プロパンの層流拡散火炎内における PAH 生成挙動*

小林 佳 弘^{*1}, 新 井 雅 隆^{*2}

PAHs Formation Behavior in Laminar Diffusion Flames of Propane

Yoshihiro KOBAYASHI and Masataka ARAI^{*3}^{*3} Department of Mechanical Engineering, Gunma University,
1-5-1 Tenjin-cho, Kiryu-shi, Gunma, 376-8515 Japan

Nano meter size particulate matter (PM) and polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) have harmful effects for human health. Investigations of the fundamental characteristic of PAHs behavior in combustion process were required for the establishment of the reduction technologies for nano-PM emission. In this paper, PAHs characteristics in diffusion flames of propane gas were investigated using laser diagnostic and gas sampling methods. A laser induced fluorescence (LIF) method was used to obtain the spatial distributions of PAHs. Spatial distributions of soot were also measured by a laser induced incandescence (LII) method. A transition region from PAHs to soot was defined from the results of LIF and LII. Further, PAH concentrations in the test flames were measured using a gas chromatography (GC), and the profiles of PAHs concentrations in the test flames were investigated. As the results, heavier molecules PAHs such as fluorene and pyrene were confirmed as precursors of soot.

Key Words: Flame, Combustion, Laser, Diffusion Combustion, Polycyclic Aromatic Hydrocarbons, PM, Soot, SOF, Laser Induced Fluorescence, Gas Chromatography

1. 結 言

近年, 自動車排ガス中に含まれるナノメーターサイズの微粒子 (以降ナノ PM と略記する) が大気汚染や人体に対して悪影響を及ぼす可能性があることが指摘されている^①. また, この PM にはすす成分のみならず可溶性有機成分 (以降 SOF と略記する) が含まれている^{②③}. このような PM の前駆物質と考えられる多環芳香族炭化水素 (以降 PAHs と略記する) も人体に悪影響を及ぼす場合があり^④, これらの発生を抑制する燃焼技術の確立が求められている. このためには, 火炎中における PAHs の挙動と, PAHs から PM への遷移過程を詳細に把握する必要がある.

ディーゼル火炎中の PAHs や PM 特性については, これまでにいくつかの報告が見られるが^⑤, 火炎面位置と PAHs 分布の関係や PAHs からすすへの遷移過程などをより詳しく調べるためには, 火炎構造が単純な層流火炎を対象とした研究が有効であると考えられる. このような観点から, 著者らはベンゼン(C_6H_6), ヘキサン(C_6H_{14}), プロパン (C_3H_8), および, 軽油などの層流拡散火炎を対象に, PAHs やすす粒子の挙動を調

べてきた^{⑥-⑧}. 特に, レーザ誘起蛍光 (Laser Induced Fluorescence, 以降 LIF と略記する) 法とレーザ誘起赤熱発光 (Laser Induced Incandescence, 以降 LII と略記する) 法^⑨を用いることによって, 火炎内の PAHs やすすの空間分布を調べ, PAHs がすすに遷移する過程を詳細に観察してきた^{⑩, ⑪}. さらに, 火炎中の PAHs を直接サンプリングして成分分析を行ない LIF や LII のデータと比較することによって様々な拡散火炎内の PAHs 挙動を明らかにしてきた^{⑫⑬}.

しかしながら火炎内の PAHs の分布や濃度と, その後に形成される PM の特性との関連性についてはさらに詳細な分析が必要と考えられる. そこで本研究ではプロパンの層流拡散火炎を対象として, 火炎の内部や火炎の外部に放出される PAHs 濃度を求めるとともに, 超微量 PM 分析装置を用いて火炎中に形成される PM の成分を明らかにし, PAHs 挙動と PM 成分との関連性を詳細に調べることにした. 特に, 火炎の大きさと火炎内部の PAHs の濃度分布やそこでの代表的な芳香族成分の関係, また火炎の大きさと PM 成分である dry soot や SOF の関係を明らかにした.

