

半導体レーザーを用いた微粒子の実時間粒径分布カウンティング法

吉長 重樹*・岩井 善郎**・西野 栄治**・西沢 英樹*・小林 喬郎**

*福井機械株式会社 〒919-06 福井県坂井郡金津町自由ヶ丘 1-8-28

**福井大学工学部 〒910 福井市文京 3-9-1

Real-Time Counting Method of Small Particle Size Distribution Using a Laser Diode

Shigeki YOSHINAGA,* Yoshiro IWAI,** Eiji NISHINO,** Hideki NISHIZAWA* and Takao KOBAYASHI**

*Fukui Machinery Co., Ltd., 1-8-28, Jiyugaoka, Kanazu, Fukui 919-06

**Faculty of Engineering, Fukui University, 3-9-1, Bunkyo, Fukui 910

We have developed a real-time optical particle counter to measure the size distribution and number density of small particles contained in liquid. Principle of the measurement is based on the extinction of the transmitted light, and the particle size distribution was calculated using a transfer matrix method. The particle counter consists of a particle sensor using a laser diode, selfoc lenses, a photo diode and a data acquisition system. Various properties of the particle counter were examined by measuring various spherical glassbeads (21 μm and 40 μm in mean diameter) in water. It was shown that the size distribution of small particles larger than approximately 5 μm could be measured precisely with this counter.

1. 緒 言

微粒子の大きさとその密度分布を正確かつ小型で簡便に測定するセンサー技術の開発が広い分野において要求されている。例えば、河川、海洋の水質汚染調査における懸濁物質のサイズの計測、半導体産業における製造工場のクリーンルーム内のほこり、あるいは電子基板やICなどの洗浄液の汚染度の計測とその監視などは環境保全や品質管理の点から必要不可欠な技術である。また、一般機械システムにおいても油圧作動油や潤滑油に微粒子が混入すると、油圧機器の作動不良や摺動部の摩擦・摩耗を加速することから¹⁾、油中の粒子の大きさやその濃度を実時間で計測することが必要とされている²⁻⁴⁾。

現在、微粒子の粒径計測の簡便な方法として、サンプルリング液中から収集した粒子を顕微鏡により観察し粒径を目視あるいは画像処理装置を用いて読みとる方法があ

るが^{5,6)}、正確な分布を計測するためには長いデータ処理時間と労力を要し非常に煩雑である。

白色光を利用した計測法として、粒子群を映像として捉える写真撮影法や指向性に優れたレーザー光を用いて光の散乱や減衰（消散）を応用した計測法が種々考案されており、非接触で実時間計測できる方法として既に一部実用化されている^{7,8)}。しかし、レーザー光の散乱を用いたネフェロメーターなどの粒径分布計測法は、1 μm 以下の粒子も測定できる高感度な反面⁹⁾、計測装置も大型のものが多いため、機械システムに取り付けてのその場 (*in situ*) 計測には用いられていない。

本研究では、このような観点から、リアルタイムで粒子径分布の *in situ* 計測を可能とするため、半導体レーザー (LD) を用い、光の消散効果を利用し、粒径が 5~100 μm の領域で高速流量条件でも測定可能な小型のパーティクルカウンターの研究開発を行った。光の消散を利用する粒径センサーは一部実用化されているが、詳細な報告は見当たらない¹⁰⁾。本報では、開発した粒径セ

E-mail: mg@mech.fukui-u.ac.jp

センサーの原理や構造，センサーからの信号を高速で処理し，粒径分布を求める数値解析法とその特性について報告する。

2. 測定原理

2.1 散乱理論に基づく粒子計測法

一般に球形や回転楕円体などの単純な形状の粒子の散乱係数や消散係数などは，Mieの散乱理論により解析が可能である^{11,12)}。Fig. 1に波長 $\lambda=810\text{ nm}$ のLD光における球形の粒子（屈折率 $n=1.337$ の水滴）の直径に対する光の消散（extinction）断面積 σ_{ex} の計算結果を示す。この結果より，粒径 d が $\pi d/\lambda \approx 1$ の，いわゆるMie散乱領域では d に対する σ_{ex} の変動は大きい，これより大きい $\pi d/\lambda \gg 1$ の幾何学的散乱域では，

$$\sigma_{\text{ex}} = \pi d^2/2 \quad (1)$$

に漸近している。すなわち，入射光は粒子の断面積の2倍の値だけ減衰を受ける。また，この σ_{ex} の値は屈折率 n や光の波長 λ が変わっても不変であることが特徴である。本計測法はこの特性を利用するものである。

