O} + \text{CO}$		3. 00E+13	0. 0	0. 0
40.	$\text{CH}_2\text{O} + \text{M} = \text{HCO} + \text{H} + \text{M}$		3. 30E+39	-6. 3	99900. 0
	H2	Enhanced by	2. 500E+00		
	H2O	Enhanced by	1. 200E+01		
	CO	Enhanced by	1. 900E+00		
	CO2	Enhanced by	3. 800E+00		
	AR	Enhanced by	7. 000E-01		
41.	$\text{CH}_2\text{O} + \text{M} = \text{CO} + \text{H}_2 + \text{M}$		3. 10E+45	-8. 0	97510. 0
	H2	Enhanced by	2. 500E+00		
	H2O	Enhanced by	1. 200E+01		
	CO	Enhanced by	1. 900E+00		
	CO2	Enhanced by	3. 800E+00		
	AR	Enhanced by	7. 000E-01		
42.	$\text{CH}_2\text{O} + \text{H} = \text{HCO} + \text{H}_2$		5. 74E+07	1. 9	2748. 6
43.	$\text{CH}_2\text{O} + \text{O} = \text{HCO} + \text{OH}$		1. 81E+13	0. 0	3080. 0
44.	$\text{CH}_2\text{O} + \text{OH} = \text{HCO} + \text{H}_2\text{O}$		3. 43E+09	1. 2	-447. 0
45.	$\text{CH}_2\text{O} + \text{O}_2 = \text{HCO} + \text{H}_2\text{O}_2$		1. 23E+06	3. 0	52000. 0
46.	$\text{CH}_2\text{O} + \text{H}_2\text{O}_2 = \text{HCO} + \text{H}_2\text{O}_2$		4. 11E+04	2. 5	10210. 0
47.	$\text{CH}_2\text{O} + \text{CH}_3 = \text{HCO} + \text{CH}_4$		3. 64E-06	5. 4	998. 0
48.	$\text{CH}_3 + \text{O} = \text{CH}_2\text{O} + \text{H}$		8. 43E+13	0. 0	0. 0
49.	$\text{CH}_3 + \text{O}_2 = \text{CH}_3\text{O} + \text{O}$		1. 99E+18	-1. 6	29230. 0
50.	$\text{CH}_3 + \text{O}_2 = \text{CH}_2\text{O} + \text{OH}$		3. 74E+11	0. 0	14640. 0
51.	$\text{CH}_3 + \text{H}_2\text{O}_2 = \text{CH}_3\text{O} + \text{OH}$		2. 41E+10	0. 8	-2325. 0
52.	$\text{CH}_3 + \text{CH}_3 (+\text{M}) = \text{C}_2\text{H}_6 (+\text{M})$		2. 28E+15	-0. 7	174. 9
	Low pressure limit:	0. 80540E+32	-0. 37500E+01	0. 98160E+03	

TR0E centering:	0.00000E+00	0.57000E+03	0.00000E+00	0.10000E+31
H2O	Enhanced by	5.000E+00		
CO	Enhanced by	2.000E+00		
CO2	Enhanced by	3.000E+00		
53. CH3+H(+M)=CH4(+M)		1.27E+16	-0.6	383.0
Low pressure limit:	0.24770E+34	-0.47600E+01	0.24400E+04	
TR0E centering:	0.78300E+00	0.74000E+02	0.29410E+04	0.69640E+04
H2	Enhanced by	2.000E+00		
H2O	Enhanced by	6.000E+00		
CH4	Enhanced by	2.000E+00		
CO	Enhanced by	1.500E+00		
CO2	Enhanced by	2.000E+00		
C2H6	Enhanced by	3.000E+00		
AR	Enhanced by	7.000E-01		
54. CH4+H=CH3+H2		5.47E+07	2.0	11210.0
55. CH4+O=CH3+OH		3.15E+12	0.5	10290.0
56. CH4+OH=CH3+H2O		5.72E+06	2.0	2639.0
57. CH3+H02=CH4+O2		3.16E+12	0.0	0.0
58. CH4+H02=CH3+H2O2		1.81E+11	0.0	18580.0
59. CH2OH+M=CH2O+H+M		1.00E+14	0.0	25100.0
60. CH2OH+H=CH2O+H2		6.00E+12	0.0	0.0
61. CH2OH+H=CH3+OH		9.64E+13	0.0	0.0
62. CH2OH+O=CH2O+OH		4.20E+13	0.0	0.0
63. CH2OH+OH=CH2O+H2O		2.40E+13	0.0	0.0
64. CH2OH+O2=CH2O+H02		2.41E+14	0.0	5017.0
Declared duplicate reaction...				
65. CH2OH+O2=CH2O+H02		1.51E+15	-1.0	0.0
Declared duplicate reaction...				
66. CH2OH+H02=CH2O+H2O2		1.20E+13	0.0	0.0
67. CH2OH+HCO=CH3OH+CO		1.00E+13	0.0	0.0
68. CH2OH+HCO=CH2O+CH2O		1.50E+13	0.0	0.0
69. 2CH2OH=CH3OH+CH2O		3.00E+12	0.0	0.0
70. CH2OH+CH3O=CH3OH+CH2O		2.40E+13	0.0	0.0
71. CH3O+M=CH2O+H+M		8.30E+17	-1.2	15500.0
72. CH3O+H=CH3+OH		3.20E+13	0.0	0.0
73. CH3O+O=CH2O+OH		6.00E+12	0.0	0.0
74. CH3O+OH=CH2O+H2O		1.80E+13	0.0	0.0
75. CH3O+O2=CH2O+H02		9.03E+13	0.0	11980.0
Declared duplicate reaction...				
76. CH3O+O2=CH2O+H02		2.20E+10	0.0	1748.0
Declared duplicate reaction...				
77. CH3O+H02=CH2O+H2O2		3.00E+11	0.0	0.0
78. CH3O+CO=CH3+CO2		1.60E+13	0.0	11800.0
79. CH3O+HCO=CH3OH+CO		9.00E+13	0.0	0.0
80. 2CH3O=CH3OH+CH2O		6.00E+13	0.0	0.0
81. OH+CH3(+M)=CH3OH(+M)		2.79E+18	-1.4	1330.0
Low pressure limit:	0.40000E+37	-0.59200E+01	0.31400E+04	
TR0E centering:	0.41200E+00	0.19500E+03	0.59000E+04	0.63940E+04