2. 実験装置および実験方法

2.1 測定対象火炎 本研究ではプロパン拡散火炎を対象とし, 長さの異なる火炎を比較することにし

* 原稿受付 2008年5月16日.

^{*1} 群馬大学大学院工学研究科(〒376-8515 桐生市天神町1-5-1).^{*2} 正員, フェロー, 群馬大学大学院工学研究科.
E-mail: arai@me.gunma-u.ac.jp

た。これは火炎長さの違いにより火炎内での PAHs 濃度やすす生成量が異なると考えられるためである。火炎長さは燃料流量を変化させることで変え、 $L_f = 30\text{mm}$ (噴流速度 = 0.031m/s), 50mm (0.035m/s) および 70mm (0.059m/s) とした。図 1 は火炎の形成装置および試験に用いた火炎の様子を示したものである。

Fig.1 Test burner and flames

火炎の形成装置は、内径 6mm の円筒バーナであり、火炎を安定化させるために周囲に空気を流した。空気流は内径 56mm の四分円ノズルで整流し噴出速度は 0.5m/s に設定した。それぞれの火炎の中心軸を z 軸、半径方向を r 軸とし、円筒バーナの上面中心にその原点を取った。これらの火炎はすべて先端の閉じた形状であり、目視では火炎先端からのすすの排出は見られなかった。

2.2 レーザ計測装置 火炎内の PAHs 濃度分布を可視化するために LIF 法を用いた。図 2 はレーザ計測装置の概略を示している。LIF 法では PAHs を励起してその蛍光を観察する。励起光源には最大パルスエネルギーが 450mJ の KrF エキシマレーザ (Lambda Physik 社 LPX-150T) を使い、OH, NO ならびに H_2O の吸収線に一致しない 248.469nm に波長を設定した。蛍光の検出にはイメージンテンシファイア付 CCD カメラ (La-Vision 社 FlameStar II) を使用した。

Fig.2 Laser diagnostic system

レーザ光はアパーチャを用いて厚さ $0.5\text{mm} \times$ 高さ 20mm のシート状にし、このシート光が火炎軸を通るように照射した。なお、本方法では PAHs の蛍光以外にすす粒子の LII が発生する。これについては著者らが既報で用いた時間分解法^{(9),(10)}によって LIF 像と LII 像を分離した。

2.3 ガスサンプリング装置 火炎内の PAHs の定量分析を行なうためにガスサンプリングを行い、GC を用いた分析を行なった。図 3 はガスサンプリング装置の概略図である。この装置はステンレス製プローブを火炎内に挿入し、シリンジを用いて火炎内のガスをサンプリングするものである。プローブ径が小さいほど空間分解能が高い測定となるが、火炎内部においてすすがプローブ内に詰まるなどの問題があるためにその外径を 1.4mm 、内径を 0.9mm とした。ここで、火炎内のガスをサンプリングする際にプローブ内壁にガスが付着してしまうことが考えられる。例えば Olten⁽¹⁴⁾ らはプローブ内で物質が変化するのを防ぐために流路中を過熱し石英プローブによりサンプリングを行っている。しかしながら本研究のサンプリング流路は比較的短いため特にこれらの考慮はしなかった。

また、プローブ先端のガス吸引速度は火炎形状に影響を与えないように火炎内のガス速度より遅い条件 (およそ 1m/s) とした。さらに、吸引されたガスと一緒にすすがシリンジ内に混入することを防ぐために流路の途中に石英フィルタを取り付けた。