Fig. 2に測定領域の断面図を示す。横方向 a ，縦方向 b の大きさの長方形の断面積 A の領域に均一な強度分布のレーザー光を紙面に垂直方向に通しておく。この中にレーザー光と直交して縦方向に粒径 d の微粒子を速

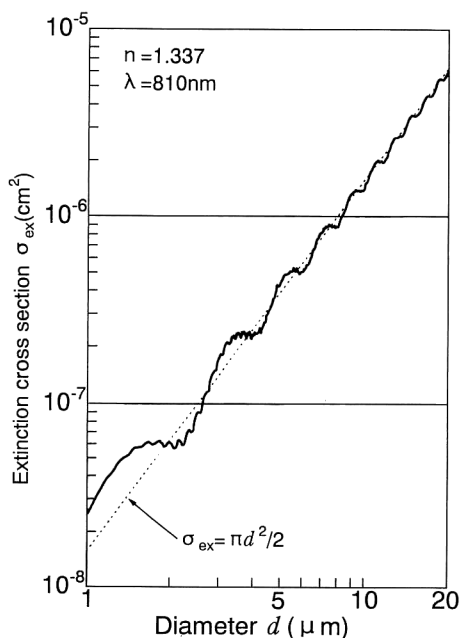


Fig. 1. Variation of the extinction cross section of particles (water: $n=1.337$) as a function of diameter.

度 v で通すと，断面を通過する光量は微粒子により消散を受けて，透過光を光検出器で検出するとパルスが発生する。一般に，この透過光電力の減衰量（相対値）は，粒子による前方向散乱光成分を入れない検出部の構成の場合には，前述の幾何学的散乱域の粒径の粒子に対して，

$$I_r = k\sigma_{\text{ex}}/A = k\pi d^2/2A \quad (2)$$

となる。ここで， k は補正係数である。

一方，散乱粒子の形状を光学系で結像させるなどして，粒子からの強い前方散乱光成分も入れる検出部の構成では，透過光電力の減衰量は，

$$I_r = k\pi d^2/4A \quad (3)$$

となり，微粒子の幾何学的断面積（陰影）に比例するものと考えられる。一般に前者の前方散乱光を入れない検出部の構成は小型のセンサーでは実現が難しい。そこで本研究では，後者の結像方式を用いた。すなわち，透過光量の検出器パルス出力の尖頭値から式(3)により粒径が求められる。

また，透過光パルスの時間幅 Δt を測定すると，

$$v = b/\Delta t \quad (4)$$

の関係より，粒子の速度も求められる。これらの原理を用いて測定条件に適した粒径センサーを構成した。

2.2 粒径分布の導出法

実際の微粒子計測では，大きさに分布をもつ粒子群が測定領域を通過するので，信号処理回路によりパルス高さごとの度数が計数され，結果はパルス高さから式(3)により換算される粒径と粒子密度の関係（粒径分布）で示される。パーティクルカウンターは，入力される粒径分布関数（入力関数） G と出力としての粒径分布関数（出力関数） F ，およびカウンターの応答関数 H からなる系で， F は G と異なるので， F から G を求める方

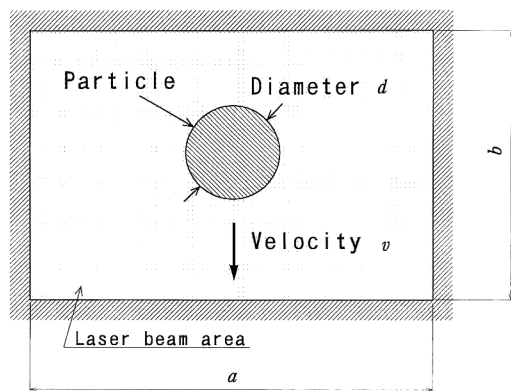


Fig. 2. Cross-section of the sensing area.

