研究報告

レーザー光散乱粒子カウンターのオンライン化に伴うソフトウェア

Software for More Accurate Data Treatment in an On-lined Laser Light Scattering Particle Counter

高野 頌*
Hiroshi Takano

奥田 聡*
Satoshi Okuda

1. 緒言

最近、測定データの精度を向上させ、さらにデータ処理の高速化を図るという目的から、これらの点ですぐれた機能をもつオンライン機器の使用の頻度が増大してきている。しかしながら、特にマイクロコンピュータの場合、ハードウェアにおける標準化が遅れていることやソフトウェアの機能が急速に拡大していることによって、コンピュータと機器とのオンライン化の手法は多種多様であり、一般化されていない¹⁾。したがって、オンライン機器を試作したり、あるいは使用する場合には、得られた測定結果や制御特性が研究目的に意図したものであるのかどうかを判断するために、測定結果のみならずデータの処理法や制御法そのものまでをも研究対象に含めて検討する必要がある^{2,3)}。

本報では、 $10\mu\text{s}$ 程度の比較的短時間におけるデータ収集と多数個のデータ処理とが必要であるためにマイクロコンピュータとオンライン化されたレーザー光散乱粒子カウンターの場合を取り上げ、そのオンライン化に伴うソフトウェアのうち特に粒子径の算定、雑音処理、粒度分布の表示における手法について検討した。さらに、これらのソフトウェアの手法が測定精度の向上や測定結果の有用性を判定する上で重要な因子となることを明らかにし、実験により確かめた。

2. 信号処理システムとソフトウェア

試作した計測システムの基本構成は前報⁴⁾と同様であり、Fig. 1 に示すように、散乱光の受光のための光電子

Fig. 1 データ処理システム

増倍管、散乱光波の波高分析器、そしてマイクロコンピュータにより成り立っている。散乱光信号は光電子増倍管で増幅されたのち、高速の電流-電圧変換器により $0.5\mu\text{A/V}$ の比率で電圧に変換され、 $10\mu\text{s}$ の処理時間で波高分析器に記録される。ここで、論理回路により $7.2\mu\text{s}$ 以下のパルス幅をもつ信号は雑音として判別され、除外される。このようにして波高分析器によって区分されたデータは、インターフェースを介してマイクロコンピュータ（米国 Radio Shack 社製 TRS-80、あるいは横河ヒューレットパッカード社製（以下 YHP と略記する）System 45B）に転送され、以下に示すような信号処理のためのソフトウェアを適用し粒度分布や粒子濃

昭和55年9月3日受付

* 同志社大学工学部化学工学科（〒602 京都市上京区今出川通烏丸東入ル）

TEL 075-251-3874

度などの測定結果として表示される。

本報において検定したソフトウェアは粒子径の算定法、雑音処理法、粒度分布の表示法に関するものであり、ポリスチレンラテックス標準粒子(Dow Chemical 社製)を用いて行なった実験結果によりその妥当性が検定された。ここで試作したプログラムのフローチャートを Fig.2 に示す。まず入力データとして粒子径応答の計算値、雑音レベル、粒子径の検定値が設定された。

粒子の散乱光強度と粒子径との関係を決める応答曲線は Lorenz-Debye-Mie の単一粒子散乱理論⁵⁾にもとづく電磁方程式を数値解析することにより求められる⁶⁾。しかしながら計算精度や演算時間の点で、マイクロコンピュータによる数値計算は可能ではない。したがって、ここでは測定対象とする粒子に対してあらかじめ大型計算機を用いて応答計算を行ない、その数値解析の結果をもとに散乱強度を従属変数として粒子径を求める線形多項式を定め、さらにこの多項式近似値を用いて散乱光強度の相対値に対応する理論粒子径を求めた。プログラムでは、データとして入力した多項式のいくつかの係数を用いて応答計算を行ない、さらに大型計算機による数値解析の結果と比較することによってこの信号処理システム内で計算される粒子径の計算精度が確かめられた。

