

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和元年9月19日現在

機関番号：12301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25289036

研究課題名(和文) 多波長偏光を用いた非接触2次元サブミクロン粒径・数密度計測

研究課題名(英文) Non-intrusive 2-dimensional sub-micron particle diameter/number-density measurement using multi-wavelength polarized lights

研究代表者

荒木 幹也 (Mikiya, Araki)

群馬大学・大学院理工学府・准教授

研究者番号：70344926

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究課題では、「非接触」かつ「2次元」の「サブミクロン」粒径計測法の開発をもくろむ。電子顕微鏡のような採取計測では、「採取すること」によって微粒子の「粒径・組成」が変わり、さらに「時間履歴・空間分布」の貴重な情報が失われる。そこで、非接触計測法である「偏光比法」に着目する。粒子群に直線偏光レーザーを入射する。偏波面に垂直方向の散乱光強度と、偏波面に平行方向の散乱光強度を取得する。両者の強度比は偏光比と呼ばれ、粒径に依存する。本研究では、多波長光源を用いることで、粒径分布を一意に求める手法を確立した。この手法はブタン層流拡散火炎に適用され、すす粒子の粒径計測が可能であることが検証された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

サブミクロン粒子の「粒径」のみならず「屈折率」も決定できる新計測法の提案である。屈折率から粒子の素材がわかる。これまでにない計測法として、学術的な価値は高いと考えている。自動車産業は日本の基幹産業のひとつである。世界と伍して戦うための不断の技術開発を続けてきた関係者のみなさまの努力に深く敬意を表するものである。本研究が、関係者の皆様にとって少しでもお役に立てばとの思いである。

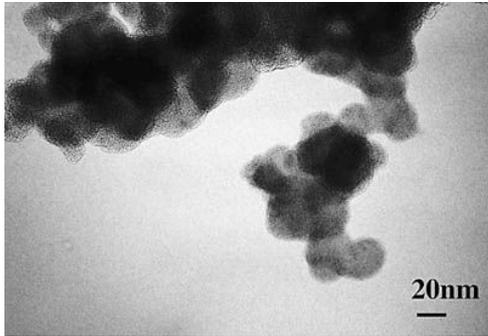
研究成果の概要(英文)：A non-intrusive and 2-dimensional sub-micron particle sizer is developed. Sampling methods such as a conventional electronic microscope can break the particle size distribution and the composition of test particles, and the important information on the growth and spatial distribution are lost. Here, we focus on the polarization ratio method, a non-intrusive particle sizer. A linearly polarized light passes through the particles. The ratio of the scattered lights parallel and perpendicular directions to the polarization plane is acquired. This is called the polarization ratio, and it is related with the particle diameter. In the present study, by use of multi-wavelength light sources, the particle size distribution can be determined uniquely. This method is applied to a butane laminar diffusion flame, and the soot particle measurement is demonstrated.

