

火炎内におけるすす前駆物質の レーザ計測技術

Measuring Techniques of Soot Precursors in Flame by Laser



林田 和宏

Kazuhiro HAYASHIDA

北見工業大学
機械工学科
准教授

Kitami Institute of Technology
Department of Mechanical Engineering
Associate Professor

To investigate the soot formation characteristics in a flame, measuring techniques of soot precursors by laser had been developed. Concentration distributions of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) and soot were obtained by temporally-resolved measurement of laser-induced emissions. Moreover, fuel concentration distribution was obtained by using Raman scattering. Based on the obtained results, the relative location of fuel, PAHs, and soot in sooting flames were clarified. To investigate the PAHs size distribution in a flame, an estimation strategy for PAHs size was proposed. Obtained results suggested that the PAHs grow and the type of PAHs change as the soot inception region was approached.

1 はじめに

ディーゼルエンジンから排出されるすす粒子は、鼻炎や気管支喘息等の呼吸器疾患を誘起し、さらには発がん性や変異原性を有する物質の吸着が指摘されるなど、生体に深刻な健康被害をもたらすことが懸念されている。近年では、コモンレール式燃料噴射システムやターボ過給等の燃焼改善技術がディーゼルエンジンに導入され、排ガスに含まれる粒子状物質 (PM: Particulate Matter) の質量濃度の大部分を占めていた粗大なすす粒子については大幅な低減が達成されている。しかしながら、ナノメートルオーダーの微小なナノ粒子については、逆にその個数濃度が増加傾向にあるとの指摘もあり、既存の燃焼技術ではエンジンからの炭素質PMの排出低減は限界に近づきつつあるのが現状である。

炭化水素燃料の燃焼により生成されるすす粒子は、燃料中の芳香族成分や燃料の熱分解に続いて形成される多環芳香族炭化水素 (PAHs: Polycyclic Aromatic Hydrocar-

bons) が前駆物質となり、縮重合による多環化で高分子化し、凝集することでその一次粒子が形成されると考えられているが^{1), 2)}、その生成メカニズムについては未だ不明な点が多い。すす粒子やナノ粒子の生成をこれまで以上に低減する新しい燃焼技術を開発するためには、すすやナノ粒子の生成メカニズムについて化学的、物理的な理解を深めることが必要不可欠である。そのためには、火炎内における燃料やPAHsの振る舞いを正確に把握しなければならない。

燃焼計測技術の中でも、レーザを使用した計測技術は高い時間および空間分解能を有する場合が多く、さらに燃焼場に物理的な外乱を与えずに計測することが可能であるなどの利点を有する。このため、今日ではレーザ計測技術は燃焼解析に必要な不可欠な計測手段となっており³⁾、すす生成メカニズムの解析にも活用されている^{4)・5)}。本稿では、著者らがこれまでに報告した、火炎内におけるPAHsや燃料濃度のレーザ計測技術について紹介すると共に、性状の異なる幾つかの燃料のすす生成特性を調べた結果について紹介する。

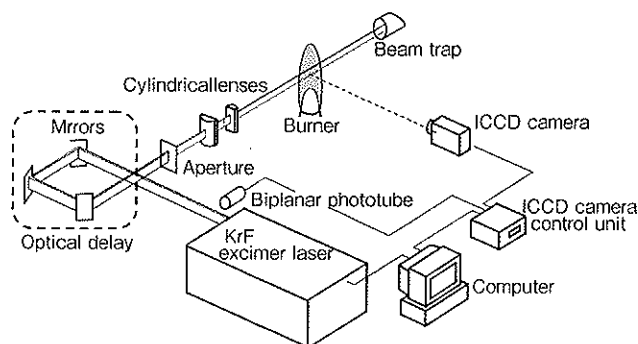


図1 時間分解計測装置

2 PAHs とすすの二次元濃度分布測定

PAHsの計測にはレーザー誘起蛍光 (LIF: Laser-Induced Fluorescence) 法⁷⁾を用いた。LIF法は、レーザー光の吸収によって電子の励起状態に遷移した分子が発する蛍光を検出する方法であるが、輝炎にレーザー光を照射すると、PAHs-LIF以外に、すすがレーザー光を吸収して強く発光するレーザー誘起赤熱発光 (LII: Laser-Induced Incandescence)⁸⁾が現れる。両発光とも同じ波長域に現れるため、従来の計測ではPAHs-LIFとLIIが同時に検出されてしまい、火炎内の正確なPAHs濃度分布を求めることが困難であった。そこで、著者らは時間分解計測を行なうことでPAHs-LIFとLIIの分離を試みた⁹⁾。

2.1 計測装置および測定対象火炎

時間分解計測で用いた装置概略図を図1に示す。PAHsの励起光源には、248 nmのレーザー光が得られる波長可変型KrFエキシマレーザー (Lambda Physik社, LPX-150T)を使用した。レーザー光はアパーチャーとシリンドリカルレンズにより、厚さ0.5 mm、高さ30 mmのシート状にして火炎中心軸を通るように照射した。レーザー光の照射に伴う火炎からの発光はICCDカメラ (La-Vision社, PicoStar)で検出した。このICCDカメラは、トリガディレイをpsオーダーで制御することができるため、ゲート時間を短くすることで任意の時間の発光のみを検出することができる。時間分解計測を行なうためには、レーザーパルスとカメラゲートの同期性、およびゲート時間の制御が重要となる。そこで、レーザーパルスとカメラゲートの同期性を高めるために、エキシマレーザーの出口に設置したバイプラナ放電管によりレイリー散乱光を検出し、このパルスの立ち上がり信号をカメラのトリガ信号とした。なお、バイプラナ放電管からのトリガ信号でカメラのゲートが作動するまでに約40 nsの時間を要するため、レーザー光を複数のミラーで反射させて光路長を長く取り (約12 m)、レーザー光が測定場に到達する時間を遅らせた。

測定対象火炎は、定常なプロパン噴流拡散火炎である。燃料 (流量0.05 L/min)を内径6 mmのステンレス製円管より鉛直上方に噴出させ、目視による火炎長さ $L_f = 30$ mmの

