光散乱法による非球形粒子の速度と等価直径の同時測定*

森北博巳^{*1}, 菱田公一^{*2}, 前田昌信^{*2}Simultaneous Measurements of Velocity and Equivalent Diameter
of Nonspherical Particles Using Light Scattering Method

Hiroshi MORIKITA, Koichi HISHIDA and Masanobu MAEDA

A new instrument for evaluating the equivalent diameter and velocity of nonspherical particles was developed. The technique is based on the diffraction light intensity method where the light scattered in the forward direction is insensitive to the particle shape but is related to the projected area of the scatterer. A calibration curve between diameter and scattered intensity was determined by a computer simulation using Fraunhofer diffraction theory and the geometrical optics method. Signal processing had been performed with transient recorders and a digital signal processor, working with a personal computer. Various types of irregularly shaped particles, such as copper, aluminum oxide, glass, polyethylene and stainless steel with diameters ranging from 20 to 200 μm have been examined. The reference diameter of these particles was evaluated by a microscope with an image processing system. Measured size distribution coincided significantly with the reference data, with uncertainty bands of $\pm 10 \mu\text{m}$, $-0 \mu\text{m}$ in average diameter.

Key Words: LDV, Optical Measurement, Particle Sizing, Multiphase Flow, Laser Velocimetry

1. 緒 言

浮遊流動中の粒子の速度・直径の測定を行うことは、分散粒子相を含む流体を媒体とする工業機器において、その性能の向上や流動特性を知る上で非常に重要である。これまで、球形粒子を対象とした非接触での粒径測定は、光散乱法を利用したいくつかの手法によって実現されているが^{1)~3)}、不規則な形状を持つ粒子については確立されていない。

光束中を粒子が通過したときに放つ散乱光は、粒子の光学的な性質や形状、表面性状などに依存する。その中でも特に反射光や屈折光は、形状に対して強度分布が変化するため、粒子が球形でない限り、その強度から大きさを推定することは非常に困難である^{4),5)}。従って、既存の側方散乱光を利用したパーティクルカウンタなどで、散乱光強度による粒子径の測定は難しいとされてきた。これに対し回折光は、前方の非常にせまい範囲にエネルギーの大部分が集中し、その強度が

粒子の投影面積に依存することが広く知られており⁶⁾、これまでもいくつかの測定器に応用されてきた⁶⁾。本研究では、このような回折光の性質に注目し、その強度を検出することによって、粒子形状に依存しない粒径測定を可能とする測定器を開発する。また、試作した光学系は、従来のLDVや高速な信号処理器と組み合わせることにより、不規則な形状を持つ粒子の速度と粒径の同時測定を実現している。

2. 測定原理

2.1 回折光による粒径測定 粒子がレーザ光束中を通過するとき、粒子によって散乱された光は幾何光学的に反射、屈折、回折に分類される過程を経て、観測面に到達する。回折は光の波動の性質に起因する現象で、図1に示すように常に入射光とは反対側の非常に狭い範囲にみられ、また、その強度分布は、Babinetの定理により、散乱粒子の二次元投影形状をもつ開口からの回折光にほぼ等価である。従って、回折光を利用した粒径測定には、投影された面積と等しい面積 S_p を持つ円の直径をもって等価直径として表すのが妥当であり、投影面積円等価直径(ヘイウッド径) D_h は次式で

* 原稿受付 平成5年4月7日。

^{*1} 准員、慶應義塾大学大学院。^{*2} 正員、慶應義塾大学理工学部(〒223 横浜市港北区日吉3-14-1)。

定義される。

$$D_h = \sqrt{\frac{4S_p}{\pi}} \quad (1)$$

コヒーレント光源から発せられた、平行な光束中におかれた粒子の放つ散乱光は、粒子から十分遠い領域ではFraunhofer回折像となり、その振幅 E は、波長 λ 、波数 k 、入射光のエネルギー密度 E_A を用いて、 y - z 面を開口、 Y - Z 面を観測面とした図2の座標系において次式で表される^(7,8)。

$$E = \frac{E_A e^{i(\alpha x - kR)}}{R} \iint_{\text{Aperture}} e^{ik(Yy + Zz)/R} ds \quad (2)$$

