

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第4952227号
(P4952227)

(45) 発行日 平成24年6月13日(2012.6.13)

(24) 登録日 平成24年3月23日(2012.3.23)

(51) Int.Cl.		F I			
B 0 7 B	13/04	(2006.01)	B 0 7 B	13/04	Z
B 8 2 B	3/00	(2006.01)	B 8 2 B	3/00	
B 0 7 B	13/16	(2006.01)	B 0 7 B	13/16	B

請求項の数 7 (全 16 頁)

(21) 出願番号	特願2006-338893 (P2006-338893)	(73) 特許権者	000005223 富士通株式会社 神奈川県川崎市中原区上小田中4丁目1番1号
(22) 出願日	平成18年12月15日(2006.12.15)	(74) 代理人	100090273 弁理士 園分 孝悦
(65) 公開番号	特開2007-203282 (P2007-203282A)	(72) 発明者	佐藤 信太郎 神奈川県川崎市中原区上小田中4丁目1番1号 富士通株式会社内
(43) 公開日	平成19年8月16日(2007.8.16)	審査官	谷水 浩一
審査請求日	平成21年6月11日(2009.6.11)		
(31) 優先権主張番号	特願2006-1166 (P2006-1166)		
(32) 優先日	平成18年1月6日(2006.1.6)		
(33) 優先権主張国	日本国(JP)		

(出願人による申告)平成17年度、独立行政法人新エネルギー・産業技術総合開発機構「ナノカーボン応用製品創製プロジェクト」委託研究、産業再生法第30条の適用を受ける特許出願

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 微粒子サイズ選別装置

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

微粒子の排気口が設けられた微粒子サイズ選別室と、
選別対象となる微粒子を含むキャリアガスを前記微粒子サイズ選別室内へ放出するノズルを有する微粒子導入手段と、
前記微粒子サイズ選別室内に設けられており、前記ノズルから放出された微粒子を選択的に捕集する微粒子捕集手段と

を含み、

前記微粒子導入手段は、前記キャリアガスを前記微粒子サイズ選別室へ導入する微粒子導入管を有しており、

前記ノズルは、サイズの異なる口径の複数の放出口を有し、選択された前記放出口が前記微粒子導入管と接続されるように、前記微粒子導入管と別体に配設されており、

前記ノズルから放出された微粒子のうち、前記微粒子捕集手段に捕集されないことでサイズが揃えられた微粒子を、前記排気口から放出することを特徴とする微粒子サイズ選別装置。

【請求項2】

前記微粒子導入手段は、前記ノズルとは別体に前記キャリアガスのガス排出口を有するとともに、前記ガス排出口の上流に前記キャリアガスの流量を調節するバルブを有しており、前記バルブの調節により前記ガス排出口及び前記ノズルにおける前記キャリアガスの流量をそれぞれ制御することを特徴とする請求項1に記載の微粒子サイズ選別装置。

【請求項 3】

前記微粒子捕集手段は、表面に垂直な方向の回転軸を有し、所定速度で回転自在とされた円板状部材であり、上下左右に移動自在に配設されていることを特徴とする請求項 1 又は 2 に記載の微粒子サイズ選別装置。

【請求項 4】

前記微粒子捕集手段は、帯状のシート部材であることを特徴とする請求項 1 又は 2 に記載の微粒子サイズ選別装置。

【請求項 5】

前記微粒子捕集手段は、前記ノズルから放出された微粒子の捕集位置が変わるように、前記捕集位置が長手方向に時間経過と共に移動自在とされていることを特徴とする請求項 4 に記載の微粒子サイズ選別装置。

10

【請求項 6】

前記微粒子捕集手段は、表面にポラス構造を有することを特徴とする請求項 1 ~ 5 のいずれか 1 項に記載の微粒子サイズ選別装置。

【請求項 7】

前記微粒子捕集手段は、表面にカーボンナノチューブが設けられていることを特徴とする請求項 1 ~ 6 のいずれか 1 項に記載の微粒子サイズ選別装置。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

20

本発明は、発光材料の分野、或いは、化粧品分野等、その他多くの分野で用いられようとしているナノ粒子のサイズを選別する微粒子サイズ選別装置及び方法に関する。

【背景技術】

【0002】

一般に、ナノメートルオーダーのサイズの微粒子、いわゆるナノ粒子は、サイズ効果によって現れる特異な性質、或いは、大きな比表面積を持つことから、近年、多くの分野で応用を目指した研究が盛んに行われている。そのような応用の例としては、発光材料としてのシリコンナノ粒子の利用（例えば、非特許文献 1 を参照。）、或いは、化粧品としての酸化チタンナノ粒子の利用等が知られていて、何れの応用においても、ナノ粒子のサイズを制御するということが非常に重要である。

30

【0003】

【特許文献 1】特開 2005 - 22886 号公報

【非特許文献 1】T.Oriiら Appl.Phys. Lett.83(2003)3395.