シリンジにより採取されたガスは GC に導入され、分析を行った。本研究で用いた GC (SHIMADZU 社, GC-14BP+GC-14BPF) は PAHs を分析するために TENAX サンプリング採取管、キャピラリカラム、水素炎イオン化検出器およびデータ出力器から構成されており、ベンゼン (C_6H_6)、トルエン (C_7H_8)、ナフタレン (C_{10}H_8)、ブチルベンゼン ($\text{C}_{10}\text{H}_{14}$)、ジフェニル ($\text{C}_{12}\text{H}_{10}$)、フルオレン ($\text{C}_{13}\text{H}_{10}$) およびピレン ($\text{C}_{16}\text{H}_{10}$) の定量分析が可能である。測定にあたっては、ベンゼンやトルエンなどの低分子量の単環の芳香族成分は高濃度で検出されるため希釈器 (VKLI00s, PaLaS 社) を用いて、空気で 330 倍に希釈した。また、逆にピレンなどの高分子量の PAHs は低濃度で検出される場合があるため、GC に付属するサンプル採取管への吸着量を増やし、通常の 4 倍に濃縮した後にそれぞれ分析を行った。

さらに超微量 PM 分析装置 (HORIBA 社 MEXA-1370PM) により火炎内の PM の成分分析も行なった。PM のサンプリングは上述したガスサンプリング装置を用い、石英フィルタに付着した PM の粒子の分析を行った。これにより、PM と SOF (soluble organic

fraction, 未燃炭化水素), Soot(すす), Sulfate(硫酸塩)の質量濃度を求めることが可能である。

3. 実験結果および考察

3.1 レーザ計測法による火炎構造の可視化 図4は $L_f=30\text{mm}$ のときのプロパン火炎の写真とレーザ光を照射した場合に見られる発光像である。図の左から右にレーザ光を照射しているため、左側の方が発光強度は若干強いが、ここでは特にこの非対称性の補正は行っていない。図のように火炎内部に円錐状に発光している部分と、下流側にそれを取り囲むように強い発光部分が見られる。内部の円錐状の部分は PAHs が存在する部分であり、PAHs の蛍光である。また、その下流部の強い発光部分がすすからの赤熱発光である。PAHs の蛍光部分とすすの発光部分の間に発光強度の低い領域が見られるが、この部分は Vander Wal⁽⁹⁾や Smyth⁽¹⁰⁾および著者らが得た発光強度分布と類似しており、PAHs からすすへの遷移領域である⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾。なお、後述の GC による分析で得られる高濃度のベンゼンやトルエンなどの単環の芳香族は LIF の感度が低いため、ここで得られた LIF の分布にはベンゼンやトルエン以外の PAHs に起因する部分も含まれているものと思われる。

Fig.4 Photograph and laser induced emission image propane flame

Fig.5 Spatial distributions of PAHs-LIF and soot-LII

時間分解 LIF 法⁶⁾を用いて PAHs の LIF とすすの LII の分離を行なった。図 5 はこれによって得られた $L_f=30, 50$, および 70mm の火炎の PAHs の LIF 像, ならびに, すすの LII 像である。

図 5 (a) の $L_f=30\text{mm}$ の場合, 火炎中心軸上での発光強度を見ると, $z/L_f=0.2$ より下流側で PAHs 蛍光が検出され, およそ $z/L_f=0.4$ ($z=15\text{mm}$) で発光強度が最大値となった。そして, 火炎下流へ進むにつれ弱くなっている。LIF の発光強度については, 後の図 8, 9, 10 に示されている火炎内の温度分布と LIF は大きく異なる分布を示すことなどから火炎温度の影響をあまりうけず, PAHs の濃度に強く依存するものと考えられる。プロパン層流火炎を対象に分光分析器を用い PAHs-LIF の光の波長の検出を行った既報⁶⁾において火炎内の PAHs-LIF のピーク波長は z の増加と共に短波長から長波長へシフトした。これは炭素数の小さな PAHs から大きな PAHs に変化していくことに対応することを示した。すなわち, これは $z/L_f=0.4$ に達するまで燃料であるプロパンがベンゼン等の単環の芳香族を経て PAHs へと徐々に変化し, それらの濃度が増すことにより発光強度が強くなってゆくものと考えられる。さらに $z/L_f=0.4$ より下流になると PAHs はより大きな分子へと変化してゆくことで, 発光強度が低下するものと考えられる。 $z/L_f=0.5$ より下流側ではすすによる LII の発光が検出されている。このように PAHs が減少し LII 光が増加する領域が PAHs からすすへ遷移する領域と考えられる。