法を検討する。

一般に、 F は G と H のたたみ込み積分により、また F と H から逆たたみ込み積分により G を求めることができる¹³⁾。しかし、本カウンタの場合、粒径により H が異なるため、逆たたみ込み積分により G が求められない。そこで、以下のような変換行列を用いて G を求める方法を検討した。

計測可能な最大粒径を d_{\max} とし、これを分解幅 $\Delta d (= d_{\max}/n)$ とする n 個の粒径領域 (またはチャンネル) に分解し、その i 番目の粒径を d_i とする。次に、入力関数 G は粒径 d_i の度数 g_i を要素とする n 次のベクトルとし、出力関数 F は粒径 d_i の度数 f_i を要素とする n 次のベクトルとする。さらに応答関数 H はパルス波高確率 h_{ij} (付録参照) を要素とする n 次の正方行列と考えると、系の入力と出力の関係は、 $F=H \cdot G$ で示され、それぞれを成分で表すと、

$$\sum_{j=1}^n h_{ij} g_j = f_i \quad (i=1 \sim n) \quad (5)$$

の n 組の連立1次方程式で与えられる。式(5)は n 個の成分 g_i について、一般的な数値解析法により解くことができる。

3. 粒径センサーの構成と校正実験

LDを利用した小型粒径センサーの構造を Fig. 3 に示す。LDから発生したレーザー光を測定セル内に導くために0.25 P (ピッチ)の直径2 mmのセルフオックレンズを用い、受光側には0.5 Pのセルフオックレンズを配置した。0.25 Pのレンズは通常の凸レンズと同様の特性をもっていて、LD発光面をレンズ端面に接近させると焦点を遠方に結ばせることができるので、測定領域内ではほぼ平行光とすることが可能になる。測定セル内でのレンズ間の距離すなわち測定領域の厚さは1 mmとした。

一方、0.5 Pのセルフオックレンズは、測定領域での粒子の光学像の倒立実像を射出端面に結像させる特性をもっている。一般に、レーザー光の粒子による減衰を測定するためには、受光側レンズの直前に対象となる粒子の大きさに合わせてスリットを配置する必要がある。しかし、スリットに厚みがあるため、この部分に粒子が堆積して計測が困難となる。そこで、受光側レンズで実像を結ばせ射出端面に微小な矩形の測定領域制限用スリットを組合せることにより、この困難を解決した。スリットを通過したレーザー光はフォトダイオード (PD) で検出される。

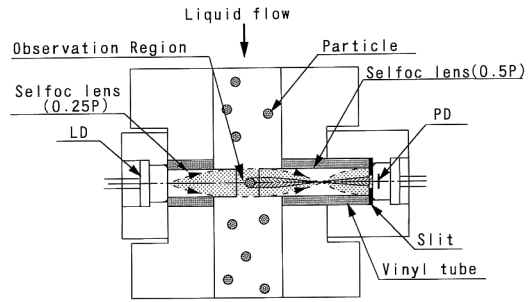


Fig. 3. Schematic of the particle sensor.

Table 1. Specifications of the particle sensor components.

Component	Specification
Laser diode (LD)	$P_0=40$ mW (Max), $\lambda=810$ nm
Selfoc lens (1)	Diameter: 2.0 mm Length: 6.42 mm (0.25 P)
Selfoc lens (2)	Diameter: 2.0 mm Length: 12.8 mm (0.5 P)
Slit	Metal plate Rectangular $\begin{cases} 50 \times 50 \mu\text{m} \\ 100 \times 100 \mu\text{m} \end{cases}$ Thickness: 0.1 mm
Photo diode (Si-PD)	Size: $2.4 \times 2.8 \text{ mm}^2$

センサーに用いた素子の特性を Table 1 に示す。センサー部のサイズは約 $3 \text{ cm} \times 3 \text{ cm} \times 10 \text{ cm}$ と小型である。矩形のスリットは、厚さ0.1 mmの金属製の薄板に化学エッチング法により作製した。また、スリットのサイズは測定対象の粒径により決定され、式(3)から明らかのようにスリット面積 A により $I_r=1$ となる最大測定粒径が設定される。