つぎに、散乱光信号を処理する上で重要となる因子は雑音成分の除去である。Fig.3 に示すように、ここでは雑音除去法として、ソフトウェアによる平均化法とハードウェアによる時間区分法とを併用するという新しい手法を試みた。まず、

Fig. 2 ソフトプログラムにおけるデータ処理の流れ図

Fig. 3 雑音除去法の概略

Fig. 4 波高分析器内蔵された論理回路による時間区分法を用いた雑音除去

Fig. 3(a)に示す時間区分法によって、パルス幅の差により区分された電気信号がアナログ-デジタル変換器にデータとして入力する。この操作は、Fig. 4に示すように、波高分析器に内蔵された論理回路により電気的に高速で処理される。ここでは、散乱光信号に対して十分に短い時間間隔である7.2μsがこのパルス識別の時間幅として設定された。実際には、この時間区分法によりほとんどの雑音成分は除去できるが⁷⁾、Fig. 3(b)に示すように、論理回路を通過した散乱光信号がなおも測定系から発生する雑音を含んでいると考えられるので、さらに平均化法を併用することにより雑音成分のより一層の低減化を図った。これは、まずFig. 3(b)中に示す雑音レベル値をあらかじめ実測しておき、つぎに粒度分布を算出する際にソフトプログラムによりこの雑音レベル値を差し引いて信号出力の補正を行なうという手法である。

さらに、前述したグラフィックス機能をもつシステム(YHP System 45B)を用いて、粒度分布を一般的に数値として表現するだけでなく図形化された実験結果が得られるような手法を考えた。ここで、システムと波高分析器とはHP-IB方式の標準バスのパラレルI/Oインターフェース(YHP 98032A)により容易に結合できた。またグラフィックス機能として、このコンピューターの周辺機器として用意されている4色グラフィックスプロッター(YHP 9872B)が同様にシステムに結合された。これらの機器を連結したシステムが実験結果をグラフィックスで表示するために準備された。一般に、このようなグラフィックス処理のために用いられるソフトウェアは多種多様であると考えられるが、ここでは統計的な意味の明確な正規型および対数正規型分布のグラフィックス

表示法に関連したソフトウェアのうち、特に積算ひん度値から正規分布値への変換法という一般性のある問題について考察した。

3. 結果および考察

3.1 粒子径の算出

ポリスチレンラテックス標準粒子を試料として用いる場合について、粒子径の算出のための線形多項式による近似値と大型計算機による数値計算値との差異を比較し検討した。一般に線形多項式がつねに近似式として有用であるとはかぎらないが、ここでは重みつき最小二乗法を用いて散乱光強度と粒子径とをともに対数変換した変数の6項の多項式が、Fig. 5に示すように0.3~1.1μmの粒子径に対して6%以内の誤差で理論値と良く一致することがわかった。これは応答曲線からわかるように、散乱光強度と粒子径のそれぞれの対数値が増加関数であることによるものと考えられる。したがってこの結果から、大型計算機を用いて測定しようとする粒子の応答曲線から粒子径と散乱強度との関係をまず求め、その数値解析値を線形多項式として近似しておくことにより、光

Polynomial equation

$$\log D_p = a_0 + a_1 \log I + a_2 (\log I)^2 + \dots + a_5 (\log I)^5$$

$$\begin{aligned} \text{where, } a_0 &= 0.9433637168816983D + 02 \\ a_1 &= -0.2627714434827147D + 03 \\ a_2 &= 0.2807917349484023D + 03 \\ a_3 &= -0.1457204352242752D + 03 \\ a_4 &= 0.3690041639053911D + 02 \\ a_5 &= -0.3655299899193315D + 01 \end{aligned}$$

I : scattered intensity of light.

D_p : particle diameter.