	H2	Enhanced by	2.000E+00		
	H2O	Enhanced by	6.000E+00		
	CH4	Enhanced by	2.000E+00		
	C0	Enhanced by	1.500E+00		
	C02	Enhanced by	2.000E+00		
	C2H6	Enhanced by	3.000E+00		
82.	H+CH2OH(+M)=CH3OH(+M)		1.06E+12	0.5	86.0
	Low pressure limit:	0.43600E+32	-0.46500E+01	0.50800E+04	
	TR0E centering:	0.60000E+00	0.10000E+03	0.90000E+05	0.10000E+05
	H2	Enhanced by	2.000E+00		
	H2O	Enhanced by	6.000E+00		
	CH4	Enhanced by	2.000E+00		
	C0	Enhanced by	1.500E+00		
	C02	Enhanced by	2.000E+00		
	C2H6	Enhanced by	3.000E+00		
83.	H+CH3O(+M)=CH3OH(+M)		2.43E+12	0.5	50.0
	Low pressure limit:	0.46600E+42	-0.74400E+01	0.14080E+05	
	TR0E centering:	0.70000E+00	0.10000E+03	0.90000E+05	0.10000E+05
	H2	Enhanced by	2.000E+00		
	H2O	Enhanced by	6.000E+00		
	CH4	Enhanced by	2.000E+00		
	C0	Enhanced by	1.500E+00		
	C02	Enhanced by	2.000E+00		
	C2H6	Enhanced by	3.000E+00		
84.	CH3OH+H=CH2OH+H2		3.20E+13	0.0	6095.0
85.	CH3OH+H=CH3O+H2		8.00E+12	0.0	6095.0
86.	CH3OH+O=CH2OH+OH		3.88E+05	2.5	3080.0
87.	CH3OH+OH=CH3O+H2O		1.00E+06	2.1	496.7
88.	CH3OH+OH=CH2OH+H2O		7.10E+06	1.8	-596.0
89.	CH3OH+O2=CH2OH+HO2		2.05E+13	0.0	44900.0
90.	CH3OH+HCO=CH2OH+CH2O		9.64E+03	2.9	13110.0
91.	CH3OH+HO2=CH2OH+H2O2		3.98E+13	0.0	19400.0
92.	CH3OH+CH3=CH2OH+CH4		3.19E+01	3.2	7172.0
93.	CH3O+CH3OH=CH3OH+CH2OH		3.00E+11	0.0	4060.0
94.	CH3+CH3=H+C2H5		4.99E+12	0.1	10600.0
95.	CH4+CH2=CH3+CH3		2.46E+06	2.0	8270.0
96.	CH4+CH2(S)=CH3+CH3		1.60E+13	0.0	-570.0
97.	CH3+OH=CH2+H2O		5.60E+07	1.6	5420.0
98.	CH3+OH=CH2(S)+H2O		2.50E+13	0.0	0.0
99.	CH3+CH2=C2H4+H		4.00E+13	0.0	0.0
100.	CH3+CH2(S)=C2H4+H		1.20E+13	0.0	-570.0
101.	CH3O+H=CH2(S)+H2O		1.60E+13	0.0	0.0
102.	CH2(S)+H2O(+M)=CH3OH(+M)		4.82E+17	-1.2	1145.0
	Low pressure limit:	0.18800E+39	-0.63600E+01	0.50400E+04	
	TR0E centering:	0.60270E+00	0.20800E+03	0.39220E+04	0.10180E+05
	H2	Enhanced by	2.000E+00		
	H2O	Enhanced by	6.000E+00		
	CH4	Enhanced by	2.000E+00		