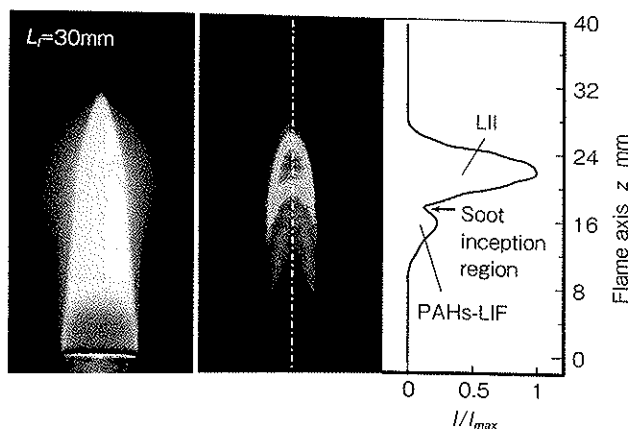


図2 PAHs-LIFとLIIが同時に検出された発光像

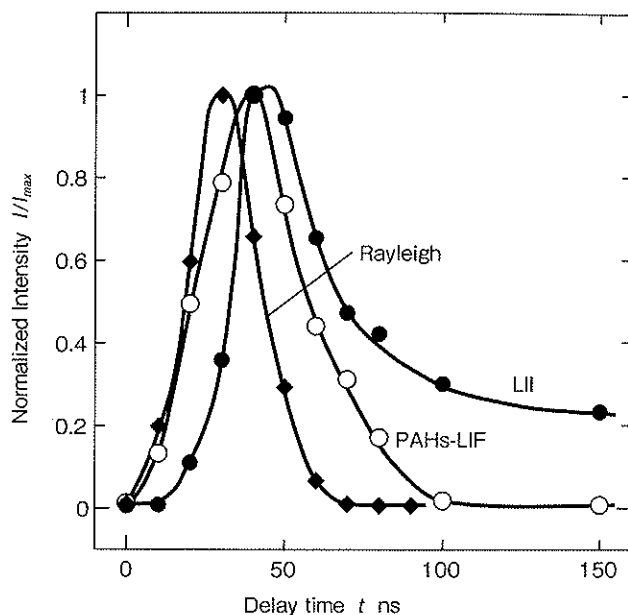


図3 PAHs-LIF、LIIおよびレイリー散乱光の時間変化

層流拡散火炎を形成した。また、火炎を安定化させるために火炎周囲に四分円ノズルで整流した空気流を形成した。

2.2 PAHs-LIFとLIIの経時変化

実際の火炎にレーザーシート光を照射して得られる発光像の一例を図2に示す。図には、火炎の直接写真と火炎軸上の発光強度のプロファイルも合わせて示す。図より、発光像の構造は輝炎部の強い発光と、その下部にも発光が見られる二重構造となっていることが分かる。輝炎部の発光がすすのレーザー誘起赤熱発光 (LII)、未燃部の発光がPAHsのレーザー誘起蛍光 (PAHs-LIF)であり、前述の通り両発光が同時に検出されている。ここで、火炎軸上の強度分布を見ると、LIIとPAHs-LIFの間に発光強度の弱い部分があるが、この部分がPAHsから固体のすす粒子への遷移領域で、ナノ粒子が存在するものと推測される¹⁰⁾。この領域については、PAHs-LIFとLIIがオーバーラップしているため、遷移領域について詳細に検討するにはPAHs-LIFとLIIを分離する必要がある。

カメラのゲート幅を5 nsに設定し、ディレイを変えて測定

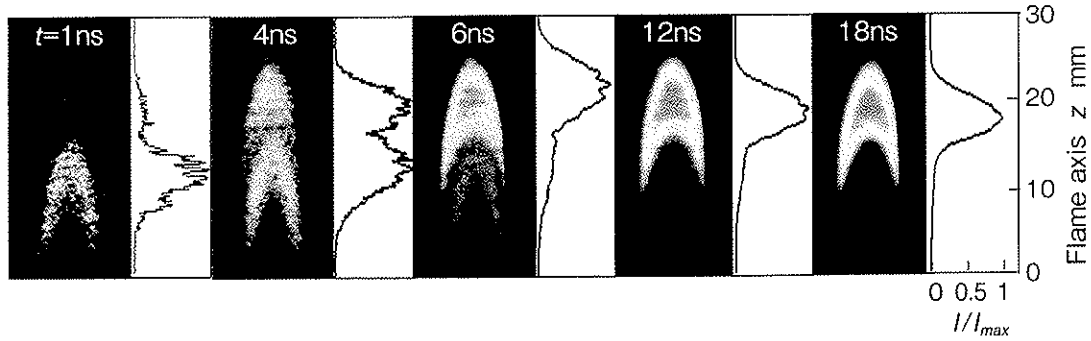


図4 各ディレイにおける発光像

したPAHs-LIF, LIIおよびレイリー散乱光の各発光強度の時間変化を図3に示す。レイリー散乱光は火炎のない状態で測定したもので、レーザー光のパルス発光特性を反映している。図3より、LIIの立ち上がりはPAHs-LIFよりも若干遅く、また、LIIの緩和時間はPAHs-LIFよりもかなり長いことが分かる。したがって、カメラのディレイを短くし、立ち上がりが早期の信号を検出した場合はPAHs-LIFが相対的に強く観察され、ディレイを長くしてPAHsの緩和が終了した後の信号を検出した場合にはLIIのみを観察することができる。

各ディレイにおける発光像と火炎軸上の発光強度のプロファイルを図4に示す。ディレイ $t = 1$ ns の場合、火炎面近傍の未燃領域に相対的に強いPAHs-LIFが現れ、その下流に微弱なLIIが確認できる。発光強度の絶対値が小さいためにプロファイルが滑らかではないが、PAHs-LIFのピーク位置はノズルからの距離 $z = 13$ mm 付近であることが分かる。つづいて $t = 4$ ns では全体的に発光強度が強くなり、特に輝炎部のLIIの強度が大きく上昇している。 $t = 6$ ns ではLIIの強度がPAHs-LIFを上回り、その後はLIIがPAHs-LIFを大きく上回るためにLIIの発光が支配的な像となる。