研究分野：内燃機関

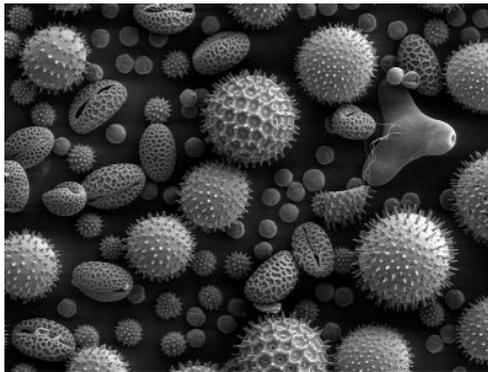
キーワード：粒径計測 偏光 非接触計測 微粒子 サブミクロン

1. 研究開始当初の背景

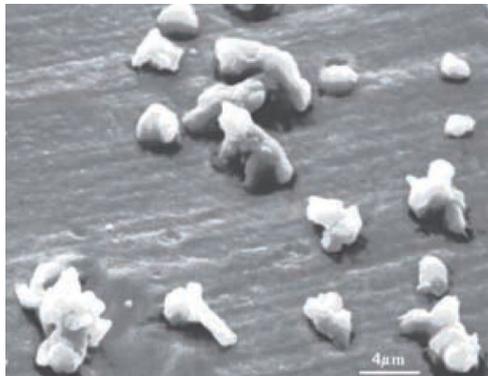
(1) 本研究課題では、「非接触」かつ「2次元」の「サブミクロン」粒径計測法の開発をもちこむ。「微粒子」は、きわめて広範な分野で注目されている。1) 自動車排気中の粒子状物質, 2) 燃料噴霧, 3) 黄砂などのエアロゾル, 4) 印刷トナー, 5) 肺に直接届く薬剤粒子などは、数十 nm ~ 数十 μm オーダの微粒子である。微粒子は、ときに問題視(除去)され、ときに積極的に利用(生成)される。ごく微小な粒子の制御(生成・製造・粒径調製・生成抑制・除去・集じん)を実現するには、その粒子が成長する過程をつぶさに観測する必要がある。我々が考慮すべき粒子は、今や 1 μm オーダ以下の領域(ここでは「サブミクロン粒子」と呼ぶ)に到達しつつあり、サブミクロン粒子を対象とした粒径計測法の確立が必須の課題である。



(a) ディーゼル排気中の微粒子 (国立環境研究所ニュース)



(b) 様々な植物の花粉 (NHK・2008/11/23 放送分)



(c) 大陸から飛来する黄砂 (環境省 HP)

図1 様々なサブミクロン粒子

(2) 表1に代表的な粒径計測法を示す。例えば電子顕微鏡は基準となる計測法の1つであり、サブミクロン粒径計測も可能である。個々の粒子の「形状」まで観察することができるため、粒子計測では絶大な威力を発揮する。最大の弱点は、「採取計測」であることである。微粒子を「現場」から採取し、試料台にのせる。例えば、今まさに生成しつつある「すす粒子」を火災(現場)から採取し試料サンプルを作成する。この操作で「粒径・組成」は変わり、「時間履歴・空間分布」の貴重な情報が失われる。

電子顕微鏡のほかにも、遠心沈降法、カスケードインパクト、走査型移動度粒径計測法といった手法が幅広く用いられているが、これら「採取計測」に基づく計測法は、全て同じ問題を抱えることとなる。粒子の成長過程をつぶさに観察するためには、粒子を採取せず、現場にあるまま観測する「非接触」計測法の確立が求められる。

表1 代表的な粒径計測法

計測法	粒径計測法		計測次元		粒径計測範囲	
	採取	非採取	点	面	1次元	2次元
採取法	光学・電子顕微鏡	×	×	×	100nm	100μm
	遠心(液相)沈降法	×	×	×	100nm	100μm
	カスケードインパクト	×	×	×	100nm	100μm
	走査型移動度粒径計測法	×	×	×	100nm	100μm
	レーザー計測法	×	×	×	100nm	100μm
非採取法	位相ドップラ法	△	○	○	100nm	100μm
	前方微小角散乱法	△	○	○	100nm	100μm
	干渉画像法	○	○	○	100nm	100μm
	動的分散法	△	○	○	100nm	100μm
	偏光比法	△	○	○	100nm	100μm

偏光比法 → 「2次元」「サブミクロン」計測可能
「計測範囲」は著しく狭い

近年、レーザを用いた粒径計測法の発展が著しい。光を用いるため、粒子を採取することなく現場で計測できるという大きな利点がある。例えば、位相ドップラ法、前方微小角散乱法、干渉画像法は、燃料噴霧の分野で幅広く用いられ、燃料噴射弁の開発や燃焼過程の最適化におおいに貢献している。ただしこれらの手法は、燃料噴霧のようなミクロンオーダの粒子には有効であるものの、すす粒子のようなサブミクロン粒子の計測は困難となる。原理上、レーザ波長(400~700nmのオーダ)と粒径が同じオーダとなると、計測が困難となるためである。