	C0	Enhanced by	1. 500E+00		
	C02	Enhanced by	2. 000E+00		
	C2H6	Enhanced by	3. 000E+00		
103.	C2H6+H=C2H5+H2		1. 15E+08	1. 9	7530. 0
104.	C2H6+O=C2H5+OH		8. 98E+07	1. 9	5690. 0
105.	C2H6+OH=C2H5+H2O		3. 54E+06	2. 1	870. 0
106.	C2H6+O2=C2H5+H2O2		4. 00E+13	0. 0	50900. 0
107.	C2H6+H2O2=C2H5+H2O2		2. 94E+11	0. 0	14940. 0
108.	C2H6+CH3=C2H5+CH4		6. 14E+06	1. 7	10450. 0
109.	C2H5+H(+M)=C2H6(+M)		5. 21E+17	-1. 0	1580. 0
	Low pressure limit:	0. 19900E+42	-0. 70800E+01	0. 66850E+04	
	TR0E centering:	0. 84220E+00	0. 12500E+03	0. 22190E+04	0. 68820E+04
	H2	Enhanced by	2. 000E+00		
	H2O	Enhanced by	6. 000E+00		
	CH4	Enhanced by	2. 000E+00		
	C0	Enhanced by	1. 500E+00		
	C02	Enhanced by	2. 000E+00		
	C2H6	Enhanced by	3. 000E+00		
	AR	Enhanced by	7. 000E-01		
110.	C2H5+H=C2H4+H2		2. 00E+12	0. 0	0. 0
111.	C2H5+O=CH3+CH2O		1. 32E+14	0. 0	0. 0
112.	C2H5+O2=C2H4+H2O2		2. 00E+10	0. 0	0. 0
113.	C2H5+C2H5=C2H4+C2H6		1. 40E+12	0. 0	0. 0
114.	C2H5+HCO=C2H6+CO		1. 20E+14	0. 0	0. 0
115.	C2H5+O=CH3HCO+H		8. 02E+13	0. 0	0. 0
116.	C2H4(+M)=H2+C2H2(+M)		8. 00E+12	0. 4	88770. 0
	Low pressure limit:	0. 70000E+51	-0. 93100E+01	0. 99860E+05	
	TR0E centering:	0. 73450E+00	0. 18000E+03	0. 10350E+04	0. 54170E+04
	H2	Enhanced by	2. 000E+00		
	H2O	Enhanced by	6. 000E+00		
	CH4	Enhanced by	2. 000E+00		
	C0	Enhanced by	1. 500E+00		
	C02	Enhanced by	2. 000E+00		
	C2H6	Enhanced by	3. 000E+00		
	AR	Enhanced by	7. 000E-01		
117.	C2H4+H(+M)=C2H5(+M)		1. 08E+12	0. 5	1820. 0
	Low pressure limit:	0. 12000E+43	-0. 76200E+01	0. 69700E+04	
	TR0E centering:	0. 97530E+00	0. 21000E+03	0. 98400E+03	0. 43740E+04
	H2	Enhanced by	2. 000E+00		
	H2O	Enhanced by	6. 000E+00		
	CH4	Enhanced by	2. 000E+00		
	C0	Enhanced by	1. 500E+00		
	C02	Enhanced by	2. 000E+00		
	C2H6	Enhanced by	3. 000E+00		
	AR	Enhanced by	7. 000E-01		
118.	C2H3+H(+M)=C2H4(+M)		6. 08E+12	0. 3	280. 0
	Low pressure limit:	0. 14000E+31	-0. 38600E+01	0. 33200E+04	
	TR0E centering:	0. 78200E+00	0. 20750E+03	0. 26630E+04	0. 60950E+04

