

Fraunhofer 回折粒度測定における粒子形状の影響

森 侯寿* 小林 三郎**

Effect of particle shape on the sizes measured by means of the Fraunhofer diffraction method.

By Kimitosi MORI and Saburo KOBAYASHI

1. 緒 言

粉状物質の粒度分布測定法には、原理¹⁾²⁾、被測定物自身の性質や大きさ³⁾⁴⁾、必要精度あるいは測定環境等に依存して多くの方法がある¹⁾²⁾。測定法を、粒子像の直接観察と計数による直接法と何らかの物理現象を媒介して粒度を求める間接法に分類すれば⁴⁾、たとえば画像処理法は前者に、沈降法や光散乱法は後者に属する。光散乱法の一つである He-Ne レーザ Fraunhofer 回折法は「非接触」かつ「オンライン」の条件を満たす有力な方法として普及しつつある。

光散乱法は1980年代液体燃料の噴霧細粒化の研究に適用されるとともに、その測定技術の改善のための研究も盛んになった。後者に関する問題は、大略つぎの四つに要約できよう：1) 粒子による光の散乱様式^{5)–11)}、2) 回折光から粒度分布への変換法（粒度決定原理^{9), 12)–21)}、3) 粒子濃度^{22)–25)}、および4) 粒子形状^{9), 26)–33)}。本測定法においては、粒子を球と仮定して球相当径が求められる。したがって、非球形粒子を測定する場合、4) の問題すなわち球相当粒度に及ぼす非球形性の影響は重要な問題である。

粒子形状に関する研究のほとんどは円柱、回転楕円体^{27)–29)}あるいは Chebychev 粒子³⁰⁾に関するもので不規則形状に関する研究は極めて少ないだけでなく、粒度決定原理あるいは適用性に関する研究も少ない²⁶⁾。本研究所に設置されている測定装置は種々の粉体試料の粒度分布測定に供されており、粒子形状の影響は興味ある問題である。正しい測定値を得るためには測定マニュアルのみでは不十分で、測定原理に対する十分な理解と独自のデータ解析法の確立が必要である。本稿では球形試料測定に関する問題および不規則形状粒子の粒度分布評価問題について考察する。現在市販されている測定装置は Fraunhofer 回折領域の比較的大きい粒子のみならず、Mie 散乱領域に入るより小さい粒子（通常 μm 以下）の測定も可能である。Mie 散乱の場合屈折率の影響が強くなるので粒子形状の問題は極めて複雑になる。問題の複雑性を避けるため、ここでは粒子の光学物性に依らないとされる Fraunhofer 回折領域に入る比較的大きい粒子の場合を取り上げ、画像処理粒度測定結果と比較しながら粒子形状問題について述べる。

2. 測定装置

光が細孔を通過するとき回折現象が生ずるが、細孔が光の波長より十分大きい場合、回折角が小さく、かつ細孔から十分離れた位置で観測される回折は Fraunhofer 回折と称される。Babinet の原理⁷⁾ に基き、細孔に関する Fraunhofer 回折理論は粒子による回折現象の解析にも適用できる。

平成6年10月1日受理

* NKK 福山製鉄所

** 東北大学素材工学研究所

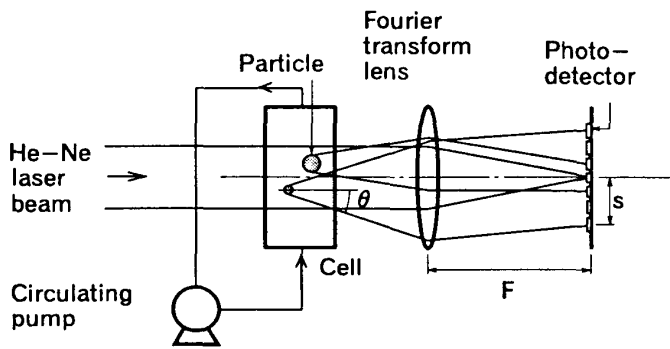


Fig. 1 Schematic diagram of the particle size measurement apparatus.

以下に粒度分布測定装置と測定原理の概略を述べる. Fig. 1は装置の概念図を示す. 球粒子を懸濁した水が循環している試料セル中に He-Ne レーザを通過させると, レーザ光は粒子により回折される. 粒度が小ほど回折角は大となる. フーリエレンズの焦点距離の位置に光検出素子配列板が置かれている. 回折光は粒子の位置には無関係に回折角 θ のみに依存するため, 光検出素子配列板上における回折光分布は光軸対称となる. したがってセル中に無秩序に分散する粒径一様な多数の球形粒子による回折像は光軸を中心とする円形の明暗縞模様となる. 光の波長を λ , フーリエレンズの焦点距離を F とし, 焦点面上で光軸を中心とする半径 s の円内に含まれる光のエネルギーを考える. 1個の半径 r_p の球形粒子による回折光のエネルギーの全エネルギーに対する分率 $E(s)$ は

$$E(s) = 1 - J_0(x)^2 - J_1(x)^2 \quad (1)$$

で与えられる⁷⁾. ここで $J_n(x)$ は n 次の Bessel 関数で, x は次式

$$x = kr_p s / F \quad (2)$$

$$k = 2\pi / \lambda \quad (3)$$

で定義される. 式 (1) によれば第一明縞の半径は $x_m = 1.375$, 第一暗縞の半径は $x = 3.84$ である. 一方, 第一暗縞の円内に含まれるエネルギー分率は 83.8% となり, 回折光のほとんどの部分がこの円内に含まれ, $x = x_m$ でエネルギー密度が最大となる.