2つのセルフオックレンズ間の測定領域内を微粒子が通過すると、式(3)により微粒子の面積に比例してレーザー光が減衰し、PDの出力電圧は小さくなる。Fig. 4に出力パルスの形状を示す。Fig. 4(a)はPD出力電圧パルスである。これをFig. 4(b)のように反転させ、高域通過フィルターを通してパルス成分を取り出し、閾値電圧 (V_{th}) 以上のパルス信号を計測する。測定できる最小粒径は V_{th} とスリットの面積によって決まる。ここの最大電圧値は10 V、 V_{th} は0.15 Vであった。

Fig. 5は実験装置全体の構成図を示す。パーティクルカウンターは粒径センサーヘッドとセンサーからの信号のアンプ、A/D変換器、パソコン (ディスプレイ) などによる高速処理部から構成されている。また、パーティクルカウンターの粒径計測の精度を検証するために、

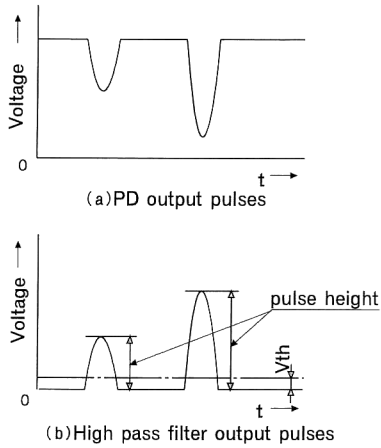


Fig. 4. Signal pulse shapes.

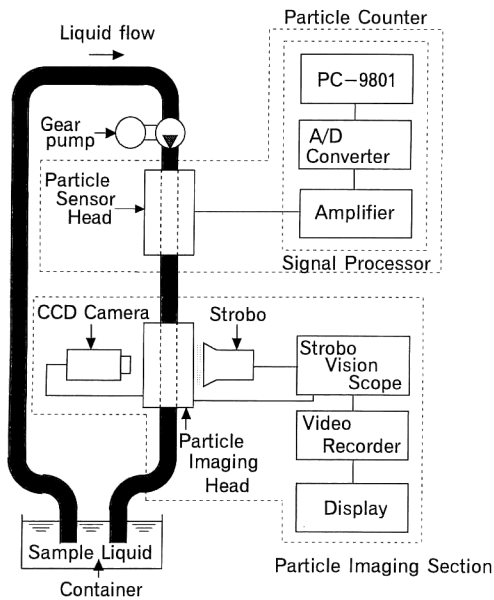


Fig. 5. Arrangement of the test apparatus.

ストロボスコープと CCD カメラによる撮影装置 (榊原研究所製ストロボビジョンスコープ) を用いて、粒子の形状を同時に観察録画した。粒子形状観察部の構造を Fig. 6 に示す。実験は、水溶液を容器に入れ一定流量をポンプによりセンサーに流し、再びサンプル容器に戻すボトル・サンプリング方式により行った。水溶液の循環には樹脂製ギヤポンプを用いた。これらの装置の配管は、管内に微粒子が堆積するのをできるだけ防ぐため垂直に配置された。

実験に用いた粒子サンプルは、チタン・バリウム系

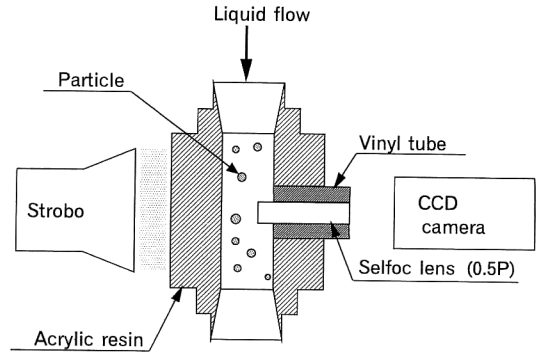


Fig. 6. Schematic of the particle imaging head.

