光の回折を利用した粒度測定とマイクロ・コンピュータ によるデータ処理*

Measurements of Particle Size Distribution by means of Diffraction and Data Processing
Using Micro-computer

山 本 純 雄**
Sumio YAMAMOTO

鎌 田 治**
Osamu KAMADA

佐 藤 啓 仁**
Keijin SATO

1. ま え が き

粒度は、水質汚濁・大気汚染などの環境計測や生産プロセスの計測制御の分野において基本的な測定量の一つとなっている。

粒度の測定には多くの方法がある。なかでも光を用いた測定法はその瞬時性や自動計測のしやすさに長所をもっている。光の散乱を用いる方法は、主として比較的小粒径の粒度測定に適用されてきたが、散乱光強度は粒子の物性特に屈折率に大きく依存するので¹⁾、慎重な配慮が必要である。

他方、光の回折を利用した粒度測定法も提案され実用化が図られてきた²⁾。光回折法は粒子物性ではなく形状に鋭敏に反応する特長をもっている。著者らは、液体中の球形および不定形試料について光回折法による粒度測定をおこなってきた^{3,4)}。本報告では、それらの結果と合わせて、空間フィルタおよび減光フィルタを用いて測定範囲を拡張した結果と、プロセスの状態遷移を即時に把握できることを目的としてマイクロコンピュータを用いて粒度分布・各種平均径・散布度等を自動的に表示した結果について報告する。

2. 測定装置および方法

2.1 装置および方法

測定装置の概略を Fig.1 に示す。1の光源として He-Ne レーザー（出力1 mW）を使用した。コリメータ2によって光束径1.8 mmの平行光束にしている。なお、光強度を安定させるため安定化電源を用いてレーザ

ーを点灯した。これにより測定中レーザー光強度は十分安定であることを確認している。蒸留水3を満たした4の容器内をスター5で攪拌する。6が測定試料である。試料は凝集した部分がないよう注意し、かつ容器内で局部的に偏らないようスターの回転数を調整した。回転数を上げすぎると気泡が入り込む恐れがあったので、あらかじめ蒸留水のみで測定をおこない、攪拌による気泡の混入が無視できることを確認した。測定セル7はスライドガラスを貼り合わせて作った。寸法は縦45 mm、横10 mm、厚さ0.9 mmである。均一攪拌された試料液をアスピレータ8で吸引する。セルの粒径測定域において複数個の粒子が同時に通過しないようシンクロスコープ20でモニターしながら絞リ9で流量を調節した。流量はほぼ200~220 cm³/minとした。11が空間フィルタである。本フィルタによってノイズとなる中心部光量を除去するとともに扇形部によって光信号を f_2 と f_2' に分ける。空間フィルタの形状を工夫することにより d^2 、 d^3 、 d^4 の光学的演算も可能であるが⁵⁾、それらの演算は本来それほど高速である必要もないので、本報告ではマイクロコンピュータによって演算をおこなわせた。空間フィルタを通過した回折光は、光信号 f_2 、 f_2' に分けられ、 f_2 は平面鏡12によって反射され凹面鏡13で集光され Si 光電池14に入る。 f_2' は直接凹面鏡15によって集光され、減光フィルタ16を通して Si 光電池17に入る。なお光信号の検出はフラウンホーファ領域でおこなっている。入射光量に比例した電流信号は増巾器18、19で増巾しかつ漏光を補正している。増巾された電気信号 F_2 、 F_2' は信号処理部に入る。21はマルチプレクサ（8チャンネル、切替時間 $t_s=0.5 \mu s$ ）であり、現在2チャンネル使用している。交互に読み取られた信号 F_2 、 F_2' は A/D コンバータ22（8ビット、変換時間 $t_c=2.8 \mu s$ ）を通してマイクロコンピュータ23（CPU8080

昭和56年1月16日受付

*第22回自動制御講演会にて発表(1979.4.東京)、第16回夏季シンポジウム(粉体工学会)にて発表(1980.4.静岡)

**宇都宮大学工学部精密工学科
〒321 宇都宮市石井町2753
TEL 0286-61-3401

A, 9 KRAM) に読み込まれる。マイクロコンピュータでデータ処理されたのち、D/A コンバータ 24 (8 ビット, $t_c=0.3 \mu s$) を通して X-Y レコーダ 25 へ出力する。また必要に応じてプリンタ 26 に印字させた。