内外半径をそれぞれ s_{i-1} および s_i ($s_{i-1} < s_i$) とする一つの円環状光検出素子を焦点面上に置くとき, 多数の単分散粒子の場合, この素子に入射するエネルギー $E(s_{i-1}, s_i)$ は, 式(1)より

$$E(s_{i-1}, s_i) = C(V/r_p) \{ (J_0^2 + J_1^2)_{s_{i-1}} - (J_0^2 + J_1^2)_{s_i} \} \quad (4)$$

で与えられる. ここで C は定数, V は全粒子の容積である.

多分散粒子の場合, 一つの素子に入射するエネルギーは各粒径の粒子からの回折光の和に等しいから式(4)を用いて次式が得られる.

$$E(s_{i-1}, s_i) = C \sum_{j=1}^N (V_j / r_{pj}) \{ (J_0(x_{i-1,j})^2 + J_1(x_{i-1,j})^2) - (J_0(x_{i,j})^2 + J_1(x_{i,j})^2) \} \quad (5)$$

ここで

$$x_{i,j} = kr_{pj} s_i / F \quad (6)$$

r_{pj} および V_j はそれぞれ j 番目の粒度クラスの代表半径およびこのクラスに含まれる全粒子の容積である. N は粒度クラスの総数である.

環状素子が M 個ある場合

$$T_{i,j} = C\{(J_0(x_{i-1,j})^2 + J_1(x_{i-1,j})^2) - (J_0(x_{i,j})^2 + J_1(x_{i,j})^2)\} / r_{pj} \quad (7)$$

とおき、式(5)を一般化すると

$$E_i = T_{i,j} V_j \quad (i = 1, 2, \dots, M ; j = 1, 2, \dots, N) \quad (8)$$

が得られる。ここで E_i は光エネルギー分布の測定値、 V_j は求めるべき粒子の容積分布、 $T_{i,j}$ は光エネルギー分布と粒子の容積分布を関係付ける装置定数マトリックスである¹⁴⁾。

さて、式(7)からわかるように、 $T_{i,j}$ の数値を得るためには r_{pj} と $x_{i,j}$ の値を与えなければならない。 k, F および (s_{i-1}, s_i) は装置定数である。 r_{pj} については本測定法では以下のように定められる。式(5)が示すように、一つの素子は多かれ少なかれ全粒径粒子から回折光を受けるのであるが、そのエネルギーは最大エネルギー密度を与える粒径粒子のみの回折光エネルギーに等しいと仮定する¹⁴⁾。この仮定は粒度決定原理の根幹をなすものである。この仮定の下では式(6)より

$$r_{pj} = (F x_m / k) / s_i' \quad (9)$$

ここで

$$s_i' = (s_{i-1} + s_i) / 2 \quad (10)$$

式(9)で左辺 r_{pj} の suffix が i になっていることに注意する。このように粒度を定めると式(7)において用いるべき x としては

$$x_{i-1,j} = 2x_m / (1 + s_i / s_{i-1}), \quad x_{i,j} = 2x_m / (1 + s_{i-1} / s_i) \quad (11)$$

粒子半径としては r_{pj} である。 $T_{i,j}$ は s_i' と比 s_{i-1} / s_i とに依存する。装置定数マトリックスは対角行列になり、式(8)は

$$E_i = T_{i,i} V_i \quad (12)$$

と書ける。実際の測定装置では $M = N = 31$ である³⁴⁾。

上記の仮定は、一つの受光素子に対してただ一つの粒度を代表させる。この粒度決定原理によれば、完全に一樣な粒度の単分散試料であっても測定結果としては一定の幅をもつ分布が得られることに注意する必要がある。

原理的には式(12)を直接解いて V_i を得ることができるが、この方法では E_i に含まれる測定誤差が直接 V_i に伝播するため、このような直接的解法は採られない。測定誤差の影響を小さくするために有効な方法の一つはいわゆる優決定系 (over determined) とすることである。この場合適当な粒度分布関数を適用し、関数に含まれる通常1または2個の未知パラメータを求めるのである。測定装置(後述のマスターサイザ)に組み込まれている分布関数は4個である³⁴⁾。

3. 粉体試料

測定に供した試料は Fraunhofer 回折領域に入るよう数 $10\mu\text{m}$ ~ 数 $100\mu\text{m}$ とし、形状は下記の4種類とした。

- [1] 球形粒子；ガラス (平均径 $50\sim 600\mu\text{m}$) およびポリスチレン (平均径 $200\sim 500\mu\text{m}$)
- [2] 破碎酸化物粒子；アルミナおよびシリカ
- [3] 噴霧凝固金属粒子；電解鉄およびアルミニウム
- [4] 針状粒子；グラスファイバ

粒子 [1] と [4] は規則形状, [2] と [3] は不規則形状である. Photo. 1(a) はほぼ完全な球形をしたガラス球試料である. (b) は破碎アルミナ粒子試料であるが, シリカの場合も同様の形状である. (c) は噴霧凝固アルミニウム粒子試料を示すが, 粒子の輪郭は滑らかな形をしている. 電解鉄試料の場合も同様の形状である. (d) は直径約 $30\mu\text{m}$, 長さ 10cm 以上の円柱状グラスファイバを破碎して得た試料であるが, 直径一定, 長さの異なる規則的的形状をしている.