また、式(2)に半径 a の円形開口を適用した場合、座標原点からの距離 q における強度 I は、振幅 E の2乗で表され、開口の面積 A を用いて次式で求められる。

$$I = \frac{E_A^2 A^2}{2R^2} \left[\frac{2J_1\left(\frac{kaq}{R}\right)}{\frac{kaq}{R}} \right]^2 \quad (3)$$

ここで J_1 は第一種、一次のBessel関数を表し、観測面での強度分布は光軸からの距離 q に対して周期的な関数になるため、粒径によってその周期が変化する。また、粒子形状が複雑な場合は、分布は異なる形になるものの、その総量は形状にはほぼ依存せず、強度から粒子の等価的な直径の測定を行うことができる。

実際に回折光を検出する場合には、粒子の周囲を通

図1 回折光強度法の概念図

図2 回折光の座標系

過した光が直接受光器に入射するため、図1に示すように、遮光物(マスク)によって光軸付近の光の受光器への入射を避けなければならない。このとき挿入する遮光物は、粒子の回転による指向性の誤差を極力小さくするために、光軸に対して軸対称(円形)であるものが適当である。種々の直径の円形マスクを用いたときの、粒子の直径と散乱光強度の積分値との関係は、式(3)を積分することによって求めた。図3は、粒径-回折光強度の較正曲線の一例で、焦点距離 $f=300\text{mm}$ 、直径 $d=50\text{mm}$ のレンズを受光に用いた結果である。較正曲線には、回折光の周期性による振動がみられ、粒径測定範囲の条件によっては曲線が単調増加にならない場合があり、目的とする粒径にあわせてマスク径を変更するべきであるが、ここでは、対象粒径である $20\sim 200\text{ }\mu\text{m}$ で最も直線性がよい直径 15 mm のものを使用した。非球形粒子の測定では較正曲線は平滑化される⁽¹¹⁾ため、実際には直線と考えて粒径を求めている。

2.2 屈折光の影響 粒子が不透明な場合には、前方散乱における回折以外の要因は無視できるほど小さい⁽⁶⁾。しかし、透明な粒子の場合には、内部を透過してくる屈折光を無視できず⁽¹⁰⁾、形状に加えて粒子の光学的な性質(屈折率・減衰率)に散乱光が影響を受ける。非球形粒子の散乱光は、ごく限られた条件でのみ数値予測が可能^(11,12)であるが、ここでは、様々な屈折率の球形粒子に関する屈折光・反射光の強度を幾何光学近似法⁽⁸⁾で求めることにより、その大きさの割合を調べ、非球形粒子の実験結果との比較を行った。

図4は計算結果の一例で、レーザ波長 514.5nm 、粒径

図3 球形粒子の粒径-回折光強度較正曲線とマスク径の関係

100 μm , 屈折率1.33, 減衰率が0の場合の, 回折光に対する表面反射光, 屈折光の大きさの分布を比較したものである。回折光が支配的な領域は, 粒子が大きいほど小さくなり, 図4の条件では散乱角にして3.0°である。また, 屈折率が小さいほど前方の狭い領域に屈折光が集中するため, その割合は拡大する傾向がある。図4の結果を直径15mmのマスキに適用し, 約0.01°ごとに積分した較正曲線は図5のような傾向を示す。この結果, 透明な粒子では回折光と同程度の強度で屈折光が存在することがわかった。

非球形粒子の場合には, ランダムな形状に対して正確な数値予測を行うことができないが, 測定対象として考えられるセラミック粒子などは減衰率が比較的大きく, 透明な粒子に比べてはるかに屈折光の影響は少

なくなり, 較正曲線は回折光のみの結果(点線)に近づく⁽¹³⁾。また, 形状が複雑な場合には一般的に球形粒子よりも前方への散乱光が減衰するため, 回折光が支配的であることが予想されるが⁽¹⁴⁾, 透明な粒子のより正確な測定のためには, 屈折光の影響に関する実験的な補正が必要である。