【非特許文献 2】Shouheng Sunら Science 287, 1989(2000)

【非特許文献 3】P.A.Baron, K.Willeke, Aerosol Measurements: Principles, Techniques, and Applications, 2nd ed. Wiley, New York, 2001

【非特許文献 4】鈴木ら, APPLIED PHYSICS LETTER, VOL. 78, p. 2043, 2001年

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0004】

40

ナノ粒子の生成方法としては、主として液相系での方法と気相系での方法とに分けることができ、液相系での反応を利用する方法（例えば、非特許文献 2 を参照。）は、比較的粒子サイズが揃う、という利点はあるものの、界面活性剤や有機溶媒等を使用することから、本発明者が着目している電気的な応用に関しては不純物の存在が懸念される。

【0005】

また、気相系での反応を利用する方法、例えば、レーザブレーション法やプラズマ CVD (Chemical Vapor Deposition) 法等では、一般に清浄な微粒子が得られるものの、均一なサイズの微粒子を得ることは容易ではない。このような微粒子のサイズを選別するため、微分式静電分級器 (Differential Mobility Analyzer : DMA) がしばしば用いられる。

50

【0006】

DMAは、微粒子のガス中に於ける電気移動度を利用し、微粒子をサイズ選別する装置であって、エアロゾルの分野で頻繁に用いられている。DMAを用いてナノ粒子を選別した場合、粒子径を良く揃えることができるため、本出願人の付属研究機関においても多用されている（例えば、特許文献1を参照。）。

【0007】

しかしながら、そのDMAも万全なものではなく、使用分野によっては致命的ともいうべき欠点も存在している。その欠点は、特に、ナノ粒子の選別にDMAを用いた場合、選別で得られる微粒子の量（スループット）が非常に少ない、ということである。

【0008】

通常、DMAによるサイズ選別では、微粒子が荷電されていることが必要であるが、ナノ粒子、特に10nm以下のナノ粒子を高効率で荷電することは困難であることから、前記したような問題が起こってしまう。因みに、例えば10nm以下のサイズの微粒子がDMAによりサイズ選別されて得られる確率は、実際に存在する量の高々2～3%である。これは、サイズが揃った微粒子を商用ベースで実用に供する場合には、非常に大きな問題となる。

本発明は、上記の課題に鑑みてなされたものであり、ナノ粒子（主として直径10nm以下）と呼ばれる微粒子を高スループットで確実且つ容易にサイズ選別することを可能とする微粒子サイズ選別装置及び方法を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0009】

本発明の微粒子サイズ選別装置は、微粒子の排気口が設けられた微粒子サイズ選別室と、選別対象となる微粒子を含むキャリアガスを前記微粒子サイズ選別室内へ放出するノズルを有する微粒子導入手段と、前記微粒子サイズ選別室内に設けられており、前記ノズルから放出された微粒子を選択的に捕集する微粒子捕集手段とを含み、前記微粒子導入手段は、前記キャリアガスを前記微粒子サイズ選別室へ導入する微粒子導入管を有しており、前記ノズルは、サイズの異なる口径の複数の放出口を有し、選択された前記放出口が前記微粒子導入管と接続されるように、前記微粒子導入管と別体に配設されており、前記ノズルから放出された微粒子のうち、前記微粒子捕集手段に捕集されないことでサイズが揃えられた微粒子を、前記排気口から放出する。

【発明の効果】

【0011】

本発明によれば、ナノ粒子と呼ばれる微粒子を高スループットで確実且つ容易にサイズ選別することが可能となり、サイズが揃った微粒子を大量に実用に供することができる。本発明の微粒子サイズ選別装置及び方法は、発光材料の電気的分野や化粧品材料等の分野において、供給不足を懸念することなく用いることができる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0012】

本発明では、高スループットで微粒子のサイズ選別を行うため、微粒子の荷電状態に依存するのではなく、微粒子の慣性を利用する方法を用いている。具体的には、いわゆるインパクトを低圧下において利用し、微粒子のサイズ選別を実行する。

【0013】

図1は、本発明のインパクトの原理を理解するために必要な要部説明図である。

インパクトは、微粒子の排気口4が設けられた微粒子サイズ選別室1と、選別対象となる微粒子を含むキャリアガスを微粒子サイズ選別室1内へ放出するノズル2と、微粒子サイズ選別室1内に設けられており、ノズル2から放出された微粒子を選択的に捕集する微粒子捕集手段である補集板3とを備えて構成されている。

【0014】

図示のように、このインパクトは、ノズル2の正面に補集板（邪魔板）3が配置された構造とされており、ガスと共に運ばれてきた微粒子は、サイズが或程度以上のもの、従っ

10

20

30

40

50

て、慣性が或程度以上のものはガスの流れに追従することができず、ノズル2の下流に配置された捕集板3に衝突して捕集される。ここで、捕集されるか否かは、通常、無次元のストークス数と呼ばれるパラメータ（微粒子サイズ、ノズル2の内径、ガス速度等の関数）で記述される（非特許文献2）。このインパクトでは、捕集板3に捕集されないことでサイズが揃えられた（同一サイズの）微粒子が排気口4から放出され、収集される。

【0015】

インパクトは、エアロゾルの分野で、主としてミクロンサイズからサブミクロンサイズの微粒子の捕集に用いられている。本発明では、このようなインパクトをナノ粒子のサイズ選別に応用するために様々な改良を施している。

【0016】

図2は、本実施形態による微粒子サイズ選別装置を示す要部説明図である。ここで、図1において用いた符号と同符号については、同じ部分を示すか或いは同じ意味を持つものとする。

【0017】

この微粒子サイズ選別装置は、微粒子サイズ選別室1と、ノズル2を有する微粒子導入部10と、捕集板3とを備えて構成されている。

微粒子導入部10は、ノズル2に加え、微粒子が含まれるキャリアガスを輸送する輸送管11と、ノズル2と別体に設けられてなるキャリアガスのガス排出口13と、ガス排出口13の上流に設けられており、キャリアガスの流量を調節するコンダクタンス調整用バルブ12とを備えて構成されている。ここで、14は、選別されて排気口4から放出される微粒子を示している。