4. 粒度分布測定器

上記試料の粒度分布の測定には Fraunhofer 回折法としてはマスタサイザ (Malvern 社製, MasterSizer MS20) を用い, 他方面像処理解析装置 (Nireko 社製, Luzex 5000X-SPL) により得た粒度分布を基準データとした. 各測定器の測定条件について述べる.

4.1 マスタサイザの測定条件³⁴⁾

直径 18mm の平行光束とした He/Ne レーザ (出力 2mW , 波長 632.8nm) が試料セルを透過する. 試料セルは 2 枚の平行ガラス板を有し, その平行間隙 (間隔 3mm) を試料粒子を懸濁した水が流れる. 粒子懸濁水はプロペラ攪拌と超音波分散を伴う流動系内を循環し, 試料全体が試料セル内に分散する. この測定法は以下では回折法 (LD) と称する.

4.2 画像処理

試料をガラス板上に分散させ, 光学顕微鏡により適当な倍率の拡大像を得る. 二値化像としたのち, 接触粒子の切放し等の処理を施し粒度の計測を行う. 計測粒子の数は約 1000 とした. 粒度として円相当直径

$$d_p = (4S_p / \pi) \quad (13)$$

を, また粒子形状の不規則性を表わすための形状係数 ϕ_1 と円柱状粒子の形状を表すための形状係数 ϕ_2

$$\phi_1 = 100 l_p^2 / (4\pi S_p) \quad (14)$$

$$\phi_2 = 100 l_{max} / l_w \quad (15)$$

を求めることができる. ここで S_p および l_p はそれぞれ粒子の投影面積および周囲長, また l_{max} および l_w はそれぞれ粒子の最大長およびそれに直角な方向の幅を表す. この測定法は以下では画像法 (IA) と称する.

5. 測定結果

5.1 球形粒子

ガラス粒子の積算容積分率の例を Fig. 2 に示す. 分布は平均径が $50\sim 200\mu\text{m}$ の場合 Fig. 2(a) に示すように回折法と画像法とではほぼ一致するが, $200\mu\text{m}$ 以上の場合 Fig. 2(b) に示すように回折法の方が画像法より分布幅が広がる.

両測定法による結果を比較するためにつぎのような二つのパラメータ, すなわち平均粒径の差 Δ および分布幅の比 Λ を定義する.

$$\Delta = 100(D_{v, IA} - D_{v, LD}) / D_{v, IA} \quad (16)$$

$$\Lambda = \lambda_{LD} / \lambda_{IA} \quad (17)$$

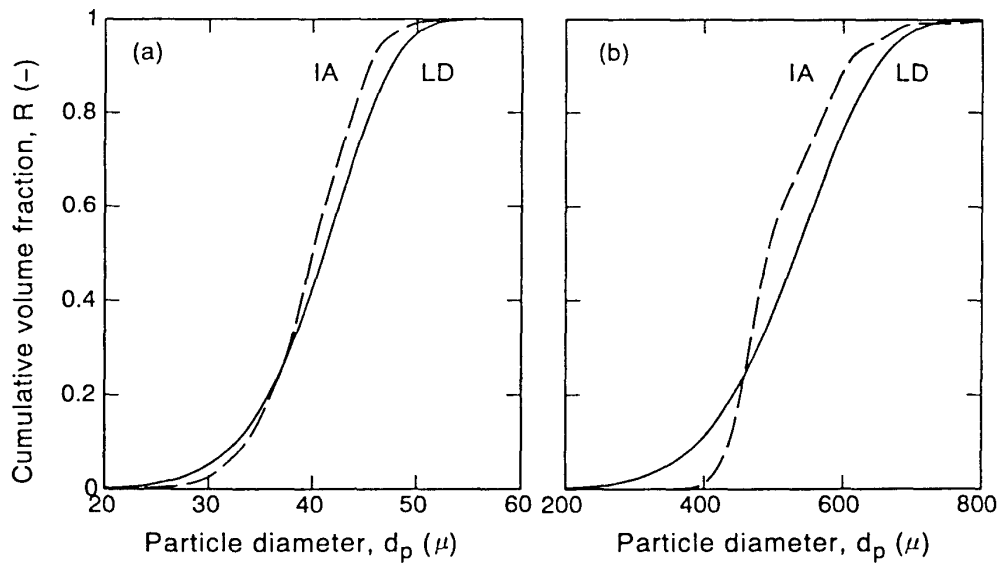


Fig. 2 Comparison of the size distributions of glass beads measured by means of the image analysis (IA) and the Fraunhofer diffraction (LD) methods.