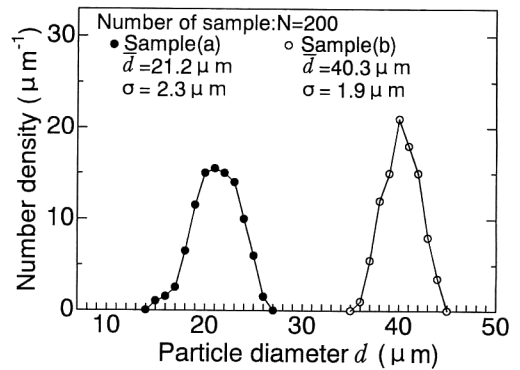
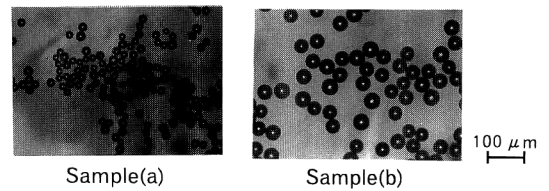


Fig. 7. Optical micrographs (upper) and the size distributions (lower) of glassbeads using in the experiment.

のガラスビーズで、比重は 4.2 であった。実験は、平均粒子径 21 μm 、30 μm と 40 μm の 3 種類のガラスビーズをイオン交換水に混入し、700~9500 個/cc の密度範囲で行った。粒径 21 μm および 40 μm のガラスビーズの光学顕微鏡写真と、それらから測定した粒径分布を Fig. 7 に示す。

4. 実験結果と考察

4.1 粒径分布計測

まず、50 μm \times 50 μm のスリットを用いた粒径センサーに対して、粒径 21 μm のガラスビーズを約 9500 個/

cc あるいは $40\ \mu\text{m}$ のガラスビーズを約 1400 個/cc 混入させた水溶液について計測した。測定時間は任意に設定できるが、ここでは 30 秒間とした。計測結果を Fig. 8 に示す。粒径 $21\ \mu\text{m}$ 、 $40\ \mu\text{m}$ と最も頻値は Fig. 7 の分布に比べ、小さい粒径であらわれている。また粒径 $40\ \mu\text{m}$ では、小さい粒径にも分布が見られる。

次に、大きさの異なるガラスビーズについて計測した結果を比較した。得られた分布から最頻値の粒径を求め、そのパルス波高（最大出力電圧に対する比）と粒子サンプルの粒径の関係を示すと Fig. 9 のようになる。図には式(3)による理論値も併せて示す。パーティクルカウンターによる実測値は理論値よりもわずかに小さく、その差は 10% 程度である。これは、ガラスビーズが光を透過するので、粒子が実際よりも小さく判断されているためと考えられる。したがって、式(3)の補正係数 k は、粒子サンプルが球形のガラスビーズに対して

$k=0.9$ とすればよいことがわかる。ただし、材質の異なる粒子については、計測によって k を求める必要がある。

さらに、粒径センサーの計測粒子数と粒径分布の測定精度を確かめるために、画像計測システムによる結果と比較した。粒径センサーの出口にアクリル製の透明な観察領域を設置し、そこを通過する粒子を CCD カメラで撮影し、画像をビデオに録画した。このビデオ映像を駒送りして、TV モニター上に設定した粒径センサーのスリットの大きさに相当する観察面積を一定時間内に通過する粒子の大きさ（スリットをかすめた粒子も含む）と個数を計測した。ビデオ映像は 37800 枚であり、粒径センサーでは 30 秒間の計測を 42 回行った。これらの結果から 30 秒間に通過する個数を求めた。Table 2 に両者の結果を示す。なお、粒径センサーによる結果は補正係数 k で補正した値である。ビデオ映像では、 $d < 15\ \mu\text{m}$ の小さい粒子をすべて計測することが困難であったため粒径センサーによる計測結果に比べ個数は少ないが、 d

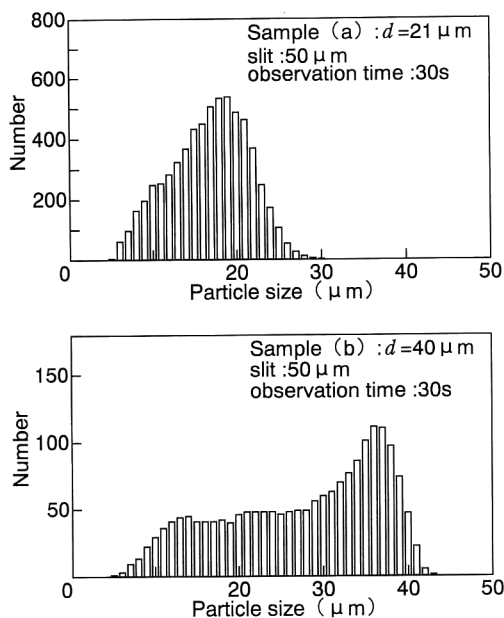


Fig. 8. Particle size distributions with the $50\ \mu\text{m}$ slit.