	H2	Enhanced by	2. 000E+00		
	H2O	Enhanced by	6. 000E+00		
	CH4	Enhanced by	2. 000E+00		
	CO	Enhanced by	1. 500E+00		
	CO2	Enhanced by	2. 000E+00		
	C2H6	Enhanced by	3. 000E+00		
	AR	Enhanced by	7. 000E-01		
119.	C2H4+H=C2H3+H2		1. 32E+06	2. 5	12240. 0
120.	C2H4+OH=C2H3+H2O		1. 80E+06	2. 0	2500. 0
121.	C2H4+CH3=C2H3+CH4		2. 27E+05	2. 0	9200. 0
122.	C2H4+O=CH3+HCO		1. 92E+07	1. 8	220. 0
123.	C2H3+OH=C2H2+H2O		5. 00E+12	0. 0	0. 0
124.	C2H4+O=OH+C2H3		1. 51E+07	1. 9	3740. 0
125.	C2H4+O2=C2H3+H2O2		4. 22E+13	0. 0	57600. 0
126.	C2H3+H=C2H2+H2		9. 64E+13	0. 0	0. 0
127.	C2H3+O=CH2CO+H		6. 00E+13	0. 0	0. 0
128.	C2H3+H2O2=C2H4+H2O2		1. 21E+10	0. 0	-596. 0
129.	C2H3+CH3=C2H2+CH4		3. 90E+11	0. 0	0. 0
130.	C2H3+C2H3=C2H4+C2H2		9. 60E+11	0. 0	0. 0
131.	C2H3+O2=HCO+CH2O		4. 58E+16	-1. 4	1015. 0
132.	C2H3+O2=H2O2+C2H2		1. 34E+06	1. 6	-384. 0
133.	C2H3+O2=O+CH2HCO		1. 00E+11	0. 3	11. 0
134.	C2H2+H (+M)=C2H3 (+M)		5. 60E+12	0. 0	2400. 0
Low pressure limit: 0. 38000E+41 -0. 72700E+01 0. 72200E+04					
TROE centering: 0. 75070E+00 0. 98500E+02 0. 13020E+04 0. 41670E+04					
	H2	Enhanced by	2. 000E+00		
	H2O	Enhanced by	6. 000E+00		
	CH4	Enhanced by	2. 000E+00		
	CO	Enhanced by	1. 500E+00		
	CO2	Enhanced by	2. 000E+00		
	C2H6	Enhanced by	3. 000E+00		
	AR	Enhanced by	7. 000E-01		
135.	C2H2+O=HCCO+H		1. 63E+07	2. 0	1900. 0
136.	C2H2+O=C2H+OH		4. 60E+19	-1. 4	28950. 0
137.	C2H2+O=CH2+CO		4. 08E+06	2. 0	1900. 0
138.	C2H2+OH=CH2CO+H		2. 18E-04	4. 5	-1000. 0
139.	C2H2+OH=HCCOH+H		5. 04E+05	2. 3	13500. 0
140.	C2H2+OH=C2H+H2O		3. 37E+07	2. 0	14000. 0
141.	C2H2+OH=CH3+CO		4. 83E-04	4. 0	-2000. 0
142.	C2H2+H2O2=CH2CO+OH		6. 03E+09	0. 0	7944. 0
143.	HCCO+H=CH2 (S) +CO		1. 00E+14	0. 0	0. 0
144.	HCCO+O=H+CO+CO		1. 00E+14	0. 0	0. 0
145.	HCCO+O2=OH+2CO		1. 60E+12	0. 0	854. 0
146.	HCCO+OH=HCO+H+CO		1. 00E+13	0. 0	0. 0
147.	HCCO+CH2=C2H3+CO		3. 00E+13	0. 0	0. 0
148.	HCCO+HCCO=C2H2+CO+CO		1. 00E+13	0. 0	0. 0
149.	CH3+HCCO=C2H4+CO		5. 00E+13	0. 0	0. 0
150.	C2H+H (+M)=C2H2 (+M)		1. 00E+17	-1. 0	0. 0

Low pressure limit:	0.37500E+34	-0.48000E+01	0.19000E+04	
TR0E centering:	0.64640E+00	0.13200E+03	0.13150E+04	0.55660E+04
H2	Enhanced by	2.000E+00		
H2O	Enhanced by	6.000E+00		
CH4	Enhanced by	2.000E+00		
CO	Enhanced by	1.500E+00		
CO2	Enhanced by	2.000E+00		
C2H6	Enhanced by	3.000E+00		
AR	Enhanced by	7.000E-01		
151. C2H+OH=H+HCCO		2.00E+13	0.0	0.0
152. C2H+O2=HCO+CO		5.00E+13	0.0	1500.0
153. C2H+H2=H+C2H2		4.90E+05	2.5	560.0
154. CH2+H(+M)=CH3(+M)		2.50E+16	-0.8	0.0
Low pressure limit:	0.32000E+28	-0.31400E+01	0.12300E+04	
TR0E centering:	0.68000E+00	0.78000E+02	0.19950E+04	0.55900E+04
H2	Enhanced by	2.000E+00		
H2O	Enhanced by	6.000E+00		
CH4	Enhanced by	2.000E+00		
CO	Enhanced by	1.500E+00		
CO2	Enhanced by	2.000E+00		
C2H6	Enhanced by	3.000E+00		
AR	Enhanced by	7.000E-01		
155. CH2+O=HCO+H		8.00E+13	0.0	0.0
156. CH2+OH=CH2O+H		2.00E+13	0.0	0.0
157. CH2+H2=H+CH3		5.00E+05	2.0	7230.0
158. CH2+O2=HCO+OH		1.32E+13	0.0	1500.0
159. CH2+H2O=CH2O+OH		2.00E+13	0.0	0.0
160. CH2+CO(+M)=CH2CO(+M)		8.10E+11	0.5	4510.0
Low pressure limit:	0.26900E+34	-0.51100E+01	0.70950E+04	
TR0E centering:	0.59070E+00	0.27500E+03	0.12260E+04	0.51850E+04
H2	Enhanced by	2.000E+00		
H2O	Enhanced by	6.000E+00		
CH4	Enhanced by	2.000E+00		
CO	Enhanced by	1.500E+00		
CO2	Enhanced by	2.000E+00		
C2H6	Enhanced by	3.000E+00		
AR	Enhanced by	7.000E-01		
161. CH2+CH2=C2H2+H2		3.20E+13	0.0	0.0
162. CH2(S)+M=CH2+M		9.00E+12	0.0	600.0
H2O	Enhanced by	0.000E+00		
CO	Enhanced by	0.000E+00		
CO2	Enhanced by	0.000E+00		
AR	Enhanced by	0.000E+00		
163. CH2(S)+H2O=CH2+H2O		3.00E+13	0.0	0.0
164. CH2(S)+CO=CH2+CO		9.00E+12	0.0	0.0
165. CH2(S)+CO2=CH2+CO2		7.00E+12	0.0	0.0
166. CH2(S)+AR=CH2+AR		9.00E+12	0.0	600.0
167. CH2(S)+O=CO+H2		1.50E+13	0.0	0.0