2.2 較正および装置の調整

空間フィルタの扇形部を通過したフラウンホーフェ領域における回折光強度は、エアリーの式より粒子直径 d の 2 乗に比例することが導かれる⁵⁾。増巾器出力電圧を F_{2p} とすると、

$$F_{2p} = k \cdot d^2 \quad \dots\dots(1)$$

本測定装置においても式(1)が成り立つことを確認するため

に、二種の球形粒子 (ガラスビーズ、アンバーライト) を用いた。あらかじめ万能投影機で粒子直径を測っておく。次にそれらの粒子を測定セルの外壁に付着させる。その際測定壁が汚れないよう注意が必要である。そのときの増巾器出力電圧を精密電圧計で読みとった。結果を両対数表示したのが Fig. 2 である。較正曲線 F_{2p} は勾配 2 をもち、30~100 μm の間ではほぼ直線になっており、 d^2 に比例していることがわかる。しかし 100 μm 以上では直線よりはずれてくる。これは過大な光量のため検出器が飽和するためであり、 f_2' の検出器の前に減光フィルタをつけて測定したところ、 F_{2p}' の較正曲線に示されるように 200 μm 以上まではほぼ直線性をたもつことがわかった。

本測定系を常時使用する際、その経時変化による誤差を避けるためゲインを手軽に再調整できることが必要である。本測定法は光回折を利用しているので、ピンホールでも同様の結果が期待できる。そこで 100 μm の円形孔を測定セルの直後において調整をおこなうこととした。ピンホールを用いる調整法はその取り扱いの容易さおよび再現性の点で優れており、以後測定系の調整はピンホールによっている。しかしホールをセルの直後に置くためにセル内を流れる粒子の回折光強度を厳密には較正せず補正の必要がある。ここでは標準粉体は使わず、上記試料を流して粒度を測定し、その結果を顕微鏡法と比較した。その結果、ピンホールでゲイン調整した場合、分布曲線に 5 μm 程度ずれを生じたので、あらかじめそのずれを含めてゲインを調整し、測定をおこなっている。

1: Laser, 2: Collimator, 3: Water, 4: Vessel, 5: Stirrer, 6: Sample, 7: Cell, 8: Aspirator, 9: Throttle, 10: Diffraction pattern, 11: Spatial filter, 12: Mirror, 13, 15: Concave mirror, 14, 17: Photovoltaic cell, 16: Filter, 18, 19: Amplifier, 20: Syncroscope, 21: Multiplexer, 22: A/D converter, 23: Microcomputer, 24: D/A converter, 25: X-Y recorder, 26: printer

Fig.1 Schematic of instrumental apparatus

Fig.2 Calibration curve

3. データ処理

データ処理部のフローチャートを Fig. 3 に示す。A/D コンバータを通った信号電圧が、下方閾値 γ_L より大になると読み込みを開始する。読み込み値が上方閾値 γ_H を越えた場合、その信号は過大であるので新たに信号を待つ。読み込むデータが γ_H 以下であることを照合

Fig. 3 Data Processing Flowchart

する一方、極大値を過ぎてからの読み込みを防ぐためデータ列に極大値があることを確認し、極大値 F_{2p} を求める。 F_2 と F_2' の同時読み込みをおこなう場合はマルチプレクサで F_2 と F_2' を交互に読みとる。 F_2 および F_2' のサンプリング時間は $140 \mu s$ とし、サンプリング個数

Fig. 4 Regeneration of F_2 & F_2'

はそれぞれ 100 点に設定した。光束の端を通る粒子は通過時間の違いより区別できると思われるが、ここではそのプログラムを実行していない。

交互に読みとった信号 F_2 , F_2' を再編集し D/A コンバータを通してレコーダ上に描かせた例を Fig. 4 に示す。横軸の t はレコーダ記録時間である。サンプリング速度、個数、メモリーへの読み込みがほぼ適切であるといえる。