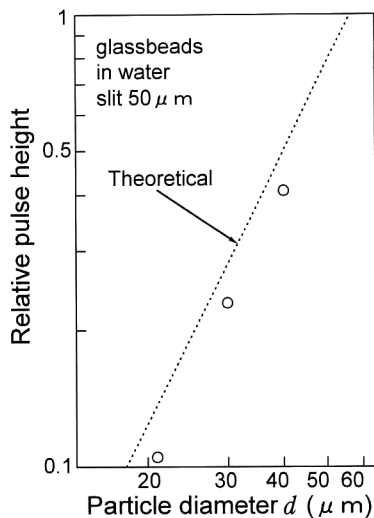


Fig. 9. Relative pulse height as a function of particle diameter.

Table 2. Comparison between the measurements by means of particle counter and video image.

	The number of particle					$15 \leq d$	Total number	Total number
	$d < 15$	$15 \leq d < 25$	$25 \leq d < 35$	$35 \leq d < 45$	$45 \leq d$			
Sample (a) : $d = 21\ \mu\text{m}$								
Counter	404	392	28	14	18	452	856	
Image	126	360	36	24	30	450	576	
Sample (b) : $d = 40\ \mu\text{m}$								
Counter	518	437	419	231	29	1116	1634	
Image	108	426	384	168	42	1020	1128	

$\geq 15 \mu\text{m}$ の粒径範囲に分布する個数とその総個数は両計測法で類似した値を示す。なお、用いた水溶液は、粒径 $21 \mu\text{m}$ または $40 \mu\text{m}$ のガラスビーズをそれぞれ約 1200 個/cc 、 700 個/cc 混入させた液の 2 種類であった。また、粒径センサーのスリットは $100 \mu\text{m}$ であった。Table 2 の結果から、試作したパーティクルカウンターは液中の微粒子の大きさとその個数を精度よく測定していることが明らかになった。ただし、この場合、観測体積 ($1 \times 10^{-5} \text{ cm}^3$) に 2 個以上の微粒子が同時に存在する濃度は $1 \times 10^5 \text{ 個/cc}$ で、この程度の粒子濃度まで計測可能と考えられる。

4.2 粒径分布の導出

前節では、計測結果を最頻値の粒径と各粒径の個数から検討したが、Fig. 8 の粒径分布は粒子サンプルの粒径分布 (Fig. 7) に比べて小さい粒径の個数がかかり多い。これは、粒子が測定領域の両端付近をかすめて通過する場合に、小さい粒径の粒子として計測されるためである。そこで、計測で得られた粒径分布から、2.2 で述べた変換行列を用いて粒子サンプルの粒径分布を求めた。

分解幅 Δd を $1 \mu\text{m}$ 、分解数 n を 50 とし、式 (5) の h_{ij} にパルス波高確率 (付録参照) を、 f_i に Fig. 8 の各粒径の粒子数を代入して、連立 1 次方程式を g_j につい

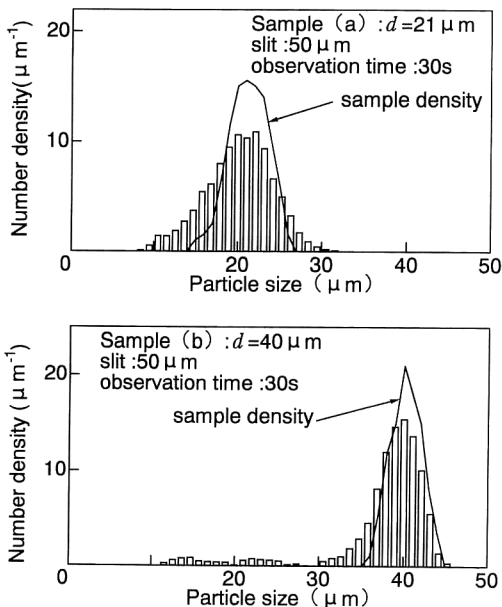


Fig. 10. Particle size distributions after correcting the edge effect. Solid curve corresponds to the size distributions of samples.