168.	CH ₂ (S)+O=HC+H	1. 50E+13	0. 0	0. 0
169.	CH ₂ (S)+OH=CH ₂ O+H	3. 00E+13	0. 0	0. 0
170.	CH ₂ (S)+H ₂ =CH ₃ +H	7. 00E+13	0. 0	0. 0
171.	CH ₂ (S)+O ₂ =H+OH+CO	2. 80E+13	0. 0	0. 0
172.	CH ₂ (S)+O ₂ =CO+H ₂ O	1. 20E+13	0. 0	0. 0
173.	CH ₂ (S)+CO ₂ =CH ₂ O+CO	1. 40E+13	0. 0	0. 0
174.	CH ₃ HC=CH ₃ +HC	7. 00E+15	0. 0	81674. 0
175.	CH ₃ CO (+M)=CH ₃ +CO (+M)	3. 00E+12	0. 0	16722. 0
Low pressure limit: 0. 12000E+16 0. 00000E+00 0. 12518E+05				
176.	CH ₃ HC+OH=CH ₃ CO+H ₂ O	3. 37E+12	0. 0	-620. 0
177.	CH ₃ HC+OH=CH ₂ HC+H ₂ O	3. 37E+11	0. 0	-620. 0
178.	CH ₃ HC+O=CH ₃ CO+OH	1. 77E+18	-1. 9	2975. 0
179.	CH ₃ HC+O=CH ₂ HC+OH	3. 72E+13	-0. 2	3556. 0
180.	CH ₃ HC+H=CH ₃ CO+H ₂	4. 66E+13	-0. 3	2988. 0
181.	CH ₃ HC+H=CH ₂ HC+H ₂	1. 85E+12	0. 4	5359. 0
182.	CH ₃ HC+CH ₃ =CH ₃ CO+CH ₄	3. 90E-07	5. 8	2200. 0
183.	CH ₃ HC+CH ₃ =CH ₂ HC+CH ₄	2. 45E+01	3. 1	5727. 0
184.	CH ₃ HC+H ₂ O=CH ₃ CO+H ₂ O ₂	3. 60E+19	-2. 2	14030. 0
185.	CH ₃ HC+H ₂ O=CH ₂ HC+H ₂ O ₂	2. 32E+11	0. 4	14864. 0
186.	CH ₃ HC+O ₂ =CH ₃ CO+H ₂ O ₂	1. 00E+14	0. 0	42200. 0
187.	CH ₂ CO+O=CO ₂ +CH ₂	1. 75E+12	0. 0	1350. 0
188.	CH ₂ CO+H=CH ₃ +CO	2. 71E+04	2. 8	714. 0
189.	CH ₂ CO+H=HCCO+H ₂	2. 00E+14	0. 0	8000. 0
190.	CH ₂ CO+O=HCCO+OH	1. 00E+13	0. 0	8000. 0
191.	CH ₂ CO+OH=HCCO+H ₂ O	1. 00E+13	0. 0	2000. 0
192.	CH ₂ CO+OH=CH ₂ O+CO	3. 73E+12	0. 0	-1013. 0
193.	CH ₂ HC+H=CH ₃ +HC	5. 00E+13	0. 0	0. 0
194.	CH ₂ HC+H=CH ₂ CO+H ₂	2. 00E+13	0. 0	0. 0
195.	CH ₂ HC+O=CH ₂ O+HC	1. 00E+14	0. 0	0. 0
196.	CH ₂ HC+OH=CH ₂ CO+H ₂ O	3. 00E+13	0. 0	0. 0
197.	CH ₂ HC+O ₂ =CH ₂ O+CO+OH	3. 00E+10	0. 0	0. 0
198.	CH ₂ HC+CH ₃ =C ₂ H ₅ +CO+H	4. 90E+14	-0. 5	0. 0
199.	CH ₂ HC+H ₂ O=CH ₂ O+HC+OH	7. 00E+12	0. 0	0. 0
200.	CH ₂ HC+H ₂ O=CH ₃ HC+O ₂	3. 00E+12	0. 0	0. 0
201.	CH ₂ HC=CH ₃ +CO	1. 17E+43	-9. 8	43756. 0
202.	CH ₂ HC=CH ₂ CO+H	1. 81E+43	-9. 6	45868. 0
203.	C ₂ H ₅ OH=CH ₃ +CH ₂ OH	1. 26E+51	-10. 6	100869. 0
204.	C ₂ H ₅ OH=C ₂ H ₄ +H ₂ O	8. 80E+25	-3. 7	70799. 0
205.	C ₂ H ₅ OH+OH=C ₂ H ₄ OH+H ₂ O	1. 81E+11	0. 4	716. 5
206.	C ₂ H ₅ OH+OH=CH ₃ CHOH+H ₂ O	3. 09E+10	0. 5	-379. 8
207.	C ₂ H ₅ OH+OH=CH ₃ CH ₂ O+H ₂ O	1. 05E+10	0. 8	716. 9
208.	C ₂ H ₅ OH+H=C ₂ H ₄ OH+H ₂	1. 90E+07	1. 8	5098. 0
209.	C ₂ H ₅ OH+H=CH ₃ CHOH+H ₂	2. 58E+07	1. 6	2827. 0
210.	C ₂ H ₅ OH+H=CH ₃ CH ₂ O+H ₂	1. 50E+07	1. 6	3038. 0
211.	C ₂ H ₅ OH+O=C ₂ H ₄ OH+OH	9. 41E+07	1. 7	5459. 0
212.	C ₂ H ₅ OH+O=CH ₃ CHOH+OH	1. 88E+07	1. 9	1824. 0
213.	C ₂ H ₅ OH+O=CH ₃ CH ₂ O+OH	1. 58E+07	2. 0	4448. 0
214.	C ₂ H ₅ OH+CH ₃ =C ₂ H ₄ OH+CH ₄	2. 19E+02	3. 2	9622. 0