【0018】

捕集板3は、表面がポラス構造（多孔性構造）とされており、表面に垂直な方向の回転軸を有し、所定速度で回転自在とされた円板状部材であり、上下左右に移動（スライド）自在に配設されている。更に、低圧或いは真空中で交換することができる構造になっている。これについては後に詳細に説明する。

【0019】

本実施形態においては、サイズ選別された微粒子として、インパクト下流に排出されたものを利用する。通常、インパクトは、あるサイズ以上の微粒子を捕集する作用をするため、下流の微粒子としては、そのサイズに満たない微粒子全てを含み、サイズの分布は一般的に広がる。

【0020】

ところで、ナノサイズ、特に10nm以下のナノ粒子は、安定に存在を継続することはできず、時間と共に凝集等で小さいサイズのものが減少していくため、粒子サイズには下限が存在することになる。その結果、大きなサイズのナノ粒子をインパクトで取り除くだけで、サイズ選別装置としては十分に機能することになる。

【0021】

本発明では、上記小さいサイズのナノ粒子の減少度合いを制御することで、ナノ粒子のサイズ下限も積極的に制御する。

【0022】

本発明の微粒子サイズ選別装置に採り入れるため、インパクトについて、ナノ粒子の選別を行なう上で種々な改善を施しており、それ等をまとめると以下の通りである。

【0023】

(1) 低圧の利用：

10nm以下のナノ粒子の慣性を利用して選別するため、微粒子のサイズ選別時に微粒子サイズ選別室1の内部を低圧、例えば $2.67 \times 10^3 \text{ Pa}$ (20Torr)以下に維持することが好適である。これは例えば、微粒子サイズ選別室1の内部を真空ポンプ等で真空引きし、 $2.67 \times 10^3 \text{ Pa}$ 以下の所定値に調節すれば良い。

【0024】

(2) ヘリウムガスの利用：

10

20

30

40

50

制御性良くインパクトを利用するためには、音速以下のガス速度でインパクトを利用する必要がある。一般に、ガス速度が速いほど小さいナノ粒子を選別し易いので、不活性で音速が大きいヘリウムガスをキャリアガスとして使用する。

【0025】

(3) ノズル2及び捕集板3の交換機構：

上記のストローク数を制御するためには、ノズル2の直径を変えることも必要であるが、低圧下であるため、設定された低圧(真空)状態を乱すことなく、ノズル2を交換することができる機構を設けた。また、捕集板3に微粒子が過度に堆積すると分級性能が低下するため、捕集板3をノズル2に対してスキャンする機構、及び捕集板3を真空中で交換することができる機構を設けた。

10

【0026】

(4) ノズル2の上流に、コンダクタンス調整可能なガス排気口13の設置：

ノズル上流の排気口13は、通常、コンダクタンス調整用バルブ12を通して直接ポンプ等に接続され、ガスと共に運ばれた微粒子は廃棄される。また、排気口13はポンプでなく、別の堆積室に接続されても良い。排気口13からのガス排気量と、ノズル2へのガス流量を制御することにより、輸送管11中での拡散損失・凝集を利用して小さいサイズの粒子を取り除いたり、或いは、その逆に小さい粒子をより多くノズル2の下流に導いたりすることができる。なお、この詳細は実施例として後に詳述する。

【0027】

(5) 補集板3に新材料を適用：

20

従来、インパクトにおいて、補集板に衝突した微粒子が反跳するのを防止するため、補集板の表面にシリコンオイルが塗布される(例えば、非特許文献3を参照)。しかしながら、ナノ粒子を電気的応用に供する場合など、清浄度が要求される場合には、シリコンオイルを塗布した補集板等は使用することができない。これを解決するため、本発明では、補集板3の表面に工夫を加えた。具体的には、アルミニウムの陽極酸化板など、複雑な多孔性構造の表面を持つものを利用している。その入り組んだ構造でナノ粒子の反跳を防止することができる。また、カーボンナノチューブのようなナノ構造を基板上に成長、或いは、塗布したのもも有効である。

【実施例】

【0028】

30

本発明では、上述したような種々の改善を施したことにより、インパクトをナノ粒子のサイズ選別に有効に利用することが可能となった。以下、諸実施例により本発明の詳細を説明する。

【0029】

(実施例1)

図3は、実施例1による微粒子サイズ選別装置を表す要部説明図である。

図示のように、21は微粒子生成室、22はコバルトのターゲット、23はNd:YAGからなるパルスレーザ、24は微粒子を含むキャリアガスの輸送管、25はコンダクタンス調整用バルブ、26はコンダクタンス調整用ガス排気口、27は微粒子サイズ選別室、28はノズル、29は捕集板、31は排気口、32は微粒子堆積室、33は基板をそれぞれ示している。なお、Nd:YAGレーザ23の発振波長は532nm、出力は4W、繰り返し周波数は20Hz、また、ノズル28の先端開口径は3.25mm、更に、微粒子堆積室32内の圧力は $1.33 \times 10^{-3} \text{ Pa}$ (10^{-5} Torr)に調節されている。

40

【0030】

本実施例においては、コバルトからなるターゲット22をレーザブレーションすることによりコバルト微粒子を発生させる。即ち、圧力が $6.67 \times 10^2 \text{ Pa} \sim 1.33 \times 10^3$ ($5 \text{ Torr} \sim 10 \text{ Torr}$)に調整された微粒子生成室21内に配置されたコバルトからなるターゲット22を、パルスレーザ23で発生させたレーザビームによって叩いてコバルト蒸気を発生させる。