て Gauss-Seidel 法¹⁴⁾により解いた。光透過の補正係数を $k=0.9$ として計算した結果を粒子の大きさと個数の相対頻度の関係で示すと Fig. 10 のようになる。計算は、収束判定値 ϵ を 1.0×10^{-5} として、その前の解との相対誤差が ϵ 以下となるまで反復計算した。計算の反復回数はサンプル (a) の場合が 10 回、サンプル (b) の場合が 16 回であった。また、図には各粒子サンプルの粒径分布を実線で示す。計算による粒径分布は、粒子サンプルの粒径分布とほぼ一致している。しかし、粒子サンプルにはない粒径の小さい領域にも分布がみられる。これは水溶液中に含まれる微小な気泡を計測したためと推定される。

以上の結果から、レーザー光の消散を利用したパーティクルカウンターと粒径分布の数値解析法により、液中の微粒子の粒径分布を正確に計測できることがわかった。

5. 結 び

微粒子によるレーザー光の消散量を計測する方式を用いた粒径センサーとその信号を解析処理するための計測システムを製作し、粒子数と粒径分布を実時間で *in situ* 計測できる粒径分布カウンターを試作した。粒径 $21 \sim 40 \mu\text{m}$ の球形のガラスビーズを混入させた水溶液について計測し、さらに粒径センサーの出口に設置した観察領域を通過する粒子を CCD カメラで観察し、両計測結果を比較した。また、計測で得られた結果から変換行列を用いて粒度分布を求めた。これらの結果から、試作したパーティクルカウンターは液中の微粒子の大きさと個数を精度よく測定できることが確かめられた。

さらに、スリットの大きさを変更することにより、測定対象となる粒径の幅は広げることができる。また、LD、PD と測定セルを一体化させることにより、さらに小型化することが可能である。

変換行列による数値解析法に関しては、福井大学工学部 長谷川健二教授にご助言いただいたことを感謝申し上げます。

付 録：パルス波高確率 h_{ij} の導出

粒径分布の補正に用いた変換行列の要素、すなわちパルス波高確率 h_{ij} は、Fig. 11(a) に示すような測定領域に対する粒子の位置の関係から計算した。粒子の流れと直角方向を x 軸、スリットの大きさを $a(-a/2 \sim a/2)$ 、粒子の直径を d (ただし、 $d < a$) とし、測定領域の右半分について計算する。

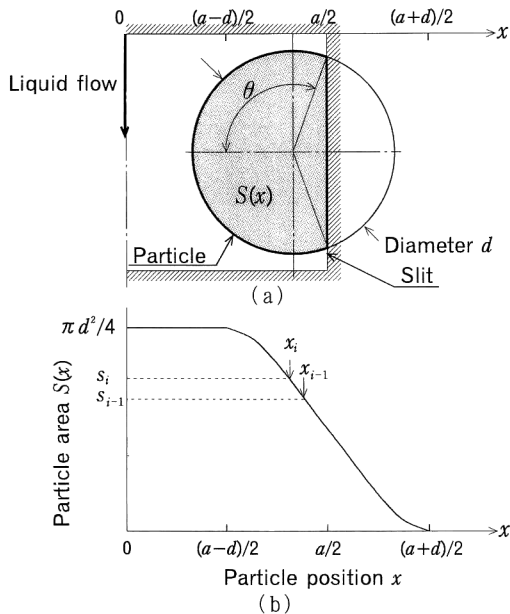


Fig. 11. Sensing area and particle position.