2.3 PAHs-LIFとLIIの分離

図3に示したように、PAHs-LIFとLIIの各発光の経時変

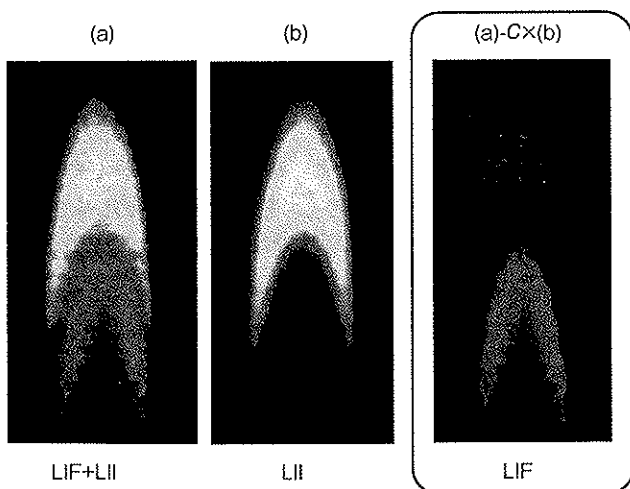


図5 PAHs-LIFの発光像を求める画像処理の過程

化はそれぞれ異なるものの、PAHs-LIFが発光する時間帯にはLIIも存在するため、時間分解計測だけではPAHs-LIFとLIIを完全に分離することができない。しかし、LIIのみの強度分布はディレイを長くしてPAHsの緩和が終了した後の発光を検出すれば求められるので、PAHs-LIFとLIIが重複した発光像から、画像処理によりLII成分を差引くことでPAHs-LIFのみの強度分布を求めることが可能となる。この画像処理の過程を示したのが図5で、(a)がPAHs-LIFとLIIが重畳した発光像、(b)がディレイを長くして測定したLIIのみの発光像である。(b)の強度が(a)のLIIの部分の強度と同じになるように、(b)の画像濃度を調整 ($C \times (b)$) し、(a)から ($C \times (b)$) を差引くことで、PAHs-LIFのみの像を求めることができる。

このような手法で求めたメタンおよびプロパン拡散火炎 (ともに $L_f = 30$ mm) とアセチレン予混合火炎 (当量比2.7) のPAHs-LIFとLIIの強度分布を図6に示す。まず、PAHs-LIF

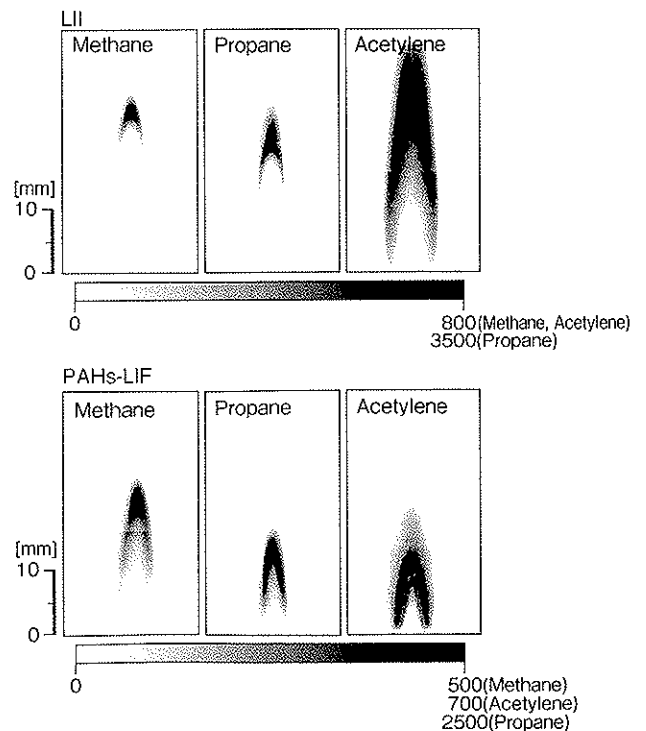


図6 各種火炎内のPAHs-LIFとLIIの強度分布

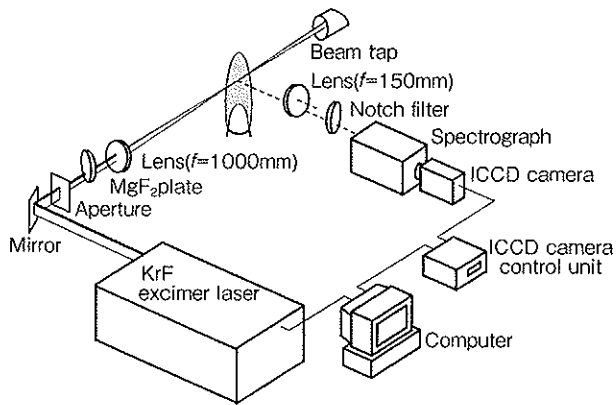


図7 ラマン計測装置

について見ると、メタンおよびプロパン拡散火炎の場合は PAHs-LIF がノズル出口近傍より検出されており、PAHs が未燃領域に広く分布している様子が伺える。また、メタンよりもプロパン拡散火炎の方が、ノズル出口により近い位置で PAHs-LIF が現れている。火炎中心軸上の両者の最大蛍光強度について比較すると、プロパン（発光強度 $I = 2\,240$ a.u.）はメタン（ $I = 489$ a.u.）よりも約4.6倍大きな値を示しており、プロパン拡散火炎の方が火炎内のPAHsが高い濃度で存在することが分かる。またこれらの火炎では、PAHsは火炎内にしか存在しないことが分かる。一方、アセチレン予混合火炎の場合、PAHsは火炎面近傍において急激に生成され、その後下流に行くに従い徐々に濃度が減少する様子が伺える。次に、LIIについて見ると、メタンおよびプロパン拡散火炎では、PAHsの蛍光が消える辺りよりLIIが発光しているように見える。なお、火炎中心軸上のLII発光強度の最大値を比較すると、メタンは $I = 823$ a.u.、プロパンは $I = 3\,615$ a.u. とプロパンはメタンの約4.4倍で、PAHs-LIFと同程度の倍率であった。また、アセチレン予混合火炎のLII強度分布についても、メタンおよびプロパン拡散火炎と同様に、PAHs-LIFの下流でLIIが発光していることが分かる。

3 ラマン散乱法による輝炎内の燃料濃度分布測定

ラマン散乱法は、 N_2 、 O_2 、 H_2O 、 CO_2 や炭化水素分子等の燃焼場における主要化学種を、非接触で定量的に計測することができるという優れた特徴を有する。しかしながら、従来のラマン計測のほとんどが火炎内にすす粒子を含まない不輝炎が測定対象とされてきた。これは、輝炎の場合はPAHs-LIFやLIIがラマン散乱光に重畳して検出されるためである。そこで、著者らはラマン散乱光の偏光特性を利用し、ラマン散乱法より火炎内の燃料濃度分布を求めた¹¹⁾。

