

審査の結果の要旨

氏名 須崎 光太郎

本論文は「レーザー吸収分光法を用いた DME 低温酸化機構に関する素反応研究」と題し、自着火問題の解決に向け注目されている低温酸化過程の詳細反応機構を明らかにするため、着火特性が実用燃料と比較的近く、単純な構造を持つジメチルエーテル(DME)を対象とし、低温酸化反応において重要な役割を果たすとされながら、これまで明らかにされていないヒドロペルオキシラジカル(HO_2)の生成経路を、反応流通管を用いた低圧条件において高感度レーザー吸収分光法により、実験的に素反応レベルで明らかにすることを試みたものであり、それに伴う重要な二つの化学反応、メトキシメチルラジカル(CH_3OCH_2)の熱分解反応およびメトキシメチルペルオキシラジカル($\text{CH}_3\text{OCH}_2\text{O}_2$)の自己消費反応の速度定数計測も含め、論文は全7章よりなっている。

第1章は、「序論」であり DME 低温酸化過程の既往研究及び未解決問題を検討し、本論文の研究目的を述べている。また、本研究と関連して、既往の HO_2 計測法及びその問題点、 HO_2 の選択的高感度検出による既往の反応解析研究に関しても述べている。

第2章は、「実験装置」であり、本研究で用いた実験装置について述べている。 HO_2 の高感度検出に用いた近赤外光周波数変調分光法及び Herriott 型長光路吸収セルという特殊な分光装置について述べ、さらに同一セルに紫外光を、近赤外光による観測場と同一場の観測ができるように透過させ、単純な吸収分光法による紫外観測も行い、これまで行われていない、同一反応場における近赤外及び紫外という2波長領域の観測を初めて実現している。

第3章は、「実験方法・装置評価」であり、第2章で述べた実験装置による化学種観測及びその検出限界を検討し、 HO_2 高感度検出の実現とともに、検出用に用いた近赤外領域のダイオードレーザの可変波長域内において低温酸化過程で重要な化学種ヒドロキシラジカル(OH)の観測も実現している。さらに紫外領域においても低温酸化過程の創始化学種として重要なアルキルペルオキシラジカル(RO_2)の観測を実現し、低温酸化過程の素反応メカニ

ズム検討に適応した実験装置であることを示している。

第4章は、「DME 低温酸化過程における HO_2 生成過程」であり、 HO_2 のみの観測だけではなく、実験装置の能力を生かし低温酸化過程検討に重要な OH 及び RO_2 の観測も行うことから、DME 低温酸化過程中の HO_2 生成過程は反応温度により生成メカニズムが異なることを初めて確認し、既往の反応メカニズムだけでは説明されず、新たな反応経路が HO_2 生成に寄与することを示している。

第5章は「 CH_3OCH_2 熱分解速度定数の計測」であり、低温酸化反応が起きる 600 K 近辺において HO_2 生成経路の検討に強く影響を及ぼす反応であるが、本実験の圧力条件(20 ~ 90 torr)における正確な速度定数の既存値は存在しないため、その速度定数を本圧力条件下で初めて計測した。

第6章は「 $\text{CH}_3\text{OCH}_2\text{O}_2$ 自己消費反応速度定数の計測」であり、298 ~ 400 K といった常温から低温酸化反応が起き始める温度領域において HO_2 生成経路の検討に強く影響を及ぼす反応であるが、本温度域での速度定数は計測されておらず、本装置を用いて、初めて速度定数の計測を行った。

第7章は「結論」であり、上記の研究結果をまとめたものである。

以上を要するに、本論文では低圧条件における反応流通管を用いた実験により、素反応レベルにおいて DME 低温酸化過程における HO_2 生成経路を明らかにし、さらに、これまで計測されていない CH_3OCH_2 熱分解速度定数、 $\text{CH}_3\text{OCH}_2\text{O}_2$ 自己消費反応速度定数の計測を行い、より正確な燃焼シミュレーションを行う素反応モデル構築に寄与する知見を得ており、燃焼分子工学の発展に寄与するものであると考えられる。

よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。