粒子の中心の位置 x により、スリット内にある粒子の面積 $S(x)$ は、

$$i) \quad 0 < x < (a-d)/2 \text{ のとき,} \\ S(x) = \pi d^2/4 \quad (6a)$$

$$ii) \quad (a-d)/2 \leq x < (a+d)/2 \text{ のとき,} \\ S(x) = d^2(\theta - \sin 2\theta/2)/4 \quad (6b)$$

ここで、 $\theta = \cos^{-1}\{(2x-a)/d\}$ ($0 \leq \theta < \pi$) となる。位置 x に対する面積 $S(x)$ の変化を Fig. 11(b) に示す。

粒径 d_j の粒子の位置を、 $0 < x < (a+d_j)/2$ の範囲で変化させた場合、式(6)により粒径 d_i と計測される面積範囲を $S_{i-1} < S(x) \leq S_i$ 、その場合の粒子の位置 x の範囲を $x_{i-1} < x \leq x_i$ とすると、粒径 d_j の粒子が粒径 d_i として計測される確率 (パルス波高確率) h_{ij} は、測定領域の左半分も合わせると、

$$h_{ij} = 2|x_i - x_{i-1}|/(a+d_j) \quad (7)$$

となる。粒子サンプル $d_j = 21 \mu\text{m}$ と $40 \mu\text{m}$ のときのパルス波高確率 h_{ij} を Fig. 12 に示す。ここでは、 $a = 50 \mu\text{m}$ 、分解幅 $\Delta d = 1 \mu\text{m}$ で、 $j = 1 \sim 50$ として計算機により求めた。

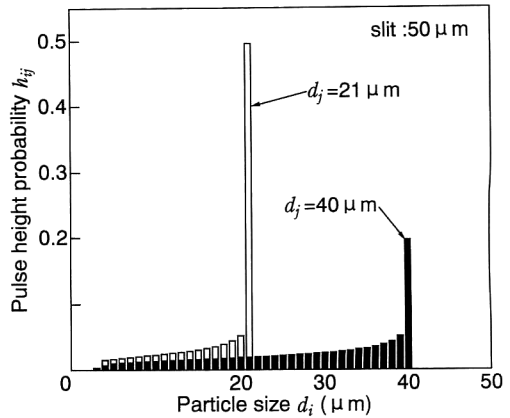


Fig. 12. Variations of the pulse height probability h_{ij} as a function of the particle size.

文 献

- 1) 日本プラントメンテナンス協会：潤滑技術 (日本能率協会, 1991) pp. 32-58, 210-233.
- 2) K. W. Chambers and M. C. Arneson: "An on-line ferromagnetic wear debris sensor for machinery condition monitoring and failure detection," *Wear*, **128** (1988) 325-337.
- 3) R. A. Masom: "The development, proving and application of an in-line metal particle detector (MPD)," *Maint. Manage. Intl.*, **5** (1985) 239-252.
- 4) 松本善政: "油中金属摩耗粒子のオンラインモニタリングシステム", *トライボロジスト*, **7** (1994) 572-576.
- 5) 井伊谷綱一: 粉体工学ハンドブック (朝倉書店, 1966) pp. 12-14.
- 6) A. D. H. Thomas, T. Davies and A. R. Luxmoore: "Computer image analysis for identification of wear particles," *Wear*, **142** (1991) 213-226.
- 7) 高坂彬夫: "微粉体の粒度測定技術", *粉砕*, **21** (1976) 40-49.
- 8) 高坂彬夫: "光透過法による微粉体の粒度分布測定の進歩", *粉砕*, **27** (1983) 42-53.
- 9) 浅田智朗: "レーザーを用いた微粒子径計測", *オプトロニクス*, **8** (1986) 83-89.
- 10) 白井忠昭: "作動油汚染度モニターと液体微粒子カウンター", *潤滑通信*, **1** (1990) 35-41.
- 11) クライド・オアー Jr., J. M. グアラアパアル: 粉体の測定 (産業図書, 1968) pp. 75-100.
- 12) 久保田広, 浮田祐吉: 光学技術ハンドブック (朝倉書店, 1968) pp. 1110-1117.
- 13) 長尾 真: デジタル画像処理 (近代科学社, 1978) pp. 11-28, 209-241.
- 14) 杉江日出澄, 岡崎明彦, 足達義則, 尾崎正弘: FORTRAN 77 による数値計算法 (培風館, 1994) pp. 28-32.