3.1 計測装置および測定対象火炎

ラマン計測に使用した装置概略図を図7に示す。光源には時間分解計測と同じKrFエキシマレーザを使用した。レーザ光の偏光方向は、複屈折板の機能を有するMgF₂板をレーザ

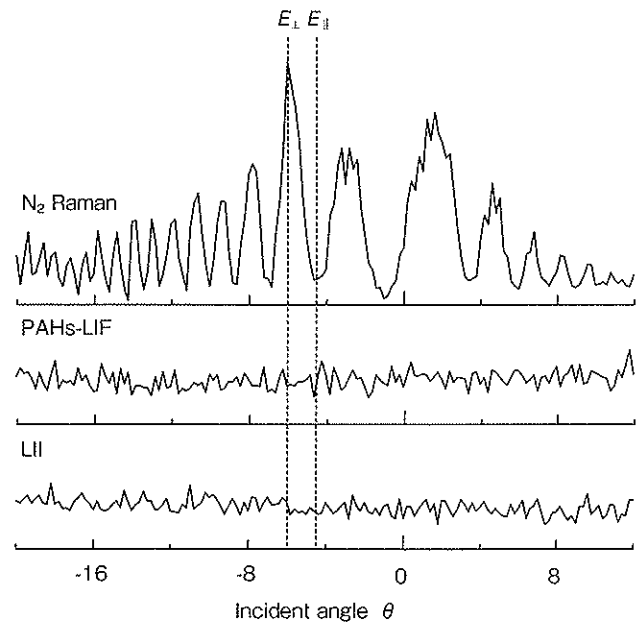


図8 各発光の偏光依存度

光路上に設置し、レーザ光のMgF₂板への入射角（MgF₂板の法線とレーザ光軸のなす角）をステッピングモータでコントロールすることで変化させた。MgF₂板は水平方向に照射されるレーザ光の光軸に対して垂直に設置し、鉛直上方を軸としてMgF₂板を回転させた。レーザ光は焦点距離 $f = 1\,000$ mmのレンズで集光して火炎に照射した。ラマン散乱光や蛍光などレーザ光の照射に伴う発光は分光器（Chromex社、250IS）でスペクトルに分解し、ICCDカメラ（La-Vision社、FlameStar II）で撮影した。また、輝炎部にレーザ光を照射する際には、すすに起因する非常に強度の強いミー散乱光が発生するため、ICCDカメラの保護を目的として 248 ± 4 nmの光をカットするノッチフィルタを分光器の手前に設置した。

測定対象火炎は、図6に示したメタンとプロパンの拡散火炎、およびアセチレン予混合火炎である。燃料は内径6 mmのスチレン製円管より鉛直上方に噴出させ、メタン（燃料流量0.08 L/min）およびプロパン拡散火炎（燃料流量0.05 L/min）は火炎長さ L_f が30 mmとなるように形成した。アセチレン予混合火炎は、内炎高さ9 mm、当量比2.7（燃料流量0.34 L/min、空気流量1.5 L/min）の層流火炎とした。いずれの火炎も安定化を図るために、火炎周囲に四分円ノズルで整流した空気流を形成している。

3.2 各種発光の偏光依存性

ラマン計測で使用したレーザ光は高い直線偏光性を有しており、MgF₂板に対するレーザ光の入射角 θ を変化させることで、レーザ光の偏光をレーザ光軸周りに回転させることができる。メタン拡散火炎のノズルからの距離 $z = 6$ mmの位置にレーザ光を照射し、レーザ光の偏光によるラマン散乱光とLII、PAHs-LIFの発光強度の変化を調べた結果を図8に示す。横軸の入射角 θ は、MgF₂板の法線とレーザ光軸が一致

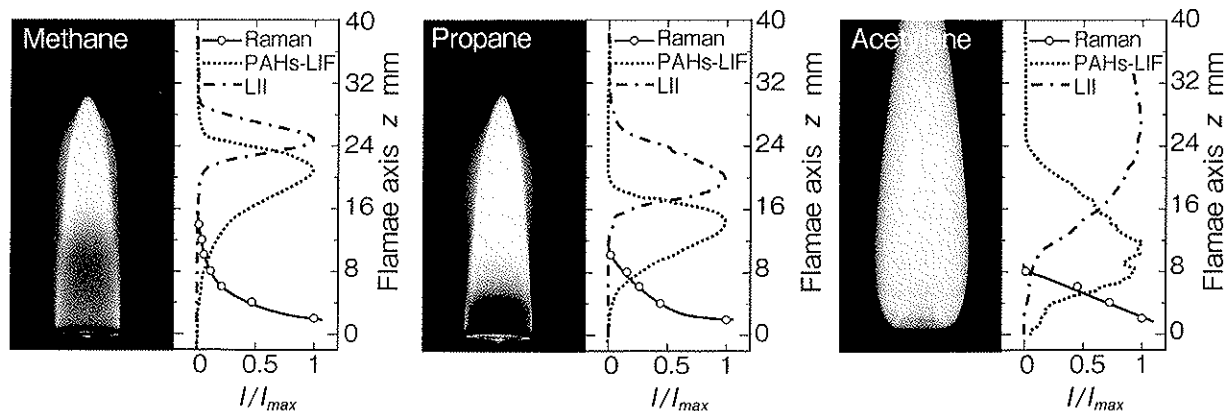


図10 燃料、PAHsおよびすすの火炎軸上分布

する場合が 0° を表し、その前後でなす角を $+$ で区別した。なお、ラマン散乱光については、火炎の外側に現れる周囲空気中の N_2 からのラマン散乱光の強度変化を例に示した。この図より、ラマン散乱光の強度はサインカーブに似た変化をするのに対し、PAHs-LIFとLIIの強度はほぼ一定の値となっていることが分かる。

