

VII-24

微粒子計による個数測定における濃度限界に関する考察

東北工業大学大学院 ○(学生員) 長尾 崇史
東北工業大学 (正会員) 今野 弘 津田 良榮 坂本 敏彦

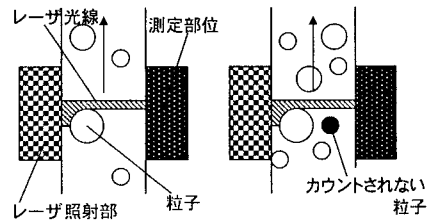
1. はじめに

クリプトスポリジウム問題の発生以降、微粒子計は浄水管理に用いられるようになった。主に濾過処理水のクリプト相当径の除去状況の監視に使用される。本来、微粒子計は低濁度試料の粒子数を計測する機器であり、構造上、高濁度域(約2度以上)での使用は考慮されていない¹⁾。しかし、微粒子計の応用利用を考えると、自然水等の粒子数を把握する必要性が生じる場合があると考えられ、微粒子計による高個数濃度の粒子数計測を行うことも必要となる。こういった高個数濃度試料は、希釈して計測することが妥当である。しかし、経験上、希釈試料中の個数濃度が希釈倍率と食い違うことがあり、真の濃度を得ることができないでいた。今回、微粒子計を用いて希釈倍率と個数濃度との相関を明らかにする実験を行い、一定の傾向を確認できたので報告する。

2. 実験概要・試料の作成

2-1 実験の概要 希釈前後の試料中粒子個数濃度変化比率と希釈倍率とに食い違いが見られる現象は、光遮断微粒子計の測定方式に起因すると考えられる。光遮断方式は、レーザ光(単波長)を数mmのセルを通して粒子の遮断光(影)を計測し、粒子径別の粒子数を測定する²⁾。このとき図1左に示すように、微粒子計の測定部位が設置されている流路中を流れる試料中粒子個数濃度が設計範囲(上限：可測個数濃度)内であればそれを正確にカウントできるが、図1右のように、試料中個数濃度が過剰な場合、他の粒子の影の中に別の粒子が入り込む可能性があり、粒子を重複して計測するために粒子数を過少評価することが考えられる。このため、微粒子計には可測個数濃度として、測定試料の粒子数の限界値が定められているが、可測個数濃度内であっても同様の現象が発生して測定結果に大きく影響して、希釈前後の試料中総粒子数変化率と希釈倍率との関係に影響していると考えた。本実験ではこの現象の確認と粒子数毎の傾向把握のため、微粒子計は計測試料中に関して粒子数が多いほど粒子数を過少に、逆に少ないほど重複計測が少ないために真値に近い正確な値を評価するものと仮定して、図2の実験フローのように、同一カオリン懸濁液から粒子数が異なるように試料を複数作成後、これから10倍、100倍の希釈試料を作成して、各々の粒子数を5回計測して平均値をとり希釈前後の粒子数から変化比率を算出して、希釈倍率10倍との比較を行った。

2-2 実験条件 ブランク水として純水を用いることとして、カオリン調製・懸濁液希釈に用いるメスフラスコ等の器具類はブランク水を注いで粒子数を計測し、粒子個数濃度が5個/mL以下になるようによく洗浄してから用いた。また、微粒子数の計測に際しては、試料の吸引口部分もブランク水でよく洗浄し、1試料を測定終了後には微粒子計内流路を、十分に粒子数が少なくなるまでブランク水でダミー測定を行ってから別の試料を計測した。使用した微粒子計に関する機能と実験に際して設定した条件は、表1に示した。



左：粒子数が最適 右：粒子数が過剰
図1. 光遮断方式微粒子計の計測時における測定部位

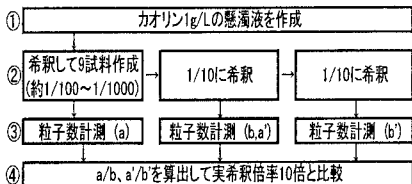


図2. 行った実験の流れ

表1. 微粒子計の主な機能と実験に際する設定条件

機能	測定方式	光遮断方式
	光源	半導体レーザ
	計測可能な粒径範囲	2~100 μm
	粒径区分	8ch (2~9 μmまで1 μm毎に設定)
条件	可測個数濃度	約1,5000個/mL (メーカー取扱説明書)
	検水量	50mL
条件	流量	100mL/min
	計内流路の試料による共洗	25mL

3. 実験結果

3-1 希釈前後の粒子数変化倍率の推移 実験の結果は、表 2 のようになった。表中の A,B はそれぞれ希釈前の試料中の総個数濃度、10 倍希釈後の試料中の総個数濃度を表す。図 3 はこの結果に関して横軸を A、縦軸を A/B としてグラフにしたものである。A が 5000 個/mL 以下の場合、傾向が乱れるが、それ以降の試料で A/B が 8(倍)を超える。また、個数濃度が多い試料ほど A/B が希釈倍率の 10(倍)から離れ、顕著な減少傾向が見られる。特に A が 5000 個/mL 以上の場合について着目すると、一定の分布を持ちながら減少しているようにも見える。

表 2. 実験の結果

A	B	A/B
22038.6	4883.5	4.5
20802.8	4342.1	4.8
18676.6	3576.2	5.2
18203.1	3277.9	5.6
16241.3	2897.0	5.6
14793.9	2275.3	6.5
12364.7	1739.3	7.1
9631.5	1291.0	7.5
5121.1	665.2	7.7
4883.5	551.5	8.9
4342.1	506.8	8.6
3576.2	449.9	7.9
3277.9	375.8	8.7
2897.0	448.6	6.5
2275.3	276.5	8.2
1739.3	180.3	9.6
1291.0	151.9	8.5
665.2	94.1	7.1