215.	$C_2H_5OH + CH_3 = CH_3CHOH + CH_4$	7. 28E+02	3. 0	7948. 0
216.	$C_2H_5OH + CH_3 = CH_3CH_2O + CH_4$	1. 45E+02	3. 0	7649. 0
217.	$C_2H_5OH + H_2O_2 = CH_3CHOH + H_2O_2$	8. 20E+03	2. 5	10750. 0
218.	$C_2H_5OH + H_2O_2 = C_2H_4OH + H_2O_2$	2. 43E+04	2. 5	15750. 0
219.	$C_2H_5OH + H_2O_2 = CH_3CH_2O + H_2O_2$	3. 80E+12	0. 0	24000. 0
220.	$CH_3CH_2O + M = CH_3HCO + H + M$	5. 60E+34	-5. 9	25274. 0
221.	$CH_3CH_2O + M = CH_3 + CH_2O + M$	5. 35E+37	-7. 0	23800. 0
222.	$CH_3CH_2O + O_2 = CH_3HCO + H_2O_2$	4. 00E+10	0. 0	1100. 0
223.	$CH_3CH_2O + CO = C_2H_5 + CO_2$	4. 68E+02	3. 2	5380. 0
224.	$CH_3CH_2O + H = CH_3 + CH_2OH$	3. 00E+13	0. 0	0. 0
225.	$CH_3CH_2O + H = C_2H_4 + H_2O$	3. 00E+13	0. 0	0. 0
226.	$CH_3CH_2O + OH = CH_3HCO + H_2O$	1. 00E+13	0. 0	0. 0
227.	$CH_3CHOH + O_2 = CH_3HCO + H_2O_2$	4. 82E+13	0. 0	5017. 0
	Declared duplicate reaction...			
228.	$CH_3CHOH + O_2 = CH_3HCO + H_2O_2$	8. 43E+14	-1. 2	0. 0
	Declared duplicate reaction...			
229.	$CH_3CHOH + O = CH_3HCO + OH$	1. 00E+14	0. 0	0. 0
230.	$CH_3CHOH + H = C_2H_4 + H_2O$	3. 00E+13	0. 0	0. 0
231.	$CH_3CHOH + H = CH_3 + CH_2OH$	3. 00E+13	0. 0	0. 0
232.	$CH_3CHOH + H_2O_2 = CH_3HCO + OH + OH$	4. 00E+13	0. 0	0. 0
233.	$CH_3CHOH + OH = CH_3HCO + H_2O$	5. 00E+12	0. 0	0. 0
234.	$CH_3CHOH + M = CH_3HCO + H + M$	1. 00E+14	0. 0	25000. 0
235.	$C_2H_4OH + O_2 = HOC_2H_4O_2$	1. 00E+12	0. 0	-1100. 0
236.	$HOC_2H_4O_2 = CH_2O + CH_2O + OH$	1. 80E+11	0. 0	24500. 0
237.	$C_2H_4 + OH = C_2H_4OH$	2. 41E+11	0. 0	-2385. 0
238.	$C_2H_5 + H_2O_2 = CH_3CH_2O + OH$	4. 00E+13	0. 0	0. 0
239.	$CH_3OCH_3 = CH_3 + CH_3O$	1. 70E+42	-8. 0	91806. 6
240.	$CH_3OCH_3 + OH = CH_3OCH_2 + H_2O$	6. 71E+06	2. 0	-629. 9
241.	$CH_3OCH_3 + H = CH_3OCH_2 + H_2$	2. 97E+07	2. 0	4033. 6
242.	$CH_3OCH_3 + CH_3 = CH_3OCH_2 + CH_4$	2. 68E+01	3. 8	9631. 3
243.	$CH_3OCH_3 + O = CH_3OCH_2 + OH$	1. 86E-03	5. 3	-109. 0
244.	$CH_3OCH_3 + H_2O_2 = CH_3OCH_2 + H_2O_2$	2. 00E+13	0. 0	16500. 0
245.	$CH_3OCH_3 + O_2 = CH_3OCH_2 + H_2O_2$	4. 10E+13	0. 0	44910. 0
246.	$CH_3OCH_3 + CH_3O = CH_3OCH_2 + CH_3OH$	6. 02E+11	0. 0	4074. 0
247.	$CH_3OCH_3 + CH_3OCH_2O_2 = CH_3OCH_2 + CH_3OCH_2O_2H$	5. 00E+12	0. 0	17690. 0
248.	$CH_3OCH_2 = CH_2O + CH_3$	1. 20E+13	0. 0	25750. 0
249.	$CH_3OCH_2 + CH_3O = CH_3OCH_3 + CH_2O$	2. 41E+13	0. 0	0. 0
250.	$CH_3OCH_2 + CH_2O = CH_3OCH_3 + HCO$	5. 49E+03	2. 8	5862. 0
251.	$CH_3OCH_2 + H_2O_2 = CH_3OCH_2O + OH$	9. 00E+12	0. 0	0. 0
252.	$CH_3OCH_2O = CH_3OCHO + H$	1. 74E+16	-0. 7	11720. 0
253.	$CH_3OCHO = CH_3 + OCHO$	1. 39E+18	-1. 0	79140. 0
254.	$CH_3OCHO + O_2 = CH_3OCO + H_2O_2$	1. 00E+13	0. 0	49700. 0
255.	$CH_3OCHO + OH = CH_3OCO + H_2O$	2. 34E+07	1. 6	-35. 0
256.	$CH_3OCHO + H_2O_2 = CH_3OCO + H_2O_2$	1. 22E+12	0. 0	17000. 0
257.	$CH_3OCHO + O = CH_3OCO + OH$	2. 35E+05	2. 5	2230. 0
258.	$CH_3OCHO + H = CH_3OCO + H_2$	4. 55E+06	2. 0	5000. 0
259.	$CH_3OCHO + CH_3 = CH_3OCO + CH_4$	7. 55E-01	3. 5	5481. 0
260.	$CH_3OCHO + CH_3O = CH_3OCO + CH_3OH$	5. 48E+11	0. 0	5000. 0