ここで体積平均径 $D_{v,K}$ および分布幅 λ_K はそれぞれ

$$D_{v,K} = \frac{\sum_{j=1}^N n_j d_{pj}^4}{\sum_{j=1}^N n_j d_{pj}^3} \quad (18)$$

$$\lambda_K = \{D_{v,K}(90\%) - D_{v,K}(10\%)\} / D_{v,K}(50\%) \quad (19)$$

で与えられる。式(19)中、 n_j および d_{pj} はそれぞれ粒度クラス j に含まれる粒子数およびそのクラスの代表径である。脚号 $K = IA$ および LD はそれぞれ画像法および回折法によることを示し、式(18)の右辺は K に応じてそれぞれの測定法における n_j と d_{pj} を用いる。また式(19)右辺の $D_{v,K}(R)$ は積算容積分率 $R(\%)$ を与える体積平均径である。 λ_K は分布の中心で無次元化した分布幅を表わす。

以下では画像法による粒度分布を基準にとる。Fig. 3は $D_{v,IA}$ と Δ との関係を示す。 Δ はガラス試料の場合ほぼ5%以下の領域にあるが、ポリスチレン試料の場合にはほぼ10%以下に分散する。

Fig. 4は $D_{v,IA}$ と Λ との関係を示す。 Λ は $D_{v,IA} < 300\mu\text{m}$ においては1と1.5の間で一定値をとるが、 $D_{v,IA} > 300\mu\text{m}$ においては増大する。すなわち回折法は分布幅を過大評価する傾向があるだけでなく、 $300\mu\text{m}$ 以上ではその傾向が一層強くなる。

5. 2 非球形粒子

Photo. 1(c), (d)によれば、アルミニウムとガラスファイバ試料の非球形度は著しい。積算容積分率の例をFig. 5に示す。両曲線は積算分率40~60%において交差するが、分布幅は回折法の方がかなり大きい。

ϕ_1 の値は破碎酸化物粒子、凝固金属粒子およびガラスファイバの場合それぞれ140~160, 150~270 および 170~270 である。ガラスファイバの ϕ_2 は320~650 である。金属試料の場合 Δ はほぼ8%以下の範囲にあり、 ϕ_1 依存性は認められないが、ガラスファイバを含め酸化物試料の場合 Δ は ϕ_1 とともに増大する。Fig. 6は分布幅 λ_{IA} と Λ との関係を示す。球形粒子、破碎酸化

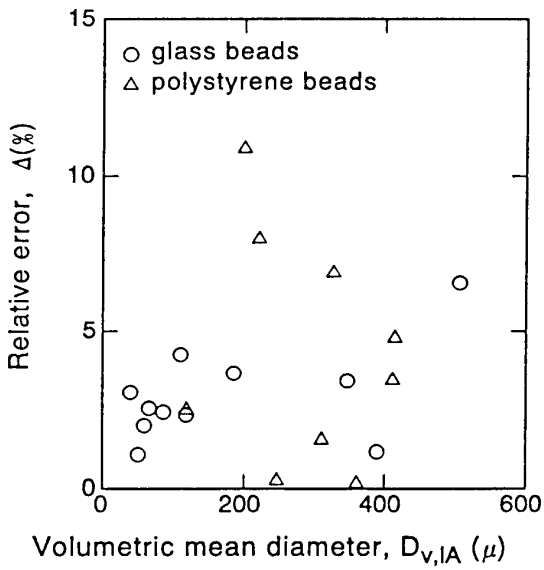


Fig. 3 Measurement error of mean diameter of particles.

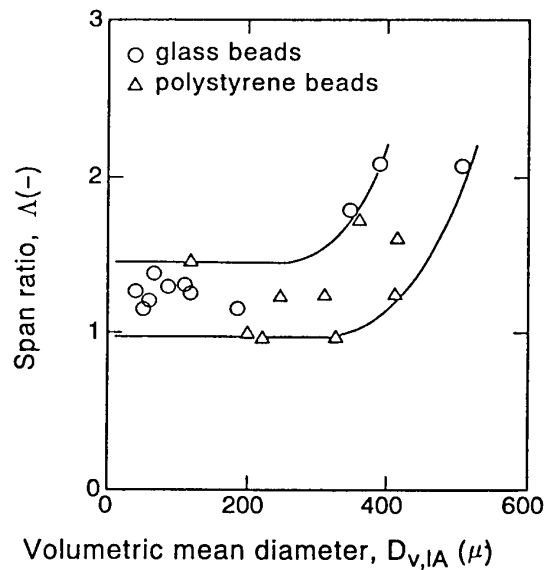


Fig. 4 Relation between span ratio and mean diameter of particles.