3. 測定装置

3.1 光学系 測定を行うにあたり, 図6のように光学系および信号処理装置を製作した。送光系は図7に示すように, Ar-Ionレーザを光源とする2カラー3ビームとし, 波長488.0nmを速度測定用(LDV)に, 514.5nmを粒径測定用(回折光強度)に用い, 測定部では測定体積が二重になるよう, 光学系を構成した。この二重体積法の採用により, 粒径測定用のビームの中心の一部のみを使用することができ, 入射光束のガウシアン強度分布の影響を受けないため, 測定精度が向上した。また, 図8に示す受光系には, 中心部に直接光入射防止用マスクを設置し, 送光系と受光系の軸が一致するように設置した。この配置では, 一般的に多重散乱の影

図4 球形粒子による散乱光の分布

図5 屈折率による較正曲線の変化

図6 測定装置概念図

図7 2カラー3ビーム送光系

響を受けやすいとされているが、空間フィルタとマスクの組み合わせにより、焦点深度方向にも測定体積が制限されている。図9は焦点深度方向の受光の状態を模式的に表したもので、(a)が測定体積内に粒子が存在する場合、(b)は測定体積の外に粒子がある場合を表している。(a)の状態では、散乱された光は全てピンホールを通過するのに対し、(b)の場合にはIの位置に対応する焦点はI'に形成されるため、マスクで遮光した部分のみがピンホールに投影されるので、散乱光はディテクタに到達しない。同様の効果はII, II'にも現われるため、結果として測定体積は焦点深度方向に厳密に制限される。これらの空間フィルタで、空間分解能と正確な粒径測定との両立が可能となった。最大強度の $1/e^2$ になる点での、実際の測定体積と検出している体積の大きさは、表1に示すとおりで、514.5 nmの測定体積の外部から散乱光は完全に遮断される。また、信号の有効性の判断は、LDVの信号(488.0 nm)で行うため、実質的な測定部の大きさは波長488 nmの測定体積と等しい。これらのフィルタの効果は、ピンホールを用いた実験によ

り確認を行い、良好な結果を得た。

3.2 信号処理系 信号処理器には、高速A/Dコンバータとパーソナルコンピュータを使用した。主な処理はコンピュータのソフトウェア上で行われ、変更や改良を容易に行うことが可能である。A/Dコンバータは8bitの分解能と64KByte/Channelの大容量メモリを持ち、12.5MHzのサンプリング周波数で使用した。このメモリにデータを蓄積することで、レベルトリガリングを行うことなくデータの取得ができるため、大径粒子にデータがバイアスする誤差を非常に小さくすることに成功した。また、ドップラ信号からの速度算出での周波数解析の高速化のため、DSP(デジタルシグナルプロセッサ)を使用し、FFT演算専用の補助プロセッサとして用いた。ホストコンピュータ上で行う処理は、おもに統計処理と信号の良否の判断(バリデーション)であり、光学系で除去できなかった多重散乱などによる不良な信号はここで棄却される。データ棄却の基準は、以下のとおりである。

1. ドップラバースト信号(波長488nm)のパワースペクトルのピークが、2番目に大きいピークの3倍以上のエネルギーがない場合(波長488nmでの多重散乱の除去)
2. ドップラバースト信号と認識できる時間が、0.1msec以下の信号(突発的なノイズの除去、粒子通過位置の限定)
3. ドップラバースト信号の強度が最大になる時点から前後約0.7msec以内に、回折光(514.5nm)の信号が2つ以上のピークをもつ場合(波長514.5nmでの多重散乱の除去)
4. ドップラバースト信号と回折光の信号の、最大値の位置が一致していない場合(波長514.5nmでの多重散乱の除去)