分子の振動運動において分子対称性が保存される場合、ラマン散乱光はレーザー光の偏光の影響を強く受けて偏光して発生する。ラマン散乱光の偏光方向はレーザー光の偏光方向に依存し¹²⁾、散乱方向は偏光方向に依存するため、図8のような結果が得られる。これに対し蛍光は、本来はラマン散乱光と同様に偏光して発生するものの、大気圧下では原子・分子の衝突が頻繁に行なわれ偏光が解消されるために、その強度に変化が見られなかったと考えられる。LIIについては、さすが高温となり発光するものであるため、その発光強度はレーザー光の偏光に無関係であると考えられる。ラマン散乱光の強度は、レーザー光の偏光方向が発光の観測方向に対して垂直(E_{\perp})のときに強く、平行(E_{\parallel})のときに弱くなる。そこで、ラマン散乱光強度が最大となる θ が -6° と、これに近い角度で極小値を取る -4.6° に MgF_2 板の角度を設定し計測を行なうこととした。

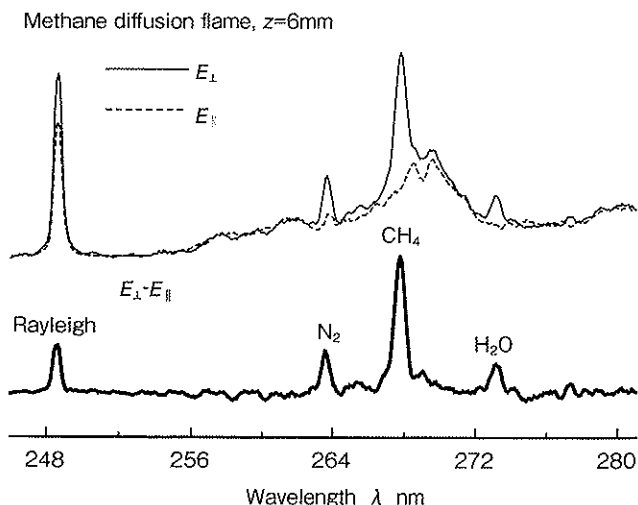


図9 メタン拡散火炎の発光スペクトル

3.3 輝炎内のラマン散乱光の検出

レーザー光をメタン拡散火炎の $z = 6$ mmの位置に照射して得られる、火炎中心部における発光スペクトルを図9に示す。レーザー光の偏光を E_{\perp} に設定して得られたスペクトルは、ラマン散乱光に加えPAHs-LIFおよびLII等のバックグラウンド光より構成されている(248 nm付近の光はレイリー散乱光)。 E_{\parallel} のレーザー光で得られたスペクトルは、バックグラウンド光と偏光が解消された若干のラマン散乱光より構成されている。

E_{\perp} と E_{\parallel} のレーザー光は偏光が異なるのみで、波長とエネルギー密度は同一であるため、 E_{\parallel} のバックグラウンド光は E_{\perp} にも同じ強度分布で存在していると考えられる。したがって、 E_{\perp} から E_{\parallel} を差し引くことにより、目的とするラマン散乱光のみを抽出することが可能となる。その処理を行なったスペクトルが($E_{\perp} - E_{\parallel}$)である。このスペクトルを見ると、 E_{\perp} と E_{\parallel} の256 nm以上の波長域に現れていた連続スペクトル成分が除去され、ラマン散乱光のみが残る様子が分かる。ピーク波長より判断すると¹³⁾、このスペクトルには N_2 、 CH_4 、および H_2O のラマン散乱光が現れていることが確認できた。

3.4 輝炎内の燃料、PAHs、すす濃度分布

火炎軸上の各高さにおいて燃料成分のラマン散乱光強度を求め、燃料濃度分布を測定した。燃料、PAHsおよびすすの位置関係を詳細に議論するために、火炎中心軸上の各発光のプロファイルについてまとめた結果を図10に示す。メタン拡散火炎について見ると、燃料濃度はノズル出口直後では急激に、その後 $z = 8$ mm付近より緩やかに減少する様子が分かる。PAHsは燃料が減少するにつれて増加し、 $z = 20$ mm付近でピークを迎える。さらに、このピーク付近でLIIが現れ始め、PAHsが消滅する $z = 26$ mm付近でピークを迎え、目視による火炎長さである $z = 30$ mm付近においてLIIは検出されなくなる。プロパン拡散火炎もメタン拡散火炎とほぼ同様の傾向を示すが、PAHsとすすのピーク位置はメタン拡散火炎よりも上流に位置している。そして、未燃領域が狭くなる反面、すすの領域が広がっている。

一方アセチレン予混合火炎では、燃料濃度は内炎の火炎面

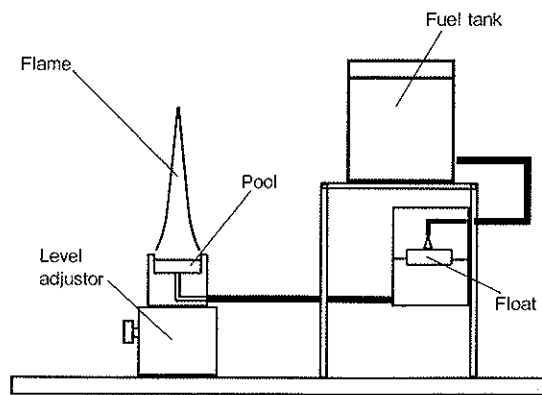


図11 プール燃焼器

まではほぼ直線的に濃度が減少している。PAHsは内炎の火炎面上流においても検出されており、反応帯からの予熱によってすでにPAHsが形成されることが分かる。PAHs濃度は $z = 8$ mmにおいてピークを迎え、その後わずかに減少してから $z = 11$ mm付近において再びピークを迎える。 $z = 9$ mmにおける濃度の減少については再現性が確認されており、この位置は内炎高さと一致していることから、反応帯上流で生成したPAHsの一部が反応帯において燃焼したために濃度が減少した可能性が考えられる。PAHsは $z = 11$ mm以降緩やかに減少していき、 $z = 24$ mmあたりで消滅する。これに対しLIIは、拡散火炎の場合と同様に、PAHs濃度のピーク付近より現れ始め、PAHsがなくなる位置において最大値を取る。図10より、PAHsは燃料分子の熱分解に続く諸反応によって形成され、PAHsが前駆体となってすすが形成される様子を明確に読み取ることができる。

4 火炎内に存在するPAHsの炭素数の推定

時間分解によるPAHs計測より、火炎内のPAHsの全体的な濃度分布を知ることができた。しかしながら、この方法では得られたPAHsがどのような化学種であるかを知ることができない。そこで、以下に示すPAHs-LIFの分光スペクトルからPAHsの炭素数を推定する方法を検討した。