図 5 (b) および (c) の場合も, $z/L_f=0.2$ より下流側で PAHs 蛍光が検出され, $z/L_f=0.4$ ($z=15\text{mm}$) で発光強度が最大値となり, $z/L_f=0.5$ 付近からすすの発光が検出された。このように火炎長さが変化した場合でも PAHs からすすへ遷移する領域はおよそ $z/L_f=0.5$ 付近であることがわかる。

Fig.6 Signal intensity of PAHs-LIF and soot-LII

図 6 はそれぞれの火炎長さで規格化された距離 z/L_f に対して中心軸上の発光強度分布をプロットしたものである。ただしそれぞれの強度の最大値が 1 となるように規格化してある。図 6 から, いずれの火炎の場合も PAHs-LIF の強度はノズル出口から徐々に強くなり, $z/L_f=0.4$ 付近で最大となる。そしてその後は徐々に弱くなることがわかる。さらに下流におけるすすの LII 強度が最大となる位置も, $z/L_f=0.7$ 付近で火炎長さによる差が見られない。

これは火炎長さの変化によらず PAHs, およびすすの両者ともそれらが存在する領域が一定の割合で拡大していくことを示している。これは燃料から PAHs が形成されるのに必要な時間や PAHs からすす粒子への変化に要する時間は火炎長さの変化に無関係に定まると推定されるが, 燃料の噴出速度が増加するのに伴い, PAHs やすすの存在する領域が引き伸ばされたものと考えられる。

3.2 GC による火炎内 PAHs の測定 LIF 法では火炎内における PAHs の分布状態を調べることはできるが, 個々の PAHs 濃度を定量的に測定することは難しい。そこで GC を用いて各成分の計測を行なった。

Fig.7 GC chart for propane flame of $L_f=30\text{mm}$

図 7 は $L_f=30\text{mm}$ の場合のプロパン火炎の中心軸上における GC 測定結果である。ここでは, PAHs-LIF 領域内の $z=10\text{mm}$ ($z/L_f=0.35$), 遷移領域直前の $z=15\text{mm}$ ($z/L_f=0.5$), 遷移領域直後の $z=18\text{mm}$ ($z/L_f=0.55$), およびす

生成領域の $z=25\text{mm}$ ($z/L_f=0.85$) の位置について測定結果を示した。GC では分子量の大きな PAHs になるほど検出器が検出するまでの保持時間が長くなる。ベンゼンやトルエンなどの低分子の芳香族炭化水素の分析では濃度が高いため希釈率を $DR=330$ として分析した。

$z=10\text{mm}$ ($z/L_f=0.35$) のデータを見ると、ベンゼンやトルエン以外に、保持時間がベンゼンやトルエンの2倍程度のところに濃度は低いものの別のピークが存在する。別途行った GC の検定によれば、2 環の芳香族であるナフタレンの保持時間は 52 分であるので、GC チャート上の濃度からして LIF で検出された PAHs としては保持時間が 6 分以内の 1 環と 2 環に対応した芳香族がその主要部であると推定される。また、保持時間の長いフルオレンの付近にいくつかの小さなピークが存在する。この後者のピークは $z=15\text{mm}$ ($z/L_f=0.5$) の遷移領域でも顕著に現れた。一般に、 $z/L_f=0.35$ に比べ $z/L_f=0.5$ では比較的保持時間の短い芳香族の濃度が減り比較的保持時間の長いものの濃度が増加している。そこで、保持時間が 12 分～16 分の間に現れるピークを中心にする前駆体としての PAHs を検討する。