レーザを用いたサブミクロン計測法に、動的分散法がある。この手法は、サブミクロン粒子の計測が可能であるものの、基本程に点計測であり空間分布の把握は難しく、またハイパワーレーザと高価なデータ処理系を必要とするため敷居が高い。

本研究では、「非接触」「2次元」「サブミクロン」粒径計測を実現すべく、「偏光比法」に着目する。この手法は、ハイパワーレーザや高価な信号処理器を必要とせず、これまでエアロゾルの分野で用いられてきたものである。ただしこの手法は、粒径計測範囲が非常に狭い(50nm~200nm程度)という決定的な欠点を有する。また、粒子群は一般的に粒径に分布がある。すなわち、小から大までさまざまな大きさの粒子から構成されており、決して単一粒径の集合ではない。こ

の分布は「粒径分布」と呼ばれ、粒子群の粒径を評価するうえでは欠くべからざる重要な指標である。「偏光比法」は、粒径分布を決定することができず、例えば「粒径分布の幅」、つまり粒子群に含まれる小から大までの粒子のばらつきを「仮定」することで、はじめて粒径を決定できるという決定的な欠点を持つ。

(4) 以上をふまえ、本研究課題では、「非接触」かつ「2次元」の「サブミクロン」粒径計測を実現するため、従来の偏光比法に「多波長光源」を導入する。これにより、粒径計測範囲の拡大と、粒径分布の決定という問題を克服し、サブミクロン粒径計測法として確立することをもくろむ。

2. 研究の目的

(1) 本研究では、計測対象であるサブミクロン粒子として「すす粒子」を選択する。これはきわめて困難な計測対象であるものの、その粒径計測法が確立したあかつきには、きわめておおきな成果が得られると判断したためである。

自動車排気に含まれる粒子状物質は、人体への健康被害が指摘されており、社会的に大きな問題となっている。今後ますます厳しくなる排気規制に対応するため、粒子状物質の生成メカニズム把握と排出低減法確立が喫緊の課題である。このためには、粒子生成過程を知る、つまり粒径を把握する必要がある。

粒子状物質は、エンジンの燃焼過程で生成する。燃焼過程で生成するすす粒子は、粒径が10 nm オーダの1次粒子と、それらが凝集して形成される粒径100 nm オーダの2次粒子からなる。いずれもサブミクロン粒子であり、その粒径計測には多くの困難を伴う。

本研究では、粒径計測の可能性評価を行うという観点から、実機エンジンのような複雑な場ではなく、単純な燃焼場を選択した。具体的には、ボタン層流拡散火炎を用い、粒径計測を行った。

(2) すず粒子の計測には、先述のように「偏光比法」を用いる。単一の粒子に直線偏光を入射する。粒子からの散乱光を、偏波面に垂直・平行な2方向から観測する。両者の強度比 (i_2/i_1) は「偏光比 ρ 」と呼ばれ、ミーの散乱理論から粒径 D と偏光比 ρ の関係が解析的に与えられる。偏光比 ρ を計測し、解析解と比較することで、粒径 D を決定できる。

ここで問題となるのが、「粒径計測範囲の狭さ」と「粒径分布」である。すす1次粒子は10 nm オーダであり、従来の偏光比法では計測は難しい領域にある。また、すすは粒子群として存在するものであり、個々の粒子の粒径は異なる。粒子群全体が形作る粒径分布は、これまでの偏光比法では計測不可能であった。本研究では、多波長光源を導入することで、これらの問題を解決する。

3. 研究の方法

(1) 図2に球状粒子へ入射する直線偏光の散乱を示す。入射光の偏光面と垂直方向で観測される成分を i_1 、入射光の偏光面と平行方向で観測される成分を i_2 とおく。粒子群を仮定した場合、散乱光強度は各粒径成分の総和 I_1, I_2 として表される。解析に用いた数式を示す。

$$\varepsilon = I_{i, \lambda_k} - \tau_{i, \lambda_k} c_{i, \lambda_k} n f_{i, \lambda_k} (D_g, \sigma_g, m, \lambda_k, \theta) \quad (1)$$