【0031】

50

この蒸気は、流量が0.5 slpm ~ 1 slpm(スタンダードリッター毎分)のHeからなるキャリアガスにより冷却されて微粒子を生成する。その微粒子は、長さが約1mの輸送管24を通して、ノズル28及び捕集板29を主要素とするインパクト部に運ばれる。

【0032】

ノズル28の上流には、コンダクタンス調整可能なバルブ25を介してコンダクタンス調整用ガス排気口26が設けられ、その先は排気ポンプに接続されている。本実施例では、バルブ25を調節することにより、排気口26に0~0.5 slpmのヘリウムが流れ、残りのヘリウムは、微粒子と共にノズル28に導かれる。ここで、排気口26からのヘリウムの流量を0とすることは、微粒子導入部に言わばバルブ25及び排気口26を設けず、輸送管24に導入された微粒子を含むヘリウムの放出口がノズル28のみである構成と同等である。この場合、本実施例では、バルブ25を調節して排気口26からのヘリウム流量を0としても良いし、微粒子導入部にバルブ25及び排気口26を設けない構成としても良い。なお、図3では輸送管とノズルが垂直に、輸送管とコンダクタンス調整用ガス排気口が水平に配置されているが、位置関係はこれに限定されるものではない。

10

【0033】

図4は、実施例1におけるインパクトの詳細を表す要部斜断面図である。ここで、図3において用いた符号と同符号のものについては、同じ部分を示すか或いは同じ意味を持つものとする。

図4において、41は低圧又は真空中に維持される微粒子サイズ選別室、42は捕集板29のホルダー、43は先端開口径を異にするノズルの複数の放出口28を有するノズルプレート、44は放出口28とは別体とされ、微粒子を含むキャリアガスを送入するためのチューブ、45はフランジ、46はO-リング、47はノズルプレート43の駆動機構、48は捕集板29の駆動機構をそれぞれ示している。

20

【0034】

図示のノズルプレート43は、例えば厚み約10mmの板に先端開口径を異にするノズルの複数の放出口28が設けられており、このノズルプレート43を上下に移動することで複数の放出口28の何れかを選択することが可能である。

【0035】

本実施例では、先端開口が4mm、3.6mm、3.25mm、3mmである複数の放出口28をノズルプレート43に彫り込んであるが、後述する例では3.25mmのものを用いることが多い。

30

【0036】

ノズルプレート43を駆動することで、例えば、開口径が3.25mmの放出口28を選択し、その放出口28をチューブ44におけるO-リング46をもつフランジ45に押し付けることでチューブ44とノズル28とが連結固定される。この作業は、低圧乃至真空中を維持している微粒子サイズ選別室41内において、その低圧の真空状態を破ることなく実施することができる。

【0037】

ノズル28の下流には、ノズル内径の約2倍離れた位置に捕集板29が配置され、この捕集板29は、図4に見られるように、駆動機構48により、ノズル28に垂直な方向、及び、円周方向に自由にスキャンすることができる。

40

【0038】

図示の例では、捕集板29には、直径10cmの円板を用い、縦方向、及び、円周方向にスキャン可能であり、その際、縦方向速度：1mm/秒、回転速度：2rpmであり、また、この場合、捕集板29の表面(微粒子が捕集される面)は、陽極酸化される例えば膜厚100nm程度のアルミニウム酸化膜で覆われている。

【0039】

図5は、陽極酸化されたアルミニウム酸化膜で覆われた捕集板の表面のSEM(Scanning Electron Microscope)像を示している。

50

捕集板 29 の表面に形成されたアルミニウム酸化膜 61 は、例えば図 6 に示すように、ポーラス構造になっており、各孔 62 が約 50 nm ピッチで直径 20 nm ~ 25 nm 程度、深さ 100 nm 程度に形成されている。なお、この孔サイズは可変であり、この値に限定されるものではない。

【0040】

また、アルミニウム酸化膜の代わりに、捕集板 29 の表面にカーボンナノチューブを形成しても良い。図 7 は、捕集板 29 の表面にカーボンナノチューブが形成された様子を示す要部斜面図である。

ここでは、捕集板 29 の表面における微粒子の反跳を抑止するため、当該表面にカーボンナノチューブ 49 を形成した。捕集板 29 の表面には、カーボンナノチューブ 49 が捕集板 29 の表面の上方へ配向成長されている。

10

【0041】

この場合、カーボンナノチューブ 49 の直径、長さ、本数などについて、特に限定する必要はないのであるが、例えば、直径 10 nm 程度、長さ 5000 nm 程度のカーボンナノチューブを 1 cm² 当たりで 10¹⁰ 本程度成長したものをを用いたところ、捕集板として極めて有効であることが判っている。

【0042】

なお、図 7 では、捕集板 29 の表面の上方に配向したカーボンナノチューブ 49 を示したが、チューブ 49 が倒れて絡み合っている図 8 のような構造も有効である。

また、カーボンナノチューブに限らず、これを形成する代わりに、高アスペクト比構造を持つシリコン、酸化亜鉛等のいわゆるナノワイヤを捕集板 29 の表面に成長、或いは載置した構成も、同様に有効である。この場合も直径、長さ、本数等は限定されないが、例えば、直径 15 nm 程度、長さ 1000 nm 程度のナノワイヤを 1 cm² 当たりで 5 × 10⁹ 本程度成長したものが有効であることが確認されている。

20

【0043】

また、捕集板における基板としては Si ウェーハを利用することができる。この場合、捕集板は、通常の半導体プロセスにおけるウェーハの搬送と同様にロードロック等を介して真空或いは低圧の下で交換することが可能であり、捕集板のホルダーへの固定にはフック状の留め具を利用したり、或いは、静電チャックを利用することもできる。