遷移領域直後の $z/L_f=0.55$ では全体的にこの PAHs の濃度が減少した。図 6 の PAHs-LIF においても遷移領域付近では PAHs が大きく減少している。しかしながら、これより下流部の $z/L_f=0.85$ で再び保持時間の長い PAHs の濃度は上昇した。これは PAHs-LIF では得られなかった結果であった。レーザ計測の場合、火炎下流部ではすすの強い発光が現れるが、これにより LIF の光を検出しにくくなっているものと思われる。

3.3 GCによる火炎内 PAHs の分布 図 8, 9, および 10 は $L_f=30, 50$, および, 70mm におけるプロパン火炎の中心軸上において GC により得られた代表的な芳香族の質量濃度、および、白金-白金ロジウム熱電対により測定された温度分布を示す。また、斜線の領域は前述の LIF 法で得られた PAHs からすすへの遷移領域である。ここで、本実験で用いた GC では 10^7g/m^3 (図中の破線) 以下の濃度は検出することが出来ないため、データが得られなかった位置ではそれ以下の濃度であったと判断した。

PAHs からすすへの遷移領域はおおよそ $z/L_f=0.5$ から 0.6 付近であるが、そこでの温度はすべての場合においておおよそ 1200K であった。既報¹³⁾で示したとおり、ベンゼンやヘキサン火炎内の遷移領域の温度もこれとほとんど一致しており、いずれの火炎においても遷移領域の温度はほぼ 1200K となるものと推定される。

すべての火炎において全体的にベンゼンやトルエンの濃度が他の芳香族に比べ高く、さらに火炎外にお

Fig.8 GC results for propane flame of $L_f=30\text{mm}$

Fig.9 GC results for propane flame of $L_f=50\text{mm}$

Fig.10 GC results for propane flame of $L_f=70\text{mm}$

いても検出された。このとき、各火炎内で得られたベンゼンの最大値の濃度はおよそ 0.1% 程度であった。また、火炎外に排出されたベンゼン濃度は 3ppm 程度であった。トルエンに注目してみると一度減少した濃度が火炎の後半のすす生成領域で再度上昇している。これはすす生成領域においても未燃の燃料成分からトルエンなどが生成されていることを示している。このような分布は既報⁽⁹⁾のベンゼンやヘキサン、そして Olsen ら⁽⁴⁾のエチレン火炎においては見られなかった。

火炎長さの違いによる火炎内の PAHs 分布の様子を見ると、火炎長さにより火炎内部に発生する PAHs が異なることがわかる。長い保持時間に対応した高分子の PAHs は火炎上流の PAHs-LIF 領域内で一度出現し、概要としては遷移領域で消失した後、下流部のすす生成領域内で再度検出されている。既報⁽⁹⁾においてプロパン層流火炎を対象に PAHs 成長挙動を推定した結果などから、火炎内ではプロパンの一部がベンゼンやトルエンに変化し、さらにナフタレンなどの 2 環の PAHs を経てピレンなどの大きな PAHs に成長すると考えられる。ピレンのように大きな PAHs は遷移領域の後半からすす生成領域の前半において検出されなくなるが、これはすすへと遷移するためであると考えられる。すす生成領域で再度出現する PAHs についてはす

す生成領域に残存するベンゼンやトルエンが炭素数の大きな PAHs やすに変化し、その過程において新たにピレンなどが形成されたものと解釈できる。

$L_f=50\text{mm}$ と 70mm の場合、火炎上流部に現れたベンゼンとトルエンの濃度のピーク位置は $L_f=30\text{mm}$ の場合に比べ若干下流側に現れた。また、すす生成領域内で見られた濃度の二次的な上昇は火炎が大きくなるにつれて緩慢になる。 $L_f=50\text{mm}$ の場合、遷移領域直前とすす生成領域においてピレンが検出された。また、 $L_f=70\text{mm}$ ではピレンは遷移領域付近にのみ検出され、遷移領域後ではピレンより炭素数の少ないフルオレンが検出された。以上の結果を総合的に考えると、遷移領域の前後に主として出現するフルオレンやピレンなどの高分子の PAHs がすすの前駆体と想定される。