4.1 計測装置および測定対象火炎

使用した計測装置は図7に示したラマン計測装置と同様のものであるが、 MgF_2 板とノッチフィルタは外してある。

測定対象火炎の燃料には、ノルマルパラフィンのヘキサン(C_6H_{14})と芳香族のベンゼン(C_6H_6)を用いた。両燃料の炭素数は6と同一である。また、比較のために気体燃料のプロパン(C_3H_8)とディーゼルエンジンの燃料である軽油も使用した。燃焼形態は層流拡散火炎で、液体燃料の定常な拡散火炎を形成するために図11に示すプール燃焼器を使用した。燃料はタンク下の燃料供給器を介してプールに供給され、プール上部に拡散火炎が形成される。プールの形状は、外径20 mm、内径16 mm、深さ6 mmで、プール上端中心から鉛直上方への距離を z とした。軽油の場合は燃料の蒸発量を促進

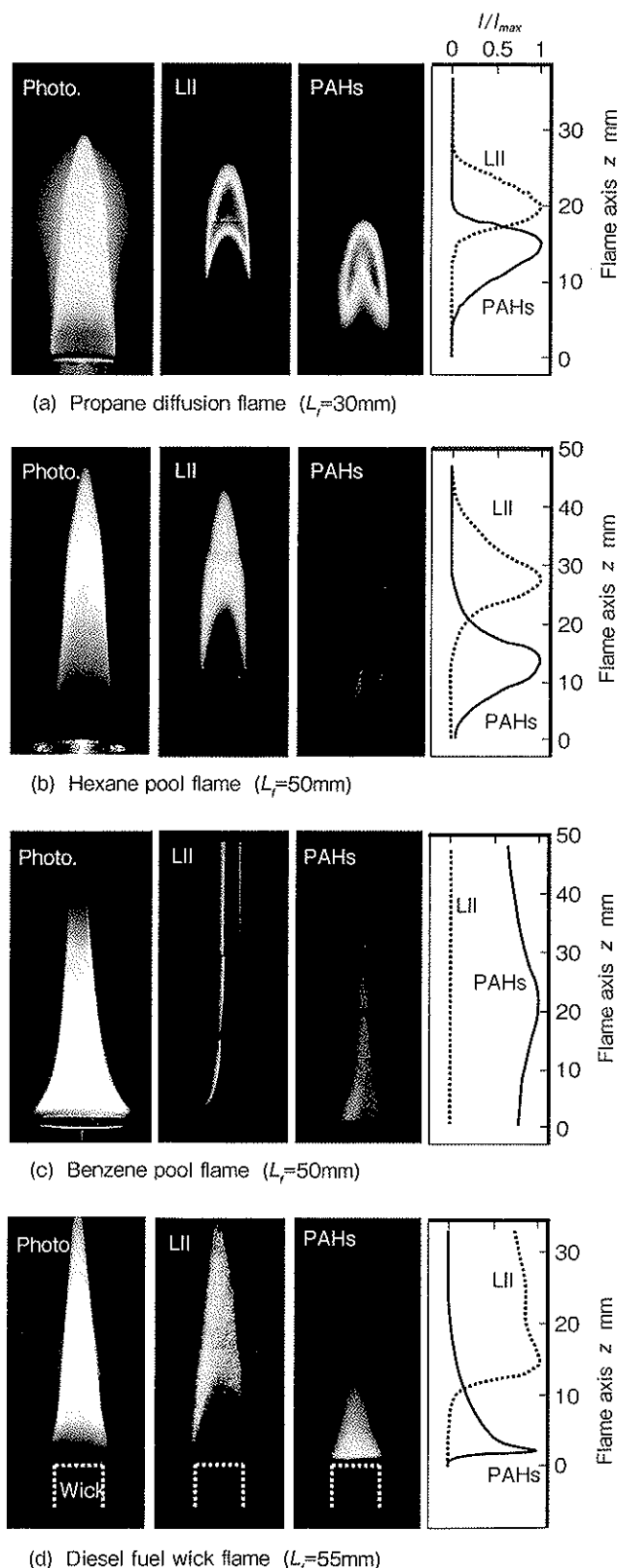


図12 各種火炎内のPAHsとすすの濃度分布

させるために、プール中央に直径8 mmの焼結金属をプール上端より7 mm突き出るように設置した。

4.2 測定対象火炎のPAHsとすす濃度分布

時間分解計測と画像処理により求めた、測定対象火炎のPAHs-LIFとLIIの強度分布を図12に示す。図中、右端のプ

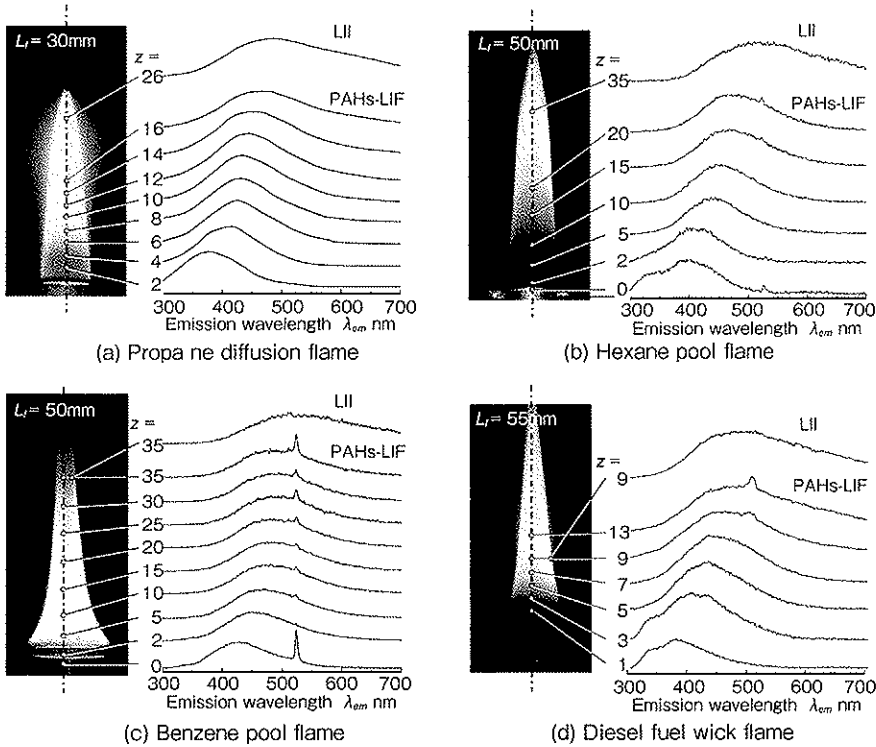


図13 火炎軸上におけるPAHs-LIFのスペクトル

ロファイルは火炎軸上の相対強度変化を表す。ノルマルパラフィンであるプロパンとヘキサンの場合、PAHsは火炎内部の未燃領域に広く分布しており、その下流ですすが生成している様子が伺える。火炎軸上のプロファイルを見ると、火炎上流から徐々にPAHs濃度が上昇し、PAHs濃度がピークを迎える付近ですすが生成され始めることが分かる。そしてPAHsが減少するにつれてすす濃度が上昇し、PAHs濃度がゼロになる付近においてすす濃度が最大値を取る。その後すすは火炎帯で酸化されるため、濃度が減少する。

芳香族であるベンゼンの結果は、ノルマルパラフィンと大きく異なっている。すなわち、燃料液面直上よりPAHsが見られ、それが下流の燃焼反応が終了する領域まで存在し、最終的にPAHsのまま、すすとともに大気に放出されている。すすは火炎軸上にはほとんど存在せず、火炎外縁に円筒状に分布しており、火炎先端が開いた形状となっている。軽油の場合、PAHsは灯芯直上に濃度ピークが存在し、下流に行くにしたがい濃度が減少している。灯芯直上で検出されたPAHsは、燃料中に予め含まれている芳香族分と灯芯内部で燃料の熱分解により生成したPAHsであると考えられる。すすはプロパンやヘキサンと同様にPAHs下流にて生成されるが、生成量が多いため火炎内で酸化しきれなかったものが大気中に放出される。

4.3 PAHsの成長挙動と燃料種による違い

PAHsはその種類により蛍光の発光波長域が異なるため、蛍光の分光分析を行なうことで、火炎各位置に存在するPAHsの種類を推定することができる¹⁴⁾。図13は分光器を用いて火炎軸上の各位置で求めた、PAHs-LIFの分光スペクトル