【0044】

ところで、放出口 28 に流れる微粒子を含むキャリアガスの流量が 500 sccm で、圧力が 4.79 × 10² Pa (3.6 Torr) である場合には、捕集板 29 に約 1.5 nm 以上の微粒子が堆積される、一方、捕集されなかった微粒子は、排気口 31 を通って堆積室 32 に導かれる。この例では、堆積室 32 は差動排気により 1.33 × 10⁻³ Pa (10⁻⁵ Torr) 程度に保たれていて、微粒子が慣性で確実に基板 33 上に堆積できるようになっている (例えば、特許文献 1 を参照。)。

30

【0045】

本実施例においては、コンダクタンス調整用ガス排気口 26 の存在が重要である。ここで、状況を簡略化するため、コンダクタンス調整用ガス排気口 26 を第 1 排気口とし、また、排気口 31 を第 2 排気口とする。この場合、この第 1 排気口及び第 2 排気口に流れるヘリウムガスの量により、基板 33 に堆積される微粒子量やサイズ分布がどのように変化するかについて以下で説明する。なお、ここで、第 1 排気口及び第 2 排気口に流れるガスの量、微粒子のサイズ、微粒子数については、図 9 の特性図を参照されると良い。

40

【0046】

(1) 第 1 排気口 : 0 s l p m、第 2 排気口 : 0.5 s l p m の場合

このとき、微粒子生成室の圧力が 6.53 × 10² Pa (4.9 Torr)、インパクト部の圧力が 5.07 × 10² Pa (3.8 Torr) となる。この場合、インパクトには、約 1.5 nm 以上のナノ粒子が捕集される (この場合、カットサイズ 1.5 nm とする。)。その結果、インパクト下流で得られる微粒子のサイズ分布は図 9 に見られる通りとなる。ここで、総流量は 0.5 s l p m と比較的少なめであることから、生成室とインパクトの

50

間の輸送管で多くの特に小さめのナノ粒子が壁面に付着して失われる。実際、ナノ粒子の輸送管の通過量は、流量に指数関数的に依存する。その結果、得られるナノ粒子の量は比較的少ないものになる。

【0047】

(2) 第1排気口：0 s l p m、第2排気口：1 s l p mの場合

この場合、流量の増加から、微粒子生成室の圧力が $1.09 \times 10^3 \text{ Pa}$ (8.2 Torr)、インパクト部の圧力が $9.2 \times 10^2 \text{ Pa}$ (6.9 Torr) となる。ここで、ノズルの内径を変えないと、圧力の上昇からカットサイズは上昇して、2.5 nm になる。この時のナノ粒子の分布は図9に示されている通りである。この場合、流量が大きいため、輸送管でのナノ粒子の損失は比較的少ない筈である。実際、比較的大きめのナノ粒子量は増加

10

【0048】

生成室の圧力を低下させることができればこの問題は解決するが、ノズルにより排気量が制限を受けていることから、簡単に解決できる訳ではない。この結果は、小さいナノ粒子を得ることが目的の場合には良い結果とは言えないが、逆に言うならば、小さいナノ粒子を減らしてサイズ分布を狭くできた、ということであり、別な面における効果が得られることを意味する。

【0049】

(3) 第1排気口：0.5 s l p m、第2排気口：0.5 s l p mの場合

小さめのナノ粒子、即ち、1 nm ~ 2 nm のナノ粒子を大量に得るためには、総流量を 1 s l p m とし、そのうち 0.5 s l p m を第1排気口から廃棄すれば良い。この場合、1 s l p m なる総流量でありながら、ノズルのコンダクタンスに影響されないノズル上流で 0.5 s l p m が排気されることから、生成室の圧力は $7.46 \times 10^2 \text{ Pa}$ (5.6 Torr) 程度であって、さほどの圧力上昇ではない。

20

【0050】

それ故、比較的小さい微粒子が生成され、さらに輸送管を流れる流量は 1 s l p m であるから、損失も上記(1)の場合に比較すると少なくなり、通過量は 1.5 nm の場合 10 倍以上になる。

30

その結果、第1排気口で半分のナノ粒子を捨てたととしても、結局、より多くの小さめの粒子が得られる。この場合、インパクト部の圧力は上記(1)と同じでカットサイズも変わらない。しかしながら、インパクト下流で得られるナノ粒子のサイズ分布は、図9に見られる通り、より小さいものが大量に得られることになる。

【0051】

以上説明したように、インパクトのノズル上流に新たな排気口を設ける簡単な構成によって、ナノ粒子のサイズ分布や量を従来技術に比較して良好に制御できることが理解されよう。また、サイズ選別後のナノ粒子量は D M A を使用した場合の 100 倍程度にもなり、ナノ粒子の応用を進める上で大変好ましい結果が得られた。

【0052】

ここで、実施例1による微粒子サイズ選別装置により、ナノ粒子を選別した結果を、比較例との比較に基づき説明する。

40

図10(a)は、レーザーアブレーションのみで分級手段がない場合における微粒子の直径分布を示す比較例であり、非特許文献4で紹介されているものである。このように、一般に分級手段がない場合、微粒子サイズの幾何標準偏差は、1.6 ~ 2.0 程度であることが多い。ここで、幾何標準偏差が例えば 1.6 とは、標準偏差が約 60% とほぼ同義である。