極大値を求めたのち、あらかじめ入れておいた校正曲線にしたがって粒子直径に変換して所定の番地に貯蔵する。次に新しい信号を読み込むためプログラムの始めに戻る。こうして貯蔵数があらかじめ設定した粒子数（本測定では1500個）に達したとき、測定を終了する。最後に粒子直径に変換されたデータにもとづき、粒度分布を描かせるプログラムで X-Y レコーダに表示する。

4. 球形粒子の測定結果

球形の場合、回折模様は同心円状になり光信号 f_2 と f_2' は同一の強度になってくる。ここでは f_2 によって粒度測定をおこなった。三種のホーニング用ガラスビーズ (GB 733, GB 734, GB 735) を用いた。攪拌容器、測定セルを十分に洗浄したのち、測定試料をおおよそ 50 mg/l の濃度で蒸留水に混入し完全攪拌する。流量は前述の通り $200 \sim 220 \text{ cm}^3/\text{min}$ とした。各試料について測定個数を1500個としたときの個数分布を X-Y レコー

Fig. 5 Particle size distribution curve (glass beads)

Fig.6 Comparison with microscopic method (glass beads)

Fig.7 Particle size distribution curve (white alundum)

ダに描かせた結果を Fig. 5 に示す。個数巾は $10 \mu\text{m}$ としている。

次に顕微鏡法との比較をおこなった。実体顕微鏡を用いて試料を暗視野で撮影し、印画紙に引き伸ばして最終倍率を 100 倍とした。次にスケールを用いて目視により

Fig.8 Comparison with microscopic method (white alundum)

粒径を測った。測定個数は GB 733 が 910 個、GB 734 が 1184 個である。たて軸に $\Delta n/n/\Delta d$ をとり、横軸に粒径 d をとって両者の方法と比較したのが Fig. 6 である。

5. 不定形粒子の測定結果

測定粒子が不定形の場合、回折模様は粒子形状に対応して複雑なパターンとなってあらわれる。したがって、球形粒子と同様の方法をそのまま不定形粒子にも適用するのは問題がある。しかし数多くの粒子を測定することにより平均化された形が粒度分布としてあらわれてくるのではないかと期待して測定してみた。回折パターンの偏りの程度を調べるため、 f_2 と f_2' (減光フィルタをはずして測定) それぞれで測った粒度分布を比較してみた。

測定個数を 1500 個にとったが、両者の分布を比べた場合不完形による回折の偏りの影響はあまりあらわれなかった。以下の測定は f_2 にもとづいたものである。

不定形粒子の一例として、ホワイトアランダム (WA 240, WA 400) を用いた。球形粒子の場合と同様の条件を設定して測定した。レコーダに表示させた結果を Fig. 7 に示す。

次に顕微鏡法との比較をしてみた。顕微鏡による粒度測定法は球形と同じであり、円形定規を用いて粒子の円相当径を測った。測定個数は、WA 400 が 728 個、WA 240 が 2033 個である。光回折法と顕微鏡法との比較を Fig. 8 に示す。光回折法の測定個数は各 1500 個である。もちろん個々の粒子と回折模様との関係は単純でない。しかし測定個数を多くすると、粒度分布は円相当径による分布と比較的良好な相関をもつことがわかった。したがって不定形の場合でも粒度分布の時間的変化をオンラインで測る場合に十分使用できると考えられる。

6. 測定範囲の拡張

いままでは、主として光信号 f_2 によって測定してきた。しかし f_2 は d^2 に比例しているため測定範囲を大きくとることが困難であった。そこで f_2 と f_2' を同時測定することとし、 f_2' を測る光電池の直前に減光フィルタを入れて入射光の強さを減ずることにより粒子径の大きい領域を測定した。100 μm 以下の粒径は f_2 で測り、100 μm 以上の粒径は f_2' で測って、それぞれの結果をマイク

Fig.9 Extension of measuring range (amberlite)

ロコンピュータを用いて接続し、両者を合わせた形で表示することを試みた。

試料として公称粒径範囲 74~149 μm のアンバーライト (CG 120) を用い、測定した結果を Fig.9 に示す。本方法によって、粒子直径の測定範囲を拡張できることがわかった。空間フィルタ、マルチプレクサのチャンネル数およびマイクロコンピュータへの転送速度に余裕があ