261.	$\text{CH}_3\text{OCO}=\text{CH}_3+\text{CO}$	7.45E+12	-1.8	17150.0
262.	$\text{CH}_3\text{OCO}=\text{CH}_3+\text{CO}_2$	1.51E+12	-1.8	13820.0
263.	$\text{OCHO}+\text{M}=\text{H}+\text{CO}_2+\text{M}$	2.44E+15	-0.5	26500.0
264.	$\text{CH}_3\text{OCH}_2+\text{O}_2=\text{CH}_3\text{OCH}_2\text{O}_2$	2.00E+12	0.0	0.0
265.	$\text{CH}_3\text{OCH}_2\text{O}_2+\text{CH}_2\text{O}=\text{CH}_3\text{OCH}_2\text{O}_2\text{H}+\text{HCO}$	1.00E+12	0.0	11670.0
266.	$\text{CH}_3\text{OCH}_2\text{O}_2+\text{CH}_3\text{OCH}_2\text{O}_2=\text{O}_2+\text{CH}_3\text{OCH}_2\text{O}+\text{CH}_3\text{OCH}_2\text{O}$	1.60E+23	-4.5	0.0
267.	$\text{CH}_3\text{OCH}_2\text{O}_2+\text{CH}_3\text{OCH}_2\text{O}_2=\text{O}_2+\text{CH}_3\text{OCHO}+\text{CH}_3\text{OCH}_2\text{OH}$	6.84E+22	-4.5	0.0
268.	$\text{CH}_3\text{OCH}_2\text{O}_2\text{H}=\text{CH}_3\text{OCH}_2\text{O}+\text{OH}$	2.11E+22	-2.1	43830.0
269.	$\text{CH}_3\text{OCH}_2\text{O}=\text{CH}_3\text{O}+\text{CH}_2\text{O}$	9.72E+15	-1.1	20640.0
270.	$\text{CH}_3\text{OCH}_2\text{O}+\text{O}_2=\text{CH}_3\text{OCHO}+\text{HO}_2$	5.00E+10	0.0	500.0
271.	$\text{CH}_3\text{OCH}_2\text{O}_2=\text{CH}_2\text{OCH}_2\text{O}_2\text{H}$	6.00E+10	0.0	21500.0
272.	$\text{CH}_2\text{OCH}_2\text{O}_2\text{H}=\text{OH}+\text{CH}_2\text{O}+\text{CH}_2\text{O}$	1.50E+13	0.0	20500.0
273.	$\text{CH}_2\text{OCH}_2\text{O}_2\text{H}+\text{O}_2=\text{O}_2\text{CH}_2\text{OCH}_2\text{O}_2\text{H}$	7.00E+11	0.0	0.0
274.	$\text{O}_2\text{CH}_2\text{OCH}_2\text{O}_2\text{H}=\text{HO}_2\text{CH}_2\text{OCHO}+\text{OH}$	4.00E+10	0.0	18500.0
275.	$\text{HO}_2\text{CH}_2\text{OCHO}=\text{OCH}_2\text{OCHO}+\text{OH}$	3.00E+16	0.0	40000.0
276.	$\text{OCH}_2\text{OCHO}=\text{HOCH}_2\text{OCO}$	1.00E+11	0.0	14000.0
277.	$\text{HOCH}_2\text{OCO}=\text{HOCH}_2\text{O}+\text{CO}$	2.18E+16	-2.7	17200.0
278.	$\text{HOCH}_2\text{OCO}=\text{CH}_2\text{OH}+\text{CO}_2$	5.31E+15	-2.6	20810.0
279.	$\text{HOCH}_2\text{O}=\text{HCOOH}+\text{H}$	1.00E+14	0.0	14900.0
280.	$\text{CH}_2\text{O}+\text{OH}=\text{HOCH}_2\text{O}$	4.50E+15	-1.1	0.0
281.	$\text{HCOOH}+\text{M}=\text{CO}+\text{H}_2\text{O}+\text{M}$	2.30E+13	0.0	50000.0
282.	$\text{HCOOH}+\text{M}=\text{CO}_2+\text{H}_2+\text{M}$	1.50E+16	0.0	57000.0
283.	$\text{HCOOH}=\text{HCO}+\text{OH}$	4.59E+18	-0.5	108300.0
284.	$\text{HCOOH}+\text{OH}=\text{H}_2\text{O}+\text{CO}_2+\text{H}$	2.62E+06	2.1	916.0
285.	$\text{HCOOH}+\text{OH}=\text{H}_2\text{O}+\text{CO}+\text{OH}$	1.85E+07	1.5	-962.0
286.	$\text{HCOOH}+\text{H}=\text{H}_2+\text{CO}_2+\text{H}$	4.24E+06	2.1	4868.0
287.	$\text{HCOOH}+\text{H}=\text{H}_2+\text{CO}+\text{OH}$	6.03E+13	-0.3	2988.0
288.	$\text{HCOOH}+\text{CH}_3=\text{CH}_4+\text{CO}+\text{OH}$	3.90E-07	5.8	2200.0
289.	$\text{HCOOH}+\text{HO}_2=\text{H}_2\text{O}_2+\text{CO}+\text{OH}$	1.00E+12	0.0	11920.0
290.	$\text{HCOOH}+\text{O}=\text{CO}+\text{OH}+\text{OH}$	1.77E+18	-1.9	2975.0