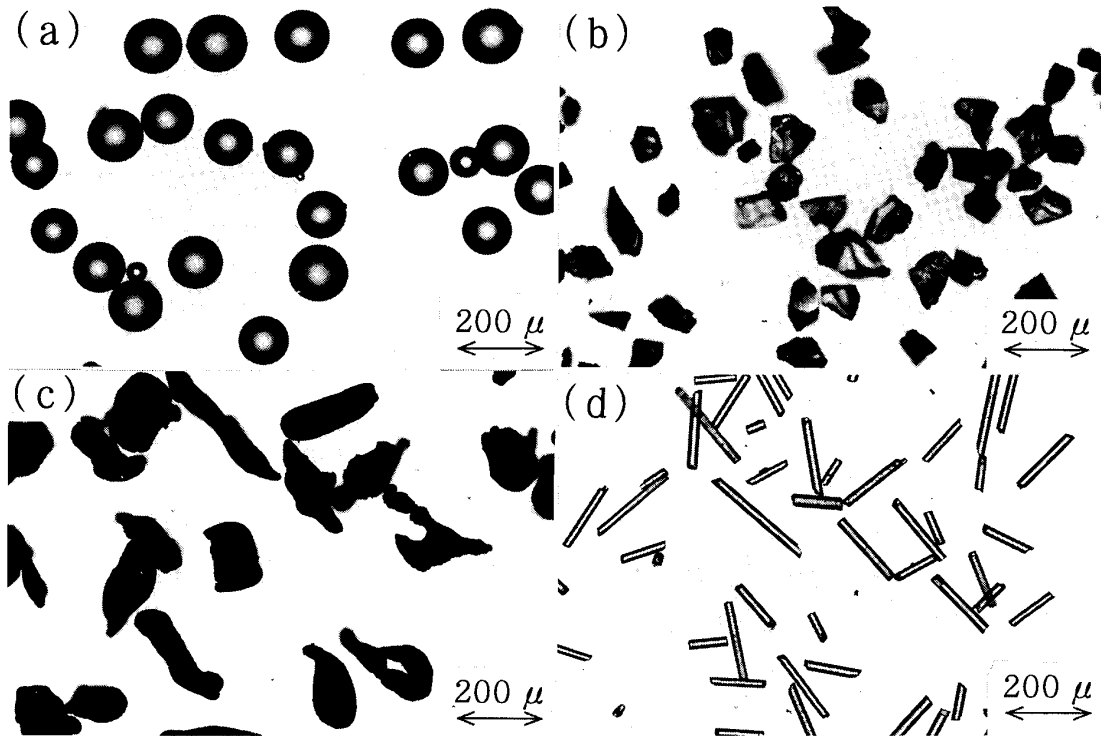


Photo. 1 Microphotographs of the sample particles; (a) glass beads, (b) ground alumina, (c) spray-solidified aluminum and (d) ground glass fibre.

物粒子, 凝固金属粒子およびグラスファイバはそれぞれ一つの曲線を形成する. これらの曲線は ϕ_1 が大きいほど上に位置する. 画像法による分布幅が小さいほど回折法による分布幅が過大に評価され, その程度は形状係数が大なるほど顕著になる.

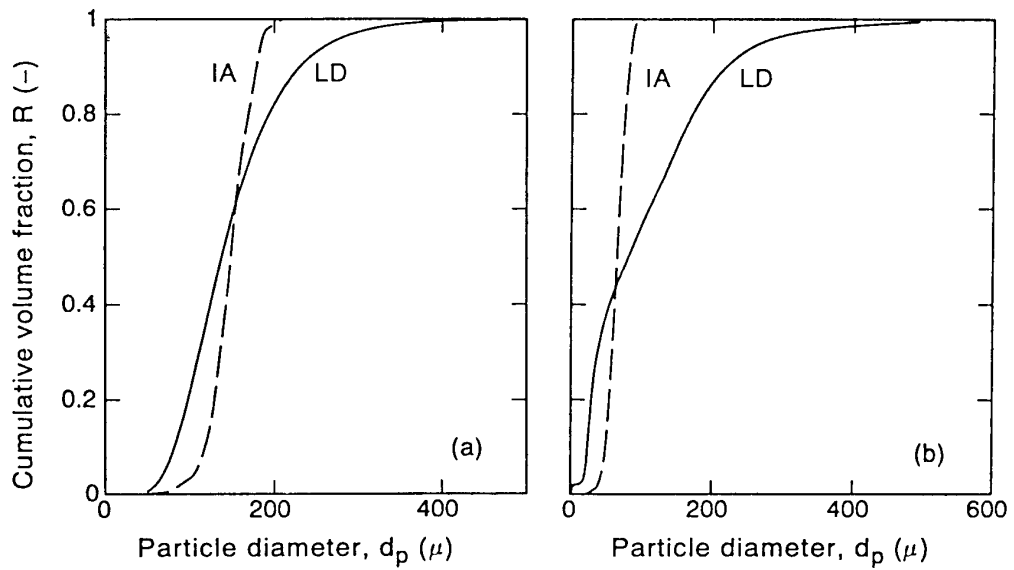


Fig. 5 Comparison of the size distributions of aluminum(a) and glass fibre(b) particles measured by means of IA and LD.