ルである。これを見ると、いずれの火炎も下流に行くほどスペクトルのピーク波長が長波長側にシフトしていることが分かる。なお、各火炎の最上部に示したスペクトルはLIIのスペクトルで、いずれの火炎も下流のすす生成領域に近づくにつれて、PAHs-LIFのスペクトルのプロファイルはLIIに近くなっている。これは、火炎上流の小さなPAHsが徐々にすすに近い大きなものへと成長していくことを示唆している。

火炎内に存在するPAHsについて、個々の気相状態における蛍光スペクトルを求め、そのプロファイルのピーク波長を読み取り、PAHsの炭素数に対してプロットしたデータを図14に示す。図中には幾つかの代表的なPAHsの構造図も示した。この図より、PAHsの炭素数増加とともに蛍光スペクトルのピーク波長が長波長側に遷移することが確認できる。

このデータを図13に示した火炎内のPAHs-LIFスペクトルと比較することで、火炎各位置に存在するPAHsの炭素数の推定を行なった。その結果を図15に示す。図中、矢印の範囲が推定される炭素数の範囲を表す。これより、プロパンとヘキサンの場合、初期のPAHsは炭素数が10～16程度の比較的小さなもので、これが成長してすすへと遷移する手前では炭素数が16～24程度の大きなPAHsが存在することが分かった。一方ベンゼン火炎では、燃料液面直上においてすでに炭素数が14～20程度の比較的大きなPAHsが存在することが確認された。ベンゼンの炭素数

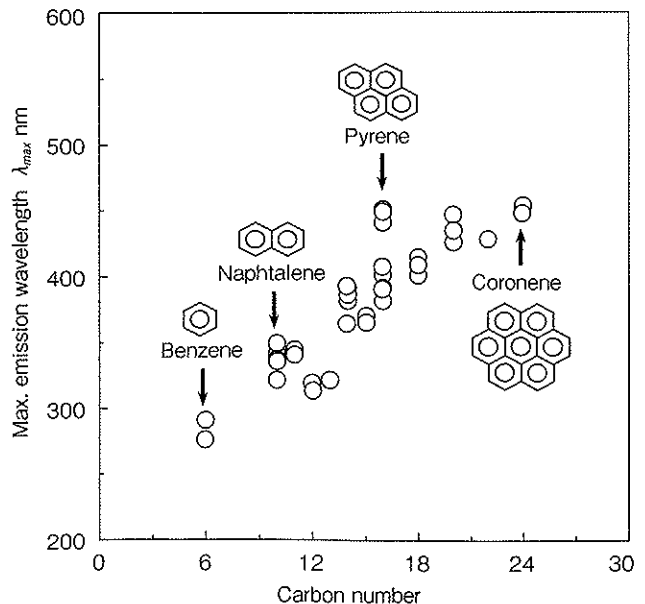


図14 炭素数とピーク波長の関係

は6であるが、蒸発後速やかに大きなPAHsへと成長する様子が伺える。軽油については初期のPAHsの炭素数はヘキサンと同程度であるが、燃料中に芳香族分が含まれているため、その後速やかに大きなPAHsへと成長する。このように、PAHsからすすへの成長特性は燃料種により異なることが確認できる。

いずれの火炎もすす生成領域付近には炭素数が16~24程度のPAHsが多く存在ものと考えられる。炭素数が24の代表的なPAHsとしてコロネン(C₂₄H₁₂)が挙げられるが、コロネンは大きさが約1 nmで、その分子量は300である。すすの核の大きさは数nm、分子量が2 000程度であることを考えると、コロネン程度の大きさのPAHsが幾つか重合することによりすす核が形成されるものと推察される。

5 おわりに

レーザー計測は測定場に外乱を与えず、時間応答性に優れるなどの利点が多いため、レーザー計測技術を用いたすす生成メカニズムの解析が今後ますます広がるものと予想される。本稿では分光分析により火炎各位置に存在するPAHsの炭素数範囲を推定したが、さらに種々の励起レーザー光波長を使用し、またPAHs毎の蛍光寿命の違いを利用した時間分解計測を行なうことで、PAHsの種類をより具体化することができるものと思われる。最後に、本稿の内容が今後のPM低減技術の開発に少しでも寄与することができれば幸いである。