処理速度は、測定対象の粒子密度に依存するが、本実験システムの光学系を用いた場合の、最大の信号処理能力は100個/sec.程度であった。

図8 受光装置の構成

図9 空間フィルタの効果

表1 測定体積の大きさ

	LDV (Velocity)	Diffraction (Size)
Measuring Volume Size [μm]	100	1000
Receiving Area Size [μm]	80	375
Focal Depth and Volume size in x direction [μm]	1000	15000

4. 測定結果および考察

実験に先立ち、光電変換素子(Avalanche Photo Diode)をはじめとする処理回路の検定と、静止した障害物による回折光強度の測定を行った。この場合、測定体積内に粒子を固定するのは困難であるため、装置の較正はピンホールの散乱光強度を得ることで行った。図10は入射光強度一定のときの25, 50, 100 μm のピンホールからの回折光強度であり、計算の予測値(図5, 点線)どおり開口径に比例することが確かめられた。また、測定する粒子の基準となる粒径分布は、CCDカメラと画像処理装置を利用して顕微鏡測定を行うことで求めた。この測定の誤差は、強度のヒストグラムの分布より、20~200 μm の粒径範囲では粒子の形状によらず2.0%以下であると推定される。

浮遊している粒子の測定は、粒子添加装置から自由落下させた、数種の材質・直径・形状の異なる固体粒子によって行った。用いた粒子は、球形で黒に着色したポリエチレン、球形のガラス、非球形粒子の銅、ステンレス、アルミナなどで、図11に顕微鏡写真を示す。ポリエチレン、銅、ステンレスは、粒子中での光の減衰率が非常に高いため、前方での散乱光は回折光とわずかな表面反射光のみであり、回折光のみの較正曲線(図5, 点線)を用いた。また、球形・単分散のガラス粒子には、屈折光を考慮した較正曲線(図5, 実線, 屈折率1.55)で測定を行った。図12~15にこれらの結果の粒径分布を示す。各図(a)は顕微鏡による測定結果、また、(b)は散乱光によるものである。ポリエチレンとガラスは粒子が球形であるため、形状による誤差は生じ

図10 ピンホールによる散乱光強度

ないが、金属の2種については、分布の最頻値は回折光による測定の方が小さい値を示した。顕微鏡で粒径測定を行なう場合、粒子はプレパラート上で安定な姿勢で測定されるため、浮遊中の粒子を測定した結果より粒径分布が大きくなる。従って、分布最頻値の誤差は主に、粒子の姿勢による投影形状の見かけの変化に起因すると考えられる。また、分布の形状はいずれの粒子でも粒径の大きい方に分散する傾向がみられるが、主に測定体積内に複数の粒子が存在する場合の多重散乱による誤差であると考えられる。形状の影響による誤差や、測定体積内の通過位置によるばらつきも存在するが、前述の指向性の要因に比較して十分小さい。粒径分布の平均値はよく一致し、統計的な値では良好な結果を得た。

透明かつ非球形であるアルミナとモランダム粒子(屈

(1)ポリエチレン

(2)ガラス

(3)銅

(4)ステンレス

(5)アルミナ

(6)モランダム

図11 粒子の顕微鏡写真

図12 粒子直径の確率密度分布(ポリエチレン)

図15 等価直径の確率密度分布(ステンレス)

図13 粒子直径の確率密度分布(ガラス)

図16 等価直径の確率密度分布(アルミナ)

図14 等価直径の確率密度分布(銅)

図17 等価直径の確率密度分布(モランダム)

図18 粒径-速度相関の例(銅粒子)

折率2.0~4.0)は、可視光波長域を一部透過するため、実験結果より屈折光の影響を考察した。回折光のみの較正曲線(図5, 点線)を適用した場合の粒径分布を図16, 17に示す。屈折光の影響は常に見かけ上の粒径を大きくするにもかかわらず、分布の最頻値が小さく測定されたことから、試料の粒子散乱光のうち屈折光が占める割合は、双方の粒子ともに20%以下と推定でき、実質的に回折光が支配的であるといえる。試料と屈折率の等しい球形粒子では、回折光に対し屈折光が50%程度の強度で存在するが、形状の影響と粒子内での減衰により屈折光は1/2以下に減少している。大径粒子の分布が大きい方に偏り、分布が不透明な粒子と比較して広くなる傾向があるため、屈折の影響は粒子の形状や向きに大きく依存するが、統計処理後の結果に大きな差は現れなかった。また、粒径範囲が狭く、既知の粒子の場合には、マスク径を小さくすることによって相対的に回折光の割合を大きくすることができ、非球形粒子測定における精度の向上が期待できる。