3.4 超微量 PM 分析装置による PM 成分分析 すす生成領域内において検出された PAHs はガス状態で存在しているものと考えられるが、すす粒子を核として SOF のようにその表面に付着し凝集した状態で存在しているものもあると考えられる。ここでは火炎内の $z/L_f=0.8$ の位置にサンプリングプローブを設定し、すす粒子を含むガスを採取し、PM 粒子としてフィルタに捕集されたものの成分分析を行い PM の質量濃度および PM 内のすすと SOF の質量濃度を調べた。ただし、計測された SOF には火炎内のガスをサンプリングした際に流路中にて冷やされてすす粒子の表面に凝集した SOF も含まれている。測定位置を $z/L_f=0.8$ とした理由は、図 6 に示したようにいずれの火炎においてもすす粒子の（体積）濃度が最も高い位置である $z/L_f=0.7$ の下流部のガスをサンプリングするためである。その結果を図 11 に示す。

Fig.11 PM composition for methane flame ($z/L_f=0.8$)

プロパン火炎内には硫黄分は含まれないため、PM の成分としてすすおよび SOF のみが検出された。図 11 から、火炎が大きくなるほど PM およびすすの質量濃度が増加することがわかる。これは、火炎が大きくなるほどすすの生成量が増していくことを示している。そのため、すすを核とする PM の質量濃度もこれに伴い増加する。図 8, 9, および 10 では火炎が小さいほどすす生成領域内で見られたベンゼンやトルエン濃度の二次的な上昇が大きくなり、そのためすすに遷移せず残留する PAHs の量が多くなると推定できる。また、SOF 濃度はほとんど変化がなく同程度の濃度であった。

4. 結 言

燃料流量の異なるプロパン層流拡散火炎を作り、レーザ計測ならびにガスサンプリング法を用いて火炎内で形成される PAHs の分布およびすすへの遷移挙動を調べた。得られた結果を以下に示す。

- (1) 燃料流量が増加すれば、それに伴い火炎は大きくなる。しかし火炎長さで規格化した PAHs-LIF 領域、Soot-LII 領域の範囲および遷移領域の位置は不変である。
- (2) プロパン火炎内のベンゼンやトルエンは火炎上流の PAHs-LIF 領域内で一度ピークを示しその後減少するが、すす生成領域においてもある程度存在している。
- (3) 火炎長さが異なった場合、その火炎内の PAHs 分布や PAHs 種は異なるが、火炎先端から排出される芳香族炭化水素はベンゼンやトルエンなどであり、分子量の大きな PAHs の排出は認められない。
- (4) GC の結果から PAHs-LIF 領域中には 1 環と 2 環の芳香族炭化水素が主に存在していた。
- (5) 遷移領域の前後においてフルオレンやピレンの存在が確認できた。
- (6) 火炎長さが大きくなると PM 内のすすの濃度が増加した。また、SOF の割合はすべての火炎においてほとんど変化しなかった。

謝辞 本研究は鉄道建設運輸施設整備支援機構「運輸分野における基礎的研究推進制度」および平成 19 年度科学研究室補助金「基礎研究(18560190)」の援助のもとに実施されたものである。ここに心より謝意を表す。また、実験の一部について平成 18 年度谷川熱技術振興基金の援助を得た。さらに、本研究を行うにあたり、群馬大学工学部特別設備である瞬間画像解析装置を利用させていただいた。合わせて謝意を表す。