Fig. 5 光散乱理論の計算値と多項式近似値との比較

Fig. 6 時間区分法に平均化法を併用する雑音除去法の効果

電子増倍管で検知し増幅された散乱光強度信号をソフトウェアによる近似計算を行なって粒子径に変換することができる。ただし、この場合、計算される散乱光強度は相対量であるから、粒子径が既知の試料を用いた実験によって散乱強度の絶対値の検定が必要である。ソフトウェアでは Fig. 2 に示すようにこの検定値は雑音レベル値などとともに入力される。

3.2 パルス信号中の雑音成分の除去

ハードウェアによるパルス信号の時間区分法と、ソフトウェアによる雑音レベルの平均化法とを併用することによって、信号中の雑音成分の低減化を試みた。一般に雑音成分の除去法として、電気フィルターにより雑音と信号との成分周波数の差を利用して両者を区別する手法が用いられることが多い。しかしながら、この方法では応答特性に問題があるため、ここで必要とされる散乱光信号の高速処理には適切ではないものと考えられる。

Fig. 6 に、0.50 μm のポリスチレンラテックス標準粒子を試料として、時間区分法に平均化法を併用した場合と併用しなかった場合とを比較した粒度分布の実験結果を示した。この結果によると、時間区分法だけでもかなりの雑音成分の除去が達成されているが、さらに平均化法を併用することにより特に粒子径の小さい領域で顕著にその効果が表われていることがわかった。ここで、平均化法を併用した場合、標準試料の平均径と幾何標準偏差は実験的にそれぞれ 0.50 μm、1.08 と求まった。これ

Fig. 7 対数正規分布のグラフィックス表示の一例

は電子顕微鏡法による実験結果である。幾何標準偏差 1.03 と比較的良く一致した。以上の結果より、時間区分法と平均化法とを併用して雑音成分を低減化することによって散乱光強度の信号をより精度よく、しかも高速で処理できることが確かめられた。

3.3 粒度分布と個数濃度の表示

グラフィックス機能を有する周辺機器を測定システムに持続することによって、ただ単に数値としてだけではなく図形化した有用な測定結果をも得られるようにそのソフトウェアを考えた。Fig. 7 に、このソフトウェアにより表現された測定結果の一例を示した。粒度分布として正規型あるいは対数正規型のいずれかが選択でき、いずれの場合にも最小二乗法により分布関数形が決定され、平均粒子径と標準偏差が表示される。

この表示法で問題となる点は積算ひん度で得られた入力データを正規分布関数に変換する手法にある。ここでは、変換法として確率理論にもとづいた近似式による手法を提案し、さらにこの手法の妥当性を検討した。

自由度 f の χ^2 分布に従う変数を χ^2 とすれば、Wilson-Hilferty の変換は

$$U = \sqrt{\frac{9f}{2}} \left\{ \left(\frac{\chi^2}{f} \right)^{\frac{1}{3}} - 1 + \frac{2}{9f} \right\} \quad \dots\dots(1)$$

と表わすことができる³⁾。ここで、 $f=2$ のとき、この変換された変数 U が平均 0、分散 1 の正規分布にかなり

Table 1 正規分布関数の逆変換における近似計算

Approximate equation

$100 > X \geq 50$: $Y_{app} = 3 * [(-\ln(1 - X/100))^{1/3} - 8/9]$
 $50 > X > 0$: $Y_{app} = -3 * [(-\ln(X/100))^{1/3} - 8/9]$

$X[\%]$	$Y_{app}[-]$	$Y_{exact}[-]$	Difference $[-]$
0.01	3.62182	3.71902	-0.09720
0.1	3.04681	3.09023	-0.04342
1.0	2.32451	2.32635	-0.00184
10.0	1.29483	1.28155	0.01328
20.0	0.84904	0.84162	0.00742
30.0	0.52482	0.52440	0.00042
40.0	0.24717	0.25335	-0.00617
49.0	0.01387	0.02507	-0.01120
49.9	-0.00912	0.00251	-0.01163
50.0	0.01168	0.00000	0.01168