るので測定範囲をさらに小さい粒径の方へ拡張することも可能である。

7. ま と め

光の回折を利用して、球形および不定形粒子の粒度を測定した。光学系はレンズを使用しないようにし、できるだけ単純な構成にした。顕微鏡法と比較した結果、球形粒子だけでなく不定形粒子の場合も良い一致をみた。また空間フィルタおよび減光フィルタを用いて二種の信号を同時測定することにより測定範囲を拡張できることが確かめられた。

本報告では、複雑な形状を有する不定形粒子を円相当径でとらえたが、今後粒子形状を考慮した検討が必要であると考えている。

終りにあたり、常に適切な助言をいただいている、東北大学工学部箱守京次郎教授に感謝します。さらに本研究の一部には宇都宮大学工学部植木明男氏が参加したことを記して感謝の意を表します。

参 考 文 献

- 1) 金川：光吸収性粒子に対する光散乱エアロゾル測定，化学工学論文集，4-2，325/330 (1976)
- 2) Weiss and Frock：Rapid Analysis of Particle Size Distributions by Laser Light Scattering, *Powder Technology*, 14, 287/203 (1976)
- 3) 山本，鎌田，佐藤，植木：光の回折を利用した粒度測定とそのデータ処理について，第22回自動制御連合講演会，389 /390(1979)
- 4) 山本，鎌田，佐藤：マイクロコンピュータによる計測——粒度測定を例として——，第16回夏期シンポジウム（粉体工学会），17/21 (1980)
- 5) Wertheimer and Wilcock：Light scattering measurements of particle distributions, *Applied Optics*, 15-6, 1616/1620 (1976)

Authors' Abstract

The optical method is of advantage in measuring particle size instantaneously and automatically, and the diffraction method is more sensitive to the particle configuration than the scattering method.

A measuring apparatus using the diffraction method is constructed which has a simple structure to improve its reliability and has a circular aperture behind the sample cell to allow easy adjustment. It is easy to take in data at a high sampling rate because of the use of an electronic sampling method without mechanically moving parts, and the data acquisition is also carried out at high speed. But it is not necessary to display the size distribution, mean diameter and variance as fast as in sampling. The data are mostly processed with a microcomputer.

Using this apparatus, the measurement of particle size is carried out for spherical and aspherical samples. Furthermore, the measuring range of particle size is extended reasonably to some extent by means of simultaneously processing two independent signals of each particle which are proportional to the square of diameter.

List of Figures

Fig.1 Schematic of instrumental apparatus

Fig.2 Calibration curve

Fig.3 Data processing flowchart

Fig.4 Regeneration of F_2 and F_2'

Fig.5 Particle size distribution curve (glass beads)

Fig.6 Comparison with microscopic method (glass

beads)

Fig.7 particle size distribution curve (white alundum)

Fig.8 Comparison with microscopic method (white alundum)

Fig.9 Extension of measuring range (amberlite)

A. I. Ch. E. Spring 1982

全国大会講演募集

日時 1982年6月7日～10日

場所 Anaheim, California,

セッション“Hot Fuel Gas Clean up System
(高温燃料ガス清浄システム)”

150字以下の英文要旨を下記の各々に郵送すること

Chairman

Professor R. Mahalingam

Department of Chemical Engineering

Washington State University

Pullman, WA 99164 (509) 335-1304 or 335-4332

Co-Chairman

Dr. D.F.Ciliberti

Westinghouse R & D Center

1310 Beulah Rd.

Pittsburgh, PA 15235 (412) 256-3112

期 限

要旨受付 1981年11月1日

予備受付通知 1981年11月15日

最終原稿 1982年1月15日

Fine Particle Society の1982年春期 例会講演募集について

日時 1982年4月12日～14日

場所 Chicago, Illinois,

タイトル

Particle Sizing, Morphology and Physical Chemical Properties, Fluid-Particle and Particle-Particle Separation, Mixing, Solids Handling and Storage, Particle Formation and Production, Agglomeration, Instrumentation, Health Hazards and any other aspects of Fine Particulate and Powder Technology.

期限 1982年1月15日

宛先

Assoc, Dean

Teoman Ariman

College of Eng, and Physical Sciences

Univ. of Tulsa

Tulsa, Oklahoma 74104 U.S.A.

200語の英文要旨を上記に郵送すること