A units mole-cm-sec-K, E units cal/mole

謝辞

これまで継続的に応援・叱咤激励し、理解し、支え続けてくれている両親・家族に最大限の感謝の気持ちを送ります。両親・家族の支えなくしては研究を継続することはできませんでした。迷いが生じたときに肩を押し、深みにはまったときに引っ張り上げてくれたのはいつも両親・家族でした。

本研究の遂行ならびに本論文執筆にあたり、宇宙航空研究開発機構・宇宙科学研究所、宇宙飛翔工学研究系・堀恵一教授には、関連する全てにおいて時には厳しく、研究が停滞していたときも常に丁寧にご指導いただきました。深く感謝いたします。

筑波大学システム情報系・西岡牧人教授には、数値計算に関連する全てにおいてご指導いただき、極めて初歩的な質問にも丁寧にお答えいただきました。心より厚くお礼申し上げます。

宇宙飛翔工学研究系・羽生宏人准教授には、計測手法などをご指導いただきました。また過去の様々な研究手法を参考にして研究を行ってまいりました。小川博之准教授には、研究室選択時ならびに研究手法など、親身にご指導いただきました。東京大学工学研究系・越光男名誉教授には、特に研究結果の考察ならびに論文とりまとめにあたって多数回の打合せにご参加いただき、毎回大変貴重なご助言を頂戴いたしました。ご指導いただきました皆様に、深く感謝いたします。

ご多忙の中、論文審査にご参加いただきました宇宙飛翔工学研究系・徳留真一郎准教授ならびに澤井秀次郎准教授に厚くお礼申し上げます。

堀研究室所属の大学院生・学部卒業研究生の皆様には研究のみならず日々の生活において多くのご協力をいただきました。厚くお礼申し上げます。

2015 年春 堤明正