X : cumulative percentage of under-size [%]

Y_{app} : approximate value of normal

probability $[-]$

Y_{exact} : exact value of normal probability $[-]$

正確に近似できることが分っている。そこで、指数分布の上側 α 点が $-\ln \alpha$ となることを用い、また正規分布の上側の点を近似値 Y_{app} とすれば、(1)式は

$$Y_{app} = 3 \left\{ (-\ln \alpha)^{1/3} - \frac{8}{9} \right\} \quad \dots\dots(2)$$

という形となる。**Table 1** に示すように、この近似式は実用的に十分な計算精度をもつことがわかった。

引用文献

- 1) 日本電子工業振興協会：マイクロコンピュータに関する調査報告書，54-A-153 (1979)
- 2) 井上外志雄：粉体工学会誌，17，[6]，313—319(1980)
- 3) 宮南啓：粉体工学会誌，17，[6]，319—324 (1980)
- 4) Takano, H., M. Kusano and S. Okuda : Proc. of 2nd International Microcomputer Applications Conference, pp 215—226 (1980)
- 5) Kerker, M. : "The Scattering of Light and Other

つぎに、粒度分布と同時に計測される粒子濃度は単位時間あたりに測定部を通過する散乱光パルス数とエアロゾルの同伴空気量とから求められる。すなわち単位体積あたりの粒子数として表示され、数秒程度の時間間隔における粒子濃度の変化量が測定できるよう考えられた。

4. 結 言

試作したレーザー光散乱粒子カウンターのオンライン化に伴って、信号処理のために必要ないくつかのソフトウェアを考えた。その結果、このソフトウェアによって全く自動的にデータが処理され、人為的な誤差を含まずに精度の良い測定結果が得られることが確かめられた。また、グラフィックス機能をもつ周辺機器を結合した計測システムを用いることによって測定結果は数値としてのみならず図形としても表示することができ、オンライン信号処理法の有用性がさらに拡大した。

<謝 辞>

本研究を行なうあたり、計測システムの試作に協力されました大学院生、草野正明氏（現、日本光学工業株式会社）に心より感謝いたします。また、トータルグラフィックスシステム（YHP System 45B）は昭和54年度文部省私立大学研究設備助成によるものであることを記し、謝意を表します。

Author's Abstract

Software for More Accurate Data Treatment in an On-lined Laser Light Scattering Particle Counter

by

Hiroshi TAKANO and Satoshi OKUDA

(Department of Chemical Engineering, Doshisha University, Kyoto 602)

In order to more accurate measure the size distribution and concentration of aerosol particles using an on-lined optical counter, some software techniques for data treatment are discussed. These

are mainly concerned with the methods for noise cancelling from the original signal of scattered light, determination of the particle size, and calculating the statistical parameters of the size distribution.

The useful results of these software techniques on analyzing aerosol particle are as follows : (1) By means of two methods where the noise is cancelled by distinguishing pulse width, or correcting pulse height, the real reliable signal of scattered light can be obtained. (2) The particle size is effectively decided by using a polynomial approximate equation in the size range of 0.35—1.10 μm in diameter for a polystyrene latex particle. (3) The distribution function of particle size can be determined by the least squares method and expressed as a graphic display.

Judging from those advantages of the software, it should be obviously noticed that this optical particle counter becomes useful for fast data treatment in combination with the micro-computer.

List of figures and table

Fig. 1 Diagram of data treatment in the system.

Fig. 2 Block diagram of data flow in the software program.

Fig. 3 Schematic diagram of noise cancelling methods.

Fig. 4 Block diagram of noise cancelling using the pulse width method in the hardware of a pulse height analyzer.

Fig. 5 Relationship between a polynomial equation

and the numerical result calculated from scattering theory.

Fig. 6 Effect of noise cancelling by means of the pulse width combined with the averaging method.

Fig. 7 Example of log-normal distribution in a graphic display.

Table 1 Fitness of an approximate equation for the normal probability function.