また、速度との同時測定においては、図18に示すような結果を得た。粒子は落下終端速度に十分に達していないが、粒径・速度間に明確な相関がみられ、本手法の妥当性が証明された。粒子の三次元形状や落下時の姿勢に関して不確定な要素が多いため、これらの実験結果より定量的に精度を評価することはできないが、測定を行った粒子径の平均値では、顕微鏡測定の値に対し+10 μm , -0 μm の誤差にとどまり、工業上で要求される精度を十分に満たすものと考えられる。

5. 結 言

流体中に添加された、非球形の粒子の速度および等価直径を測定する装置を開発し、その性能を評価した。回折光強度法とLDV法を組み合わせた光学系は、従来の2カラーLDVシステムを変更して使用し、0.2個/ mm^3 ($D_p < 200 \mu\text{m}$)程度の数密度における、複雑な形状の粒子等価直径の測定に適用できることが確認された。

本手法では、粒子中の光の減衰率が大きい場合、すなわち透明でない場合に、形状の粒子に依存せずに高い精度で粒径分布を求めることができる。また、透明な粒子については、屈折率・減衰率といった粒子の光学的特性が精度に影響を及ぼすが、表面性状が複雑な粒子では、透過光の影響がほぼ無視できることが実験的に確認された。本実験で扱った数種類のセラミック粒子では、屈折光の影響は、回折光に対して20%以下と推定され、実質的には回折光が支配的であり、十分な精度での測定が可能であった。

測定誤差は、測定を試行した全ての粒子の平均粒径について、+10 μm , -0 μm であり、既存のものに比べ優れた手法であることが認められた。また、光学的性质が既知の粒子に対しては、較正曲線に対して補正を行うことにより、さらに測定精度を向上させることが可能である。

最後に本研究を行なうにあたり、実験に協力いただいた本塾学部生、田久保善彦君に感謝の意を表す。

文 献

- (1) 菱田公一, 他2名, 気流中の微粒子の速度・粒子径の同時測定, 機論, 55-509(B), 1989-1, pp. 80.
- (2) K. Kobashi, 他2名, Applications of Laser Technique to Fluid Mechanics, Springer-Verlag, 1990, pp. 268.
- (3) Y. Hardalupas, Ph.D. Thesis, Imperial College, 1989.
- (4) R. T. Killinger & R. H. Zerull, Optical Particle Sizing (Proceedings of an international symposium on optical particle sizing, 1988, Rouen, France), Plenum Press, pp. 419.
- (5) H. Umhauer & M. Bottlinger, 3rd International Congress on Optical Particle Sizing, Arizona, U. S. A., 1990.
- (6) J. C. F. Wang & K. R. Hencken, Appl. Opt., Vol. 25, No. 5, 1986, pp. 653.
- (7) Eugene Hecht, Optics, Addison-Wesley Publishing Co., 1987.
- (8) H. C. van de Hulst, Light Scattering by Small Particles, Dover Publishing Inc., 1957.
- (9) A. R. Jones, Optical Particle Sizing (Proceedings of an international symposium on optical particle sizing, 1988, Rouen, France), Plenum Press, pp. 301.
- (10) N. G. Orfanoudalis & A. M. K. P. Taylor, Part. Part. Syst. Charact. Vol. 9 (1992), pp. 223-230.
- (11) A. Mugunai & J. Wescombe, Appl. Opt., Vol. 28, No. 15, 1989, pp. 3061.
- (12) E. A. Hovenac, Appl. Opt., Vol. 30, No. 33, 1991, pp. 4739.
- (13) D. J. Holve, J. Energy, Vol. 4, No. 4, pp. 176.