【0053】

図10(b)は、本発明による微粒子サイズ選別装置(例えば、実施例1の図3と同様の装置構成であり、微粒子捕集手段として円板状の捕集板を有する。)を利用した際の微

50

粒子のサイズ分布を示す一例である。微粒子種類はコバルトであり、キャリアガスであるHeの流量は1.9slpm、ノズルの先端開口径は5.5mm、微粒子サイズ選別室内の圧力は840Paであった。また、コンダクタンス調整用排気口への流量はゼロであった。この場合の幾何平均は3.8nm、幾何標準偏差は1.21と、サイズ分布は非常に狭いものとなった。このように、本発明によるインパクタを備えた微粒子サイズ選別装置を利用することにより、比較的サイズの揃ったナノ粒子を得ることが可能になる。

【0054】

(実施例2)

本実施例では、インパクタ、特に微粒子捕集手段の別形態について説明する。

実施例1では、微粒子捕集手段として円板状の捕集板を用い、それを上下左右、あるいは回転方向にスキャンすることにより微粒子の捕集位置を変えていた。

10

【0055】

しかしながら、実施例1のような形態を採った場合、図11に示すように、捕集されない微粒子が捕集板上を通過する距離が、ノズルと捕集板の相対位置によって異なる。そのような微粒子は、捕集板上を通過する際に一部が捕集板上に捕捉されるため、図11に示す位置Aと位置Bとでは、インパクタを通過して微粒子堆積室(例えば、図3の微粒子堆積室32)に導かれる微粒子量が数10%異なる懸念がある。更には、微粒子堆積室に導かれる微粒子サイズも異なってくる。

【0056】

本実施例では、本発明の実施例1の構成が抱える若干の問題点を解消すべく、図12に示すように、捕集板3(29)に代わる微粒子捕集手段として、帯状の捕集シート51を利用する。

20

【0057】

この捕集シート51は、時間経過と共に長手方向のみに移動し、図示の例では一端部52から他端部53に向かって例えば図示の矢印方向に巻き取るように構成される。当該構成により、微粒子50の捕集シート51上の通過距離は常に一定(捕集シート51の幅の半値程度)であり、微粒子50は捕集シート51の表面で常に微粒子堆積のない新しい部分に指向する(捕獲或いは捕獲されずに通過する。図示の例では通過する場合を例示する。)ことになる。

【0058】

捕集シート51は、捕集板29(例えば図6の状態)と同様に、表面が陽極酸化によるアルミニウム酸化膜で覆われている。また、アルミニウム酸化膜の代わりに、当該表面にカーボンナノチューブを形成したり(例えば図7,図8と同様の状態)、高アスペクト比構造を持つシリコン、酸化亜鉛等のナノワイヤを捕集シート51の表面に成長、或いは載置した構成としても好適である。

30

【0059】

本実施例では、ノズル2の先端開口径は約3.25mm、捕集板の短辺の長さは約20mmである。この例では、捕集シート51として、厚み約50μm程度のステンレスシートに図7のようにカーボンナノチューブを5μm程度成長したものをを用いている。捕集シート51の送り速度は、例えば0.05mm/s程度である。この捕集シート51は、ロール状とされているため、短期に取り替えることを要せずに長時間使用することができる。このような捕集シート51を微粒子捕集手段として用いた結果、微粒子堆積室に導かれる微粒子量の時間変動は数%以内の低値となった。

40

【0060】

本発明においては、前記説明した実施形態及び諸実施例を含め、多くの形態で実施することができる。以下、本発明の諸態様を付記としてまとめて記載する。

【0061】

(付記1) 微粒子の排気口が設けられた微粒子サイズ選別室と、

選別対象となる微粒子を含むキャリアガスを前記微粒子サイズ選別室内へ放出するノズルを有する微粒子導入手段と、

50

前記微粒子サイズ選別室内に設けられており、前記ノズルから放出された微粒子を選択的に捕集する微粒子捕集手段と

を含み、

前記ノズルから放出された微粒子のうち、前記微粒子捕集手段に捕集されないことでサイズが揃えられた微粒子を、前記排気口から放出することを特徴とする微粒子サイズ選別装置。

【0062】

(付記2)前記微粒子サイズ選別室は、微粒子のサイズ選別時にその内部が $2.67 \times 10^3 \text{ Pa}$ 以下の低圧に維持されることを特徴とする付記1に記載の微粒子サイズ選別装置。

10

【0063】

(付記3)前記微粒子導入手段は、前記ノズルと別体に前記キャリアガスのガス排出口を有することを特徴とする付記1又は2に記載の記載の微粒子サイズ選別装置。

【0064】

(付記4)前記微粒子導入手段は、前記ガス排出口の上流に前記キャリアガスの流量を調節するバルブを有しており、前記バルブの調節により前記ガス排出口及び前記ノズルにおける前記キャリアガスの流量をそれぞれ制御することを特徴とする付記3に記載の微粒子サイズ選別装置。

【0065】

(付記5)前記微粒子導入手段は、前記キャリアガスを前記微粒子サイズ選別室へ導入する微粒子導入管を有しており、

20

前記ノズルは、サイズの異なる口径の複数の放出口を有し、選択された前記放出口が前記微粒子導入管と接続されるように、前記微粒子導入管と別体に配設されていることを特徴とする付記1～4のいずれか1項に記載の微粒子サイズ選別装置。

【0066】

(付記6)前記微粒子捕集手段は、表面に垂直な方向の回転軸を有し、所定速度で回転自在とされた円板状部材であり、上下左右に移動自在に配設されていることを特徴とする付記1～5のいずれか1項に記載の微粒子サイズ選別装置。