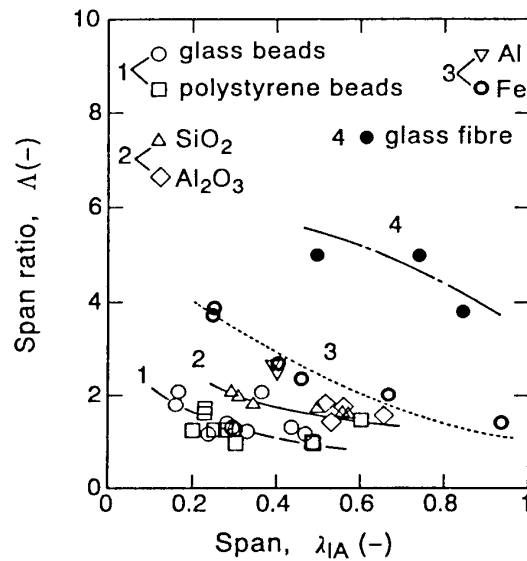


Fig. 6 Relation between span ratio and span of size distribution measured by means of IA.

6. 考 察

6. 1 球形粒子試料

球形粒子の場合の幾つかの基本的問題について考察する。

(1) レンズの焦点距離の選定

Fig. 2 に示したように、両測定法で分布が一致する場合 (a) としていない場合 (b) があるが、この場合の回折光測定値を Fig. 7 に示す。横軸 Ring No.1 は光軸上の光検出素子であり、番号が大なるほど半径が大の素子となる。エネルギーは最大値で規格化した。曲線 a, b はそれぞれ

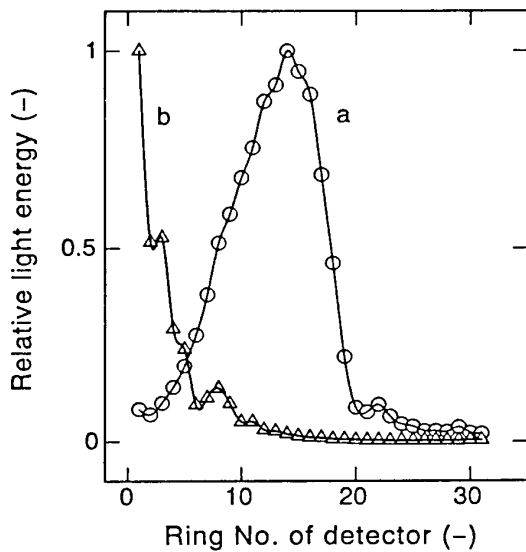


Fig. 7 Radial profiles of diffraction light energy.

Fig. 2(a) および (b) に対応している. 曲線 a の場合エネルギーピークが素子配列のほぼ中心に位置し, 回折角は粒度の最小から最大にわたって十分捕捉されているのに対して, 曲線 b の場合回折光の測定に有効なのは No.5 以下の素子で, ピークは素子 No.1 に位置する. このことは有効なデータ数を不十分にするだけにとどまらない. 粗い粒子からの回折光がすべてこの素子に集中するため, 粗粒子側の粒度分布の精度は著しく低下する. 平均粒度が大なるほど最大粒度が過大に評価され, その結果粒度幅が過大に評価される. Fig. 4 において約 $300\mu\text{m}$ 以上で粒度幅が過大評価になっているのはこのためと考えられる. また Fig. 3 においてガラス試料の場合粒度の増大とともに誤差が増大する傾向が見られるのも同様の効果のためと考えられる.

回折光の捕捉範囲が適切となるようレンズを選択することによりこれらの問題は解決できる.

(2) 分布関数

粒子が球であれば必ずしも正確な分布が得られるとは限らない. 現有の四つの分布関数で十分表し切れない分布の場合は誤差が大になる. ポリスチレン試料の場合球粒子ではあるが, 実際分布関数の当てはめ度はガラス試料より低かった. Fig. 3 においてポリスチレン試料の場合誤差が広く分散しているのはこのことと関連すると思われる. この問題は分布関数の改善により解決できると考えられる.

上記(1)と(2)の問題は分布幅が大きいほど顕在化するであろうことは容易に理解できるが, 分布幅の増大が誤差 Δ の主な誘因であると考えられる.

6. 2 非球形試料

(1) 円柱試料

酸化物や金属試料の形状係数 ϕ_1 は球試料とガラスファイバ試料の間にある. そこで円柱状試料の場合を考えよう. 半径 r_{pj} , 長さ $2b_j$ の円柱状試料に対しては, 面積 $(2r_{pj} \cdot 2b_j)$ の長方形スリットによる Fraunhofer 回折を適用する. 以下この場合を長方形粒子と呼ぶ. Fig. 8 に粒子の位置座標 (ξ, η, z) と回折像に関する座標 (x, y, z) を示す. 両座標は光軸 z 上で平行移動関係にある. 円で示した二つの面はともに光軸に垂直, また中央の一点鎖線は焦点距離 F のフーリエレンズの中心線である. (p, q, r) は回折光の単位ベクトル I_D の方向余弦である. I_D の (p, q) 平面への射影は

$$\omega = \sin\theta = (p^2 + q^2)^{1/2} \quad (20)$$

で与えられ, 回折光は (x, y) 平面上で半径 $s (= F\omega)$, 方位角 ϕ の位置に結像する. 円柱は $\xi - \eta$ 面内においてその中心線の ξ 軸からの傾き角度を δ (Fig. 8 は $\delta = 0$ の場合を示す) とすると, 回折光の強度 $I_j(\omega, \phi, \delta)$ は

$$I_j(\omega, \phi, \delta) = I_0 \{(\sin X_j) / X_j\}^2 \{(\sin Y_j) / Y_j\}^2 \quad (21)$$