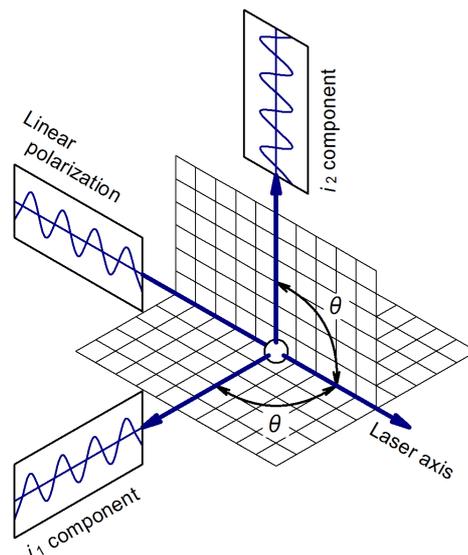


図2 球状粒子へ入射する直線偏光の散乱

I : 実験から求めた散乱光強度, τ : 露光時間, c : 計測機器の光学定数, n : 粒子数, f : ミー理論により求められる理論散乱光強度[1], λ : 光源波長, D_g : 幾何平均粒径, σ_g : 幾何標準偏差, m : 複素屈折率, θ : 散乱光角度 $i=1, 2, k=405, 488$ nm である。ここで c, n, D_g, σ_g, m が未知変数である。また、すすの粒度分布は対数正規分布に従うとした。

本実験では2色のレーザを用いる[3]ので、 I_1, I_2 それぞれ2本の式を作ることができ、式(1)は4本で構成される。計測値から理論値を減算したものを残差 ε とする。計4つの総残差が最小となる変数の組み合わせを解とした。

(2) 図3にバーナ、図4にイメージセンサー上に偏光素子を装着したカメラ(以下、偏光カメラと称す)を含めた装置概略図を示す。燃料にボタンを用い、内径 $2R = 5.0$ mm の燃料ノズル軸を z 軸、半径方向を r 軸とする。火炎形状を安定に保つため、バーナ同心円状に酸素濃度21%の酸化剤を内径50 mm のノズルから層流で流出させた。また各流体の流出直前の温度を温度調節器とシリコンヒーターを用いて35°Cに調整した。本実験では火炎高さを30 mm とするため、燃料・空気の流量を41.0 mL/min, 12.0 L/min とした。燃料ポンプは水温5°Cの恒温水槽に入れ、温度を一定に保った。

光源に半導体レーザ(波長: Purple = 405 nm, Blue = 488 nm)を用いた。レーザ光はレーザの前に設置したグラインレーザプリズムを通過し、

設置面に対し、45 deg 傾いた直線偏光となって照射される。この場合、レーザー光の偏光面は設置面に平行な成分と垂直な成分の合成としてみなせ、割合は 1:1 である。ビーム径は 2 色ともおよそ 0.4 mm にした。そしてレーザー光を火炎に照射し、レーザー光が火炎の中心を通るようにした。計測は $z = 20$ mm の高さで行った。