参考文献

- (1) J. P. Longwell, THE FORMATION OF POLYCYCLIC AROMATIC HYDROCARBONS BY COMBUSTION, Nineteenth Symposium (International) on Combustion, The Combust. Inst. 19, (1982), pp1339-1350
- (2) Kittelson, D.B., ENGINES AND NANOPARTICLES: A REVIEW, *Journal of Aerosol Science*, Vol. 29, No.5/6 (1998), pp575-588
- (3) Burtscher, H., Physical characterization of particulate emissions from diesel engines: a review, *Journal of Aerosol Science*, Vol.36 (2005), pp896-932
- (4) J. B. Howard, J. P. Longwell, J. A. Marr, C. J. Pope, W. F. Busby, JR., A. L. Lafleur, K. Taghizadeh, Effects of PAH isomerizations on mutagenicity of combustion products, *Combust. & Flame*, Vol.101 (1995), pp262-270
- (5) T. Aizawa, H. Kosaka, Laser Spectroscopy of Early Soot Formation Process in a Transient Spray Flame (Imaging and Spectral Measurements of Laser-induced Emission at Two Different Excitation Wavelength), *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series B*, Vol.71, No.706 (2005), pp208-214
- (6) K. Hayashida, K. Amagai and M. Arai, SPECTROSCOPIC ESTIMATION FOR MOLECULAR SIZE OF PAH IN VARIOUS DIFFUSION FLAMES, CD Proc. of 6th World Conference on Experimental Heat Transfer, Fluid Mechanics, and Thermodynamics, April, 17-21, Matsushima, Miyagi, Japan, 6-B-4 (2005)
- (7) K. Hayashida, K. Amagai and M. Arai, OH Measurement in Propane Diffusion Flame by a Laser Induced Fluorescence Using a KrF Excimer Laser, *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series B*, Vol.65, No.633 (1999), pp1793-1799
- (8) T. Sako, T. Furuhashi and M. Arai, Nano-PM Emission from Laminar Diffusion Flame of Diesel Fuel, SAE Paper, No. 2007-01-1942, 1516-1527, (2007)
- (9) K. Sato, K. Hayashida, K. Amagai and M. Arai, Laser Measurement of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) in a Flame (1st Report, Separation of Laser-Induced Fluorescence and Incandescence by Time-Resolved Measurement), *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series B*, Vol.70, No.692 (2004), 1051-1057
- (10) Shaddix, C., and Smyth, K. C., Laser-Induced Incandescence Measurements of Soot Production in Study and Flickering Methane, Propane, and Ethylene Diffusion Flames, *Combust. & Flame*, Vol.78 (1995), pp418-452
- (11) K. Sato, K. Hayashida, T. Miyakawa, K. Amagai and M. Arai, Laser Measurement of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) in a Flame (2nd Report, Presumption of PAHs by Laser-Induced Fluorescence Spectrum), *Transactions of the*

Japan Society of Mechanical Engineers, Series B, Vol. 70, No. 696(2004)2183-2190

- (12) Y. Kobayashi, T. Saito, K. Amagai, T. Furuhashi and M. Arai, Measurement of PAHs in Laminar Diffusion Flames of Diesel Fuel Using a Laser Induced Fluorescence Method, *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series B, Vol. 72, No. 719(2006)1835-1842*
 - (13) Y. Kobayashi, T. Furuhashi, K. Amagai and M. Arai, Soot precursor measurements in benzene and hexane diffusion flames, *Combust. & Flame, Vol. 154(2008)pp346-355*
 - (14) N. Olien, S. Senkan, Formation of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in an Atmospheric Pressure Ethylene Diffusion Flame, *Combust. & Flame, Vol. 118, (1999)pp500-507*
 - (15) R.L. Vander Wal, K.A. Jensen and Mun Y. Choi, Simultaneous laser-induced emission of soot and polycyclic aromatic hydrocarbons within a gas-jet diffusion flame, *Combust. & Flame, Vol. 109, (1997) pp399-414*
 - (16) K. C. Smyth, Aspects of soot dynamics as revealed by measurements of broadband fluorescence and flame luminosity in flickering diffusion flames, *Combust. & Flame, Vol. 111, (1997)pp185-207*
-