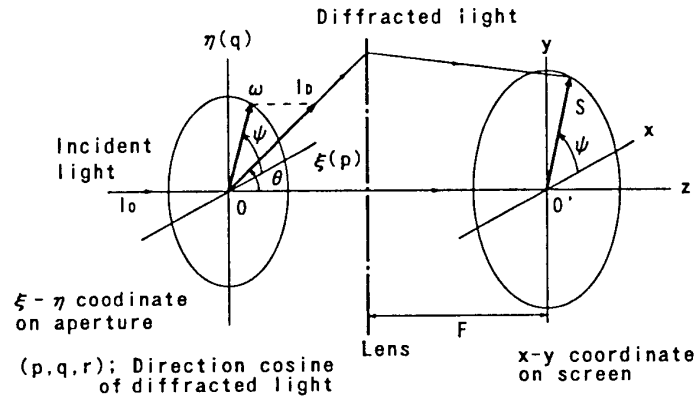


Fig. 8 Coordinates for diffraction by the rectangular particles.

により与えられる⁷⁾. ここで

$$X_j = k r_{pj} \omega \cos(\psi - \delta) \quad (22)$$

$$Y_j = k b_j \omega \sin(\psi - \delta) \quad (23)$$

1 個の長方形粒子の回折像は、球粒子の場合とは異なり斑点状になる⁷⁾. しかし多数の粒子が存在する場合その方位は無秩序に分布するので斑点状の像がつながって連続的な環状像になるであろう. 以下で円柱試料は $\xi-\eta$ 面内で二次元的にのみ回転すると考える. この場合 1 個の粒子による $\omega = 0$ から ω までの回折光の積算エネルギー $Q_j(\omega)$ は

$$Q_j(\omega) = \int_{\omega=0}^{\omega} \int_{\phi=0}^{2\pi} \int_{\delta=0}^{2\pi} I_j(\omega, \phi, \delta) \omega d\omega d\phi d\delta \quad (24)$$

である. さらに粒度 (円柱の長さ) クラスが M 個 ($j = 1, 2, \dots, M$) ある場合全エネルギー $Q(\omega)$ は

$$Q(\omega) = Q_j(\omega) f(r_{pj}, b_j) \Delta b_j \quad (25)$$

ここで $f(r_{pj}, b_j)$ は頻度分布関数, Δb_j は長さの刻み幅である. 光検出素子が位置する $x-y$ 平面上では半径 s の円内に $Q(\omega)$ に比例する回折光が投影される.

Fig. 5(b) に示されている画像法分布曲線 (IA) によれば粒度分布幅はかなり小さいにもかかわらず回折法分布の幅は著しく大きい. 回折法では円柱形粒子を球形として計算するためその結果は実際からかけ離れたものになると予想されるが, 回折光強度の半径分布を以下に比較する.

Fig. 5(b) における IA 積算分率曲線の横軸粒度は式(13)により算出した円相当径であるが, この場合の IA 積算分率曲線を

$$R = R_s(d_p) \quad (26)$$

と書く. この場合の分布を A と記す.

ガラスファイバ試料の場合式(13)の右辺の S_p は積 ($4r_p b$) に等しい. 本実験で用いたガラスファイバ試料の直径 $l_d (= 2r_p)$ は一定で $30\mu\text{m}$ である. 球相当径 d_p の代わりにファイバ長 l_b を用いる IA 積算容積分率曲線を

$$R = Rl(l_b) \quad (27)$$

と書く. l_b は横軸変換

$$l_b (= 2b) = (\pi/4) (R_s (R)^{-1})^2 / l_b \quad (28)$$

により求められる. この場合の分布を B と記す. これは直径一定で長さが多分散の円柱形粒子の実際の分布を表している.

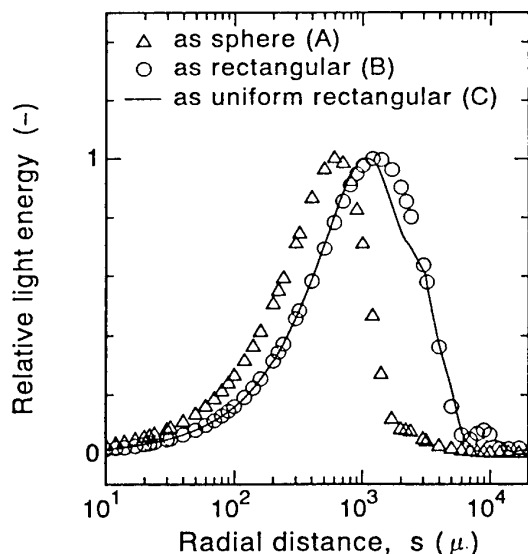


Fig. 9 Radial profiles of diffraction light energy on the x-y plane. F = 300mm

つぎに IA 積算容積分率曲線の $R = 50\%$ に対する l_b , すなわち平均長さを式(27)より求めると約 $100\mu\text{m}$ となるが, ファイバ長さがすべて $100\mu\text{m}$ 単分散である場合の分布を C とする.