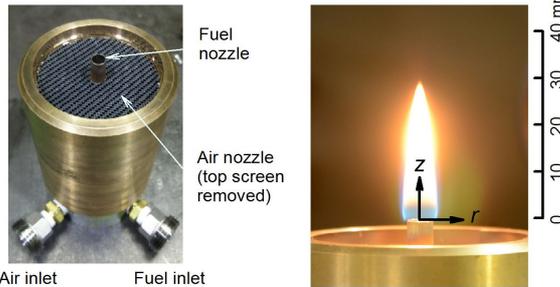


図3 供試バーナとブタン層流拡散火炎

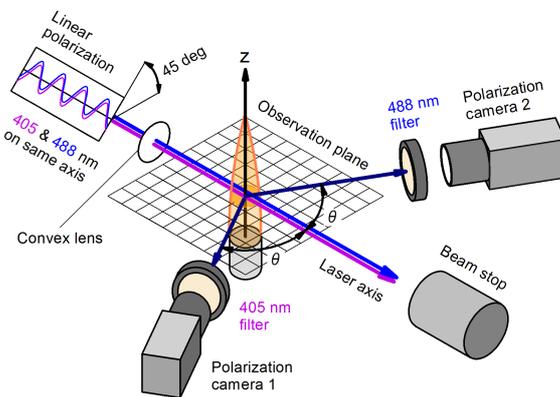


図4 光学系配置.

偏光カメラは散乱角度 $\theta = 60$ deg となる位置に設置した。散乱光を偏光カメラで取得し画像から散乱光強度を求めた。偏光素子により、1枚の写真を4つの偏光角度に分解することができる。なお輝炎光の除去をするため、干渉フィルターを用いた。

撮影後、計測値と理論値との引き算、即ち残差が最小になるように光学定数、粒子数、幾何平均粒径、幾何標準偏差、複素屈折率を変化させ、コンピュータで計算を行った。総残差が最小のものをを選び、ポータブル粒度分析器 (PAMS) の結果と比較することで D_g, σ_g, m を決定した。PAMS については後述する。

(3) 図5に、総残差 ε_{sum} の等値面を示す。2色のレーザーならびに2方向の偏光成分から、4通りの計測結果が存在する。 D_g, σ_g, m を変化させながら式(1)により4通りの解析解を求める。両者の残差を組合せを繰り返し計算によって求め、その最小を与える組合せを解とした。複素屈折率 $m = 1.8 - 0.7i$ かつ幾何標準偏差 $\text{Log } \sigma_g = 0.20$ にて収束を得た。残差は、屈折率に対して大きく変化するものの、幾何標準偏差に対する依存性が小さい。

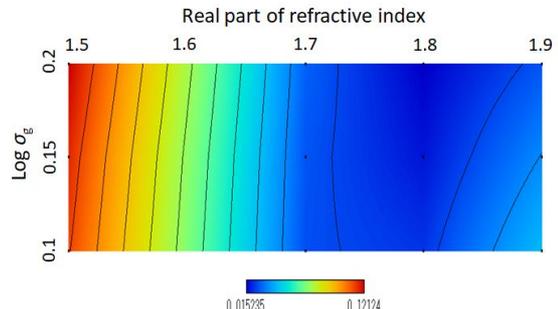


図5 収束判定に用いる残差分布

(4) 図6にPAMSによる粒度分布と、散乱光を用いた粒径計測による粒度分布を示す。計測断面内のすすを全量採取し、PAMSにて粒度分布を取得した。直径5mmの採取口を有する採取管に火炎を直接挿入し、窒素ガスによる反応凍結および希釈を行ったのちPAMSへ導いた。希釈倍率は、エジェクターポンプ出口で5600倍である。PAMSによる粒度分布は二峰性であり、大粒径側のピークは、採取管内での凝集であることが確認されている。

散乱光を用いた粒径計測による粒度分布は、半径距離ごとに求めた粒度分布を、粒子数を考慮して積算し、計測断面内のすす全量の粒度分布に換算したものである。散乱光を用いた計測では、PAMSと比較して粒径を過小評価することが分かる。これは、収束判定の際に $\text{Log } \sigma_g$ を過大評価しているため、判定の刻みの改善が必要である。