【0067】

(付記7)前記微粒子捕集手段は、低圧に維持された前記微粒子サイズ選別室内で交換自在に配設されていることを特徴とする付記6に記載の微粒子サイズ選別装置。

30

【0068】

(付記8)前記微粒子捕集手段は、帯状のシート部材であることを特徴とする付記1～6のいずれか1項に記載の微粒子サイズ選別装置。

【0069】

(付記9)前記微粒子捕集手段は、前記ノズルから放出された微粒子の捕集位置が変わるように、前記捕集位置が長手方向に時間経過と共に移動自在とされていることを特徴とする付記8に記載の微粒子サイズ選別装置。

【0070】

(付記10)前記微粒子捕集手段は、表面にポラス構造を有することを特徴とする付記1～9のいずれか1項に記載の微粒子サイズ選別装置。

40

【0071】

(付記11)前記微粒子捕集手段は、表面にアルミニウム酸化膜が形成されていることを特徴とする付記1～10のいずれか1項に記載の微粒子サイズ選別装置。

【0072】

(付記12)前記微粒子捕集手段は、表面にカーボンナノチューブが設けられていることを特徴とする付記1～9のいずれか1項に記載の微粒子サイズ選別装置。

【0073】

(付記13)前記微粒子捕集手段は、表面にナノワイヤが設けられていることを特徴とする付記1～9のいずれか1項に記載の微粒子サイズ選別装置。

50

【 0 0 7 4 】

(付記 1 4) 選別対象となる微粒子を含むキャリアガスを微粒子サイズ選別室内へ放出し、前記微粒子サイズ選別室内に設けられている微粒子捕集手段により微粒子を選択的に捕集するとともに、前記微粒子捕集手段に捕集されないことでサイズが揃えられた微粒子を収集することを特徴とする微粒子サイズ選別方法。

【 0 0 7 5 】

(付記 1 5) 前記微粒子サイズ選別室内を、微粒子のサイズ選別時に 2.67×10^3 Pa 以下の低圧に維持することを特徴とする付記 1 4 に記載の微粒子サイズ選別方法。

【 0 0 7 6 】

(付記 1 6) 前記ノズルと別体に前記キャリアガスのガス排出口設けるとともに、前記ガス排出口の上流に前記キャリアガスの流量を調節するバルブを設け、前記バルブの調節により前記ガス排出口及び前記ノズルにおける前記キャリアガスの流量をそれぞれ制御することを特徴とする付記 1 4 又は 1 5 に記載の微粒子サイズ選別方法。

10

【 0 0 7 7 】

(付記 1 7) 前記微粒子捕集手段は、表面に垂直な方向の回転軸を有し、所定速度で回転自在とされた円板状部材であり、上下左右に移動自在に配設されていることを特徴とする付記 1 4 ~ 1 6 のいずれか 1 項に記載の微粒子サイズ選別方法。

【 0 0 7 8 】

(付記 1 8) 前記微粒子捕集手段は、帯状のシート部材であることを特徴とする付記 1 4 ~ 1 6 のいずれか 1 項に記載の微粒子サイズ選別方法。

20

【 0 0 7 9 】

(付記 1 9) 前記微粒子捕集手段は、前記ノズルから放出された微粒子の捕集位置が変わるように、前記捕集位置が長手方向に時間経過と共に移動自在とされていることを特徴とする付記 1 8 に記載の微粒子サイズ選別方法。