分布 B および C を式(25)に適用して得たエネルギー分布を Fig. 9 に示した. B と C が細部を除きよく一致するが, このことはファイバ長さの分布が極めて狭いこと (Fig. 5(b) の IA 曲線) と符合する. 分布 A を式(12)の右边に適用して, すなわち粒子を球と見なして求めたエネルギー分布を Δ で示す. 分布は半径が小さい, すなわち粒径が大なる方にずれており, その程度は粒径の小さいほど顕著である.

以上のように円柱試料は長方形粒子として解析することにより粒度評価が著しく改善されることが明らかになった. しかし回折光測定値から粒度分布を求めるための粒度決定原理の導入が今後の課題とし残っている.

(2) 不規則形状試料

不規則形状試料の測定粒度分布の特性は Fig. 6 から明らかなように, 球および円柱試料の間にある. 不規則形状試料については球と円柱の間, たとえば楕円体を適用するのが妥当で, その際粒子の三次元的回転を考慮すべきであろう.

7. 結 言

球状試料の測定パラメータの適正な設定について述べるとともに, 以下のことを明らかにした.

- (1) 一様性の高い粒度の球試料に対しては新たな粒度決定原理の導入を要する.
- (2) 破碎試料あるいは金属粒子のような不規則形状粒子の粒度分布特性は球と円柱試料の間にある.
- (3) 円柱状粒子は長方形粒子で代表出来る.
- (4) 不規則形状粒子は球と円柱状粒子の間の形状係数をもつ粒子, たとえば楕円体で近似できる可能性が大である.
- (5) 長方形あるいは楕円粒子に対する粒度決定原理の導入が必要である.

文 献

- 1) 粉体工学研究会編：粉体粒度測定法，(1965)，p.2. 養賢社.
- 2) 日本粉体工業協会編：粉粒体計測ハンドブック，(1981)，p.239. 日刊工業新聞社.
- 3) 神保元二：化学工学，**51**(1987)，p.118.
- 4) 矢野省三：島津評論，**48**(1991)，p.1
- 5) H.C. van de Hulst: *Light scattering by small particles*, (1957), p.63, Dover Publications(New York).
- 6) A.L.Fymat: Appl. Opt., **17**(1978), p.1675
- 7) M.Born and E.Wolf: *Principles of optics*, (1980), p.633, Pergamon Press
- 8) W.J.Wiscombe: Appl. Opt., **19**(1980), p.1505
- 9) L.P.Bayvel and A.R.Jones: *Electromagnetic scattering and its applications*, (1981), p.61, Applied Science Publishers(London).
- 10) L.G.Dodge: Appl. Opt., **23**(1984), p.2415
- 11) U.Tuzun and F.A.Farhdpour: Part. Charact., **2**(1985), p.104
- 12) J.H.Chin, C.M.Sliepcevich and M.Tribus: J. Chem. Phys., **59**(1955), p.841.
- 13) J.H.Chin, C.M.Sliepcevich and M.Tribus: J. Chem. Phys., **59**(1955), p.845.
- 14) J.Swithenbank, J.M.Beer, D.S.Taylor, D.Abbot and G.C.McGreath: Prog. Astronaut. Aeronaut., **53**(1977), p.421.
- 15) A.L.Fymat: Appl. Opt., **17**(1978), p.1677
- 16) A.L.Fymat and K.D.Mease: Appl. Opt., **20**(1981), p.194
- 17) M.Heuer and K.Leschonski: Part. Charact., **2**(1985), p.7
- 18) L.P.Bayvel, J.Knight and G.Robertson: Part. Charact., **4**(1987), p.49
- 19) E.D.Hirleman: Part. Charact., **4**(1987), p.128
- 20) D.Kouzelis, S.M.Candel, E.Eposito and S.Zikikout: Part. Charact., **4**(1987), p.151
- 21) H.S.Dhadwal: Part. Part. Syst. Charact., **6**(1989), p.28
- 22) 山内照夫, 大山宣茂：日本機械学会論文集 (B), **48**(1980), p.707
- 23) 中山満茂, 荒木隆久, 高橋忠司：粉体工学会誌, **21**(1984), p.691
- 24) E. D. Hirleman: Part. Part. Syst. Charact., **5**(19887), p.57
- 25) J. Urlich and M. Stepanski: Part. Part. Syst. Charact., **7**(1990), p.25
- 26) A. C. Holland and G. Gagne: Appl. Opt., **9**(1970), p.1113
- 27) S. Asano and G. Yamamoto: Appl. Opt., **14**(1975), p.29
- 28) S. Asano and G. Yamamoto: Appl. Opt., **19**(1980), p.962
- 29) D. W. Schueman, R.T.Wang, B. A. S. Gustafson and R. W. Schaefer: Appl. Opt., **20**(1981), p.4039
- 30) J. P. K. Seville J. R. Coury, M. Ghadiri and R. Clift: Part. Charact., **1**(1984), p.45
- 31) A. Mugnai and W.J.Wiscombe: Appl. Opt., **25**(1986), p.1235
- 32) A. R. Jones: Part. Charact., **4**(1987), p.123
- 33) J. C. Ravey: Part. Charact., **4**(1987), p.134
- 34) *Master Sizer, Instruction Manual*, (1988), Malvern Instrument Ltd.