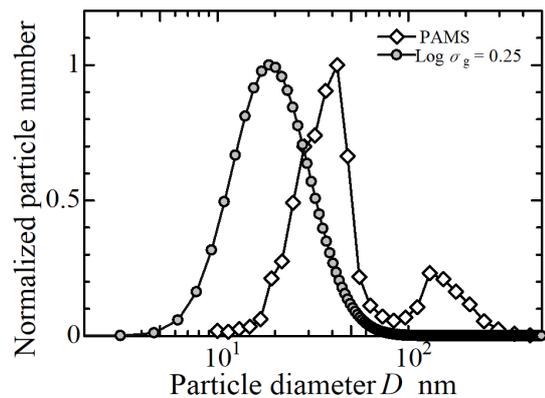


図6 粒径分布

図7に $z = 20$ mmにおける粒径と粒子数を示す。火炎面に向け粒径はゆるやかに増大し、粒子数は減少する様子が捉えられている。

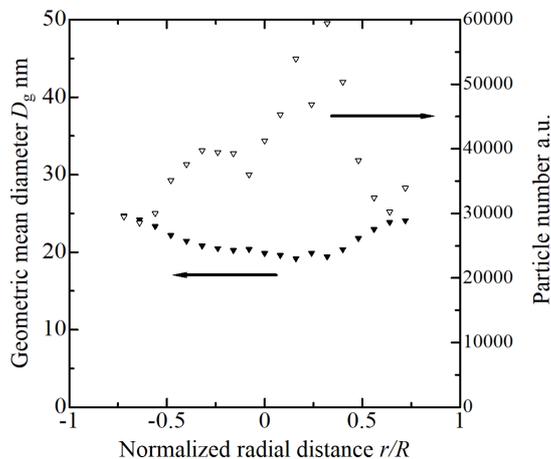


図7 幾何平均粒径と標準偏差の分布

4. 研究成果

ブタン層流拡散火炎中のすす粒子による散乱光を取得し、粒径計測を行った。そしてポータブル粒度分析器(PAMS)による結果との比較を行った。

- (1) 散乱光による計測では、幾何平均粒径は $z = 20$ mm で約 20 nm から 25 nm となる。半径方向に向け粒径は増大し、粒子数は減少する。
 - (2) PAMS による計測との比較から、幾何標準偏差の判定精度の向上が必要であることが示された。今後改善していく予定である。
- 以上をもって、本研究課題で提案したサブミクロン粒径計測法の計測可能性検証は完了した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 0 件)

〔学会発表〕(計 3 件)

- (1) Long Cheng, Yuichi Koizumi, Seibu Kiribayashi, Shotaro Oda, Mikiya Araki, Soot Volume Fraction Measurement in a Pool Flame Using Transmissive Light Extinction Method, 第 56 回燃焼シンポジウム, E134, 堺市産業振興センター, 2018 年 11 月 14 日-16 日.
- (2) 小泉 優一, 程 龍, 桐林 生武, 小田 祥太郎, 荒木 幹也, 直線偏光を用いたブタン層流拡散火炎中のすす粒径計測, 第 56 回燃焼シンポジウム, E331, 堺市産業振興センター, 2018 年 11 月 14 日-16 日.
- (3) 桐林 生武, 程 龍, 小泉 優一, 小田 祥太郎, 荒木 幹也, 直線偏光を用いたプール火炎中のすす粒径計測, 第 56 回燃焼シンポジウム, E332, 堺市産業振興センター, 2018 年 11 月 14 日-16 日.

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況(計 1 件)

名称: 粒子群計測装置
 発明者: 荒木幹也, 小泉優一, 桐林生武, 小野祥太郎, 程龍, 池田知貴
 権利者: 国立大学法人群馬大学
 種類: 特許
 番号: 特願 2018-210238
 出願年月日: 2018 年 11 月 8 日
 国内外の別: 出願予定

○取得状況(計 0 件)

名称:
 発明者:
 権利者:
 種類:
 番号:
 取得年月日:
 国内外の別:

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1)研究代表者

荒木 幹也 (Araki, Mikiya)
 群馬大学・大学院理工学府・准教授
 研究者番号: 7 0 3 4 4 9 2 6

(2)研究分担者

志賀 聖一 (Shiga, Seiichi)
 群馬大学・大学院理工学府・教授
 研究者番号: 0 0 1 5 4 1 8 8

(3)連携研究者

なし