A:希釈前の各試料の
個数濃度(個/mL)
B:10 倍希釈後の各試料の
個数濃度(個/mL)

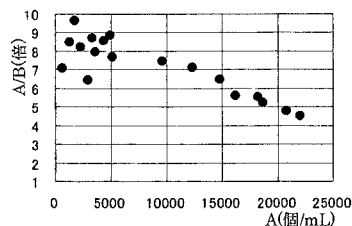


図 3. 試料毎の総粒子数で見た希釈倍率

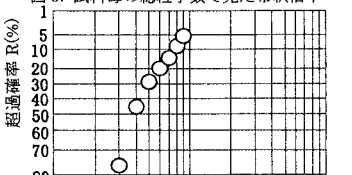


図 4. A=14753.88 個/mL の試料の RR 分布

3-2 Rosin-Rammler 分布への適用 各試料の 10 倍希釈後の粒子数(B)について Rosin-Rammler 分布(RR 分布)に適用した。RR 分布は超過確率 $R = 100 \times 10^{-b'd^n}$ (n は累乗の指数)で表現できる。分布の傾きを示す n 値、 $1 \mu m$ 以上の粒子の存在比率に関わる b' 値、粒径 d 値(特に分布の平均粒径を示す d_{50} 値)は分布の特性値である。水中粒子の粒径分布を定量化するのに有効であることは報告した³⁾。図 4 は例として A が 14793.9 個/mL の試料を RR 分布に適用した結果である。図を見て分かる通り、粒径 $3 \mu m$ の超過確率は外れるものの直線性があり、分布が適当であることが分かる。同様の処理を各試料の測定結果に対して行ったが、全てにおいて同様の直線性を確認できた。ここで適用結果から特性値を読み、グラフにしたものが図 5,6,7 である。順に n 値、 b' 値、 d_{50} 値となっている。 n, d_{50} 値は、粒子数が多い試料になるに従い、増加傾向を見せる。逆に b' 値は直線的な減少傾向が見て取れる。これらより、分布は粒子数が多い試料になる程、 n 値、 d_{50} 値の増加と b' 値の減少で分布が大粒径側にシフトすることが分かり、相対的に小粒径粒子が減少していることを示している。本来、液中の粒子径分布が均等な試料を希釈した場合、その前後で分布構成は変わることはない。この実験結果から、微粒子計は試料中の粒子数が多くなると、小粒径粒子は冒頭に述べた重複計測がなされ、真値よりも過少評価されるものと考えられる。

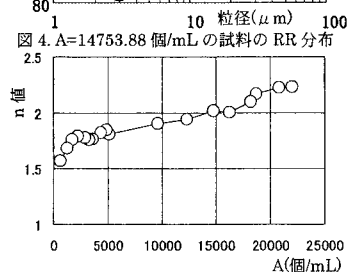


図 5. 各試料の n 値の推移

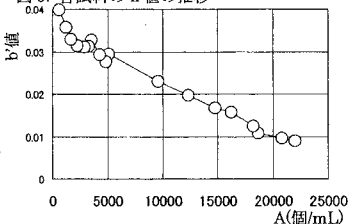


図 6. 各試料の b' 値の推移

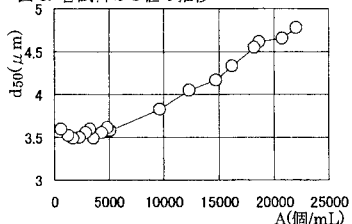


図 7. 各試料の d50 値の推移

3-3 各粒径毎の希釈前後の粒子数変化倍率の推移 図 8 は、図 3 と同様に各試料における粒径毎の 10 倍希釈前後の個数濃度変化倍率をグラフにしたものである。粒径毎の変化倍率は、大粒径粒子ほど正確に計測されていることが分かる。また、小粒径粒子ほど相対的な減少傾向が著しい。また、この減少傾向は粒径毎に直線的な分布が見て取れる。

4. おわりに

これらの結果から微粒子計の計測精度を決定づける要因は、試料中の粒子数と粒径分布構成であることが考えられる。今後更に詳しく関連を調べ、高個数濃度試料計測時の補正手段について検討していきたい。

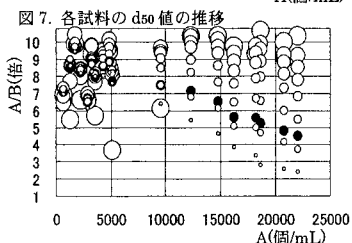


図 8. 試料毎の粒径別に見た希釈倍率

○: 小さい方から粒径 $d(\mu m)$ が $2 < d < 3$, $3 < d < 4$, $4 < d < 5$, $5 < d < 6$, $6 < d < 7$, $7 < d < 8$, $8 < d < 9$, $9 < d$ といった各試料の粒径別の希釈後の倍率
●: 試料毎の A/B (図 3 に同じ)

- 参考文献 1) 日本水道協会 : 上水試験方法解説編 2001 年版, p.168
2) 北本 尚 他 : 微粒子カウンタの開発, 第 51 回全国水道研究会講演集, pp.524-525
3) 長尾崇史, 今野弘 : 水中の微粒子の粒度分布に関する一考察, 平成 13 年度東北支部技術研究発表会講演要集, pp.766-767