【 図面の簡単な説明 】

【 0 0 8 0 】

【図 1】本発明のインパクトの原理を理解するために必要な要部説明図である。

【図 2】本実施形態による微粒子サイズ選別装置を示す要部説明図である。

【図 3】実施例 1 による微粒子サイズ選別装置を表す要部説明図である。

【図 4】実施例 1 におけるインパクトの詳細を表す要部斜面図である。

30

【図 5】陽極酸化されたアルミニウム酸化膜で覆われた捕集板の表面の SEM 像の写真を示す図である。

【図 6】捕集板の表面に形成されたアルミニウム酸化膜の様子を模式的に示す要部斜視図である。

【図 7】捕集板の表面にカーボンナノチューブが形成された一例を示す要部斜面図である。

【図 8】捕集板の表面にカーボンナノチューブが形成された他の例を示す要部斜面図である。

【図 9】基板に堆積される微粒子量やサイズ分布を示す特性図である。

【図 10】微粒子サイズ選別装置により、ナノ粒子を選別した結果を、比較例との比較に基づいて示す分布図である。

40

【図 11】実施例 1 における若干の問題を説明するための特性図である。

【図 12】実施例 2 における捕集帯の様子を表す要部斜面図である。

【 符号の説明 】

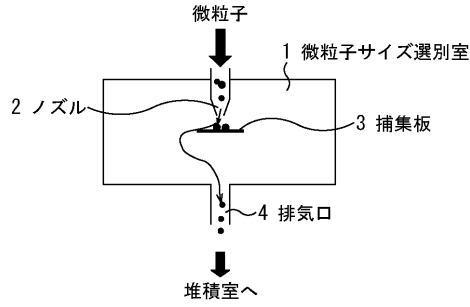
【 0 0 8 1 】

- 1 微粒子サイズ選別室
- 2 ノズル
- 3, 29 補集板
- 4 排気口
- 10 微粒子導入部

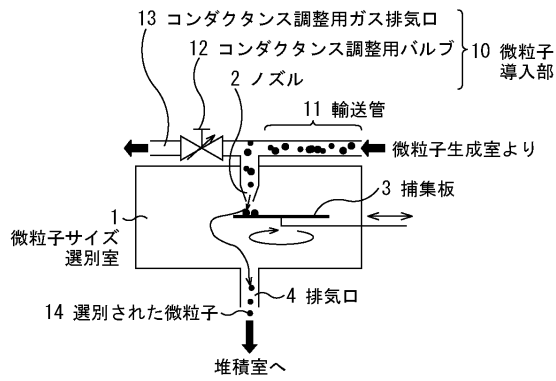
50

1 1	輸送管	
1 2	コンダクタンス調整用バルブ	
1 3	コンダクタンス調整用ガス排気口	
2 1	微粒子生成室	
2 2	コバルトのターゲット	
2 3	Nd : YAG からのパルスレーザー	
2 4	微粒子を含むキャリアガスの輸送管	
2 5	コンダクタンス調整用バルブ	
2 6	コンダクタンス調整用ガス排気口	
2 7	微粒子サイズ選別室	10
2 8	ノズル	
3 1	排気口	
3 2	微粒子堆積室	
3 3	基板	
4 1	微粒子サイズ選別室	
4 2	捕集板のホルダー	
4 3	ノズルプレート	
4 4	チューブ	
4 5	フランジ	
4 6	O - リング	20
4 7	ノズルプレートの駆動機構	
4 8	捕集板の駆動機構	
4 9	カーボンナノチューブ	
5 0	微粒子	
5 1	捕集シート	
5 2	一端部	
5 3	他端部	
6 1	アルミニウム酸化膜	
6 2	孔	

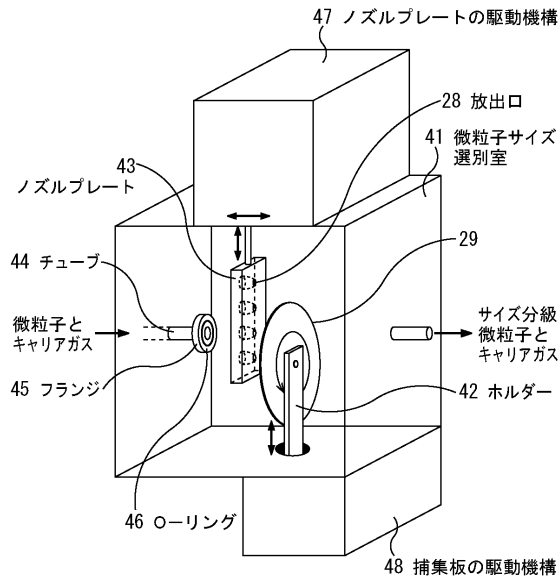
【図1】



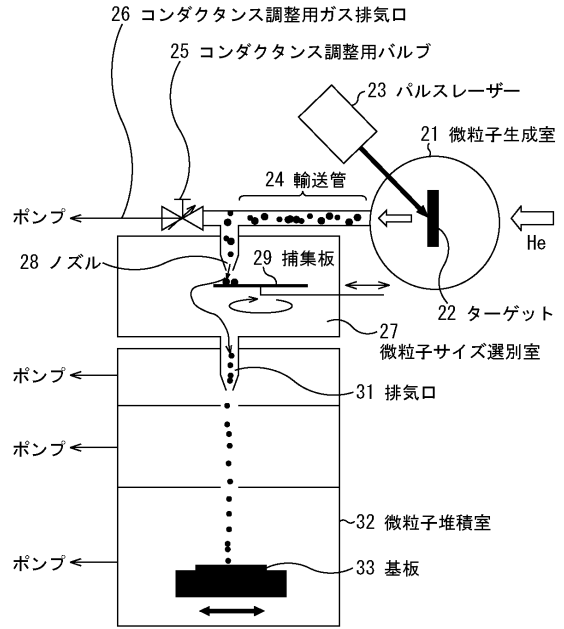
【図2】



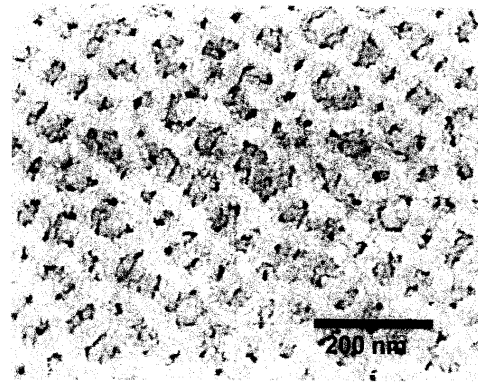
【図4】



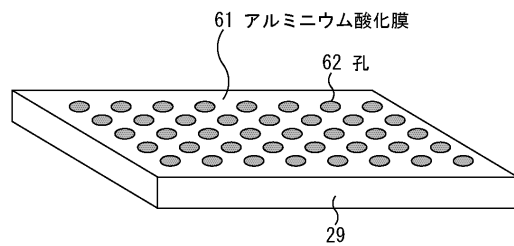
【図3】



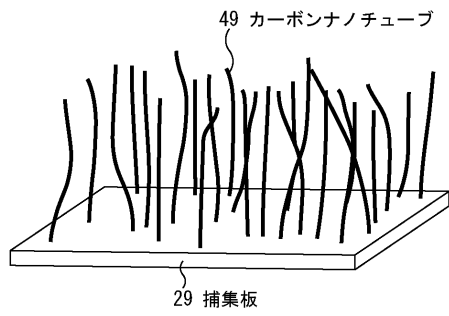
【図5】



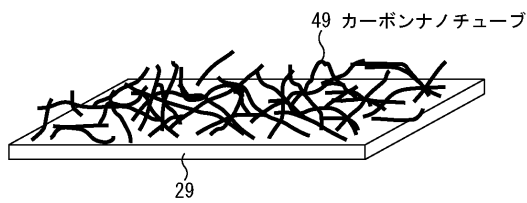
【図6】