本研究は、著者が群馬大学大学院工学研究科および本更津工業高等専門学校に在籍中に実施したものである。研究の遂行にあたり、群馬大学大学院工学研究科の新井雅隆教授と天谷賢児教授には終始懇切丁寧なご指導を賜った。また、両校の学生諸氏には多大なご協力をいただいた。ここに心より謝意を表す。なお、本研究ではレーザー計測装置として、群馬大学工学部特別設備の瞬間画像解析装置を使用させていただいた。合わせて謝意を表す。

【参考文献】

- 1) H. Richter and J.B. Howard: Formation of polycyclic aromatic hydrocarbons and their growth to soot — a review of chemical reaction pathways, *Progress in Energy and Combustion Science*, Vol.26, Issues 4-6, pp.565-608 (2000)
- 2) D.R. Tree and K.I. Svensson: Soot processes in compression ignition engines, *Progress in Energy and Combustion Science*, Vol.33, Issue 3, pp.272-309 (2007)
- 3) K. Kohse-Höuinghaus, R.S. Barlow, M. Aldén and J. Wolfrum: Combustion at the focus: laser diagnostics and control, *Proceedings of the Combustion Institute*, Vol.30, Issue 1, pp.89-123 (2005)
- 4) 相澤哲哉, 小酒英範: 非定常噴霧火炎内初期すす生成過程のレー

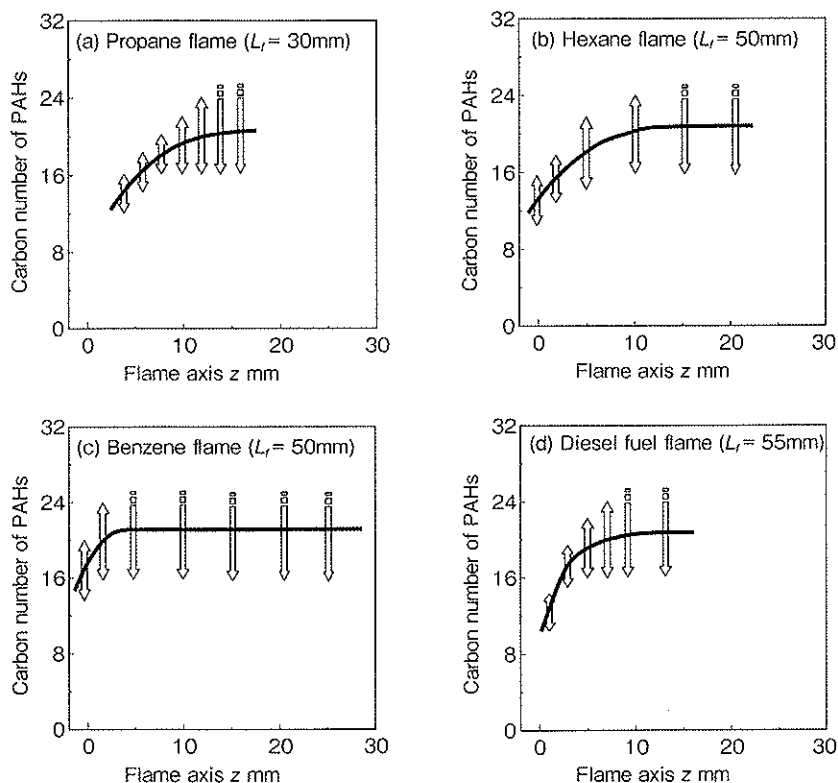


図15 火炎軸上におけるPAHsの炭素数変化

- 5) T. Lehre, R. Suntz and H. Bockhorn: Time-resolved two-color LII: size distributions of nano-particles from gas-to-particle synthesis, *Proceedings of the Combustion Institute*, Vol.30, Issue 2, pp.2585-2593 (2005)
- 6) K. Hayashida, K. Amagai and M. Arai: Experimental analysis of soot formation in sooting diffusion flame by laser-induced emissions, *Journal of Engineering for Gas Turbines and Power*, *Transactions of the ASME*, Vol.128, Issue 2, pp.241-246 (2006)
- 7) J.W. Daily: Laser induced fluorescence spectroscopy in flames, *Progress in Energy and Combustion Science*, Vol.23, Issues 2, pp.133-199 (1997)
- 8) R.L. Vander Wal: Laser-induced incandescence: detection issues, *Applied Optics*, Vol.35, No.33, pp.6548-6559 (1996)
- 9) 佐藤桂司, 林田和宏, 天谷賢児, 新井雅隆: 火炎中に生成される多環芳香族炭化水素のレーザー計測 (第1報, 時間分解計測によるレーザー誘起蛍光と赤熱発光の分離), *日本機械学会論文集 (B編)*, 70巻, 692号, pp.1051-1057 (2004)
- 10) R.L. Vander Wal, K.A. Jensen and M.Y. Choi: Simultaneous laser-induced emission of soot and polycyclic aromatic hydrocarbons within a gas-jet diffusion flame, *Combustion and Flame*, Vol.109, Issue 3, pp.399-414 (1997)
- 11) 林田和宏, 天谷賢児, 佐藤桂司, 新井雅隆: ラマン散乱法による輝炎内の燃料濃度分布測定, *日本機械学会論文集 (B編)*, 71巻, 705号, pp.1445-1452 (2005)
- 12) 濱口宏夫, 尾崎幸洋, 寺前紀夫, 尾鍋研太郎, 堀田和明: レーザ分光計測の基礎と応用, *アイビーシー*, pp.334-337 (1992)
- 13) E.W. Rothe, and P. Andresen: Application of Tunable Excimer Lasers to Combustion Diagnostics: a Review, *Applied Optics*, Vol.36, No.18, pp.3971-4033 (1997)
- 14) 佐藤桂司, 林田和宏, 宮川拓, 天谷賢児, 新井雅隆: 火炎中に生成される多環芳香族炭化水素のレーザー計測 (第2報, レーザ誘起蛍光スペクトルを用いたPAHsの推定), *日本機械学会論文集 (B編)*, 70巻, 696号, pp.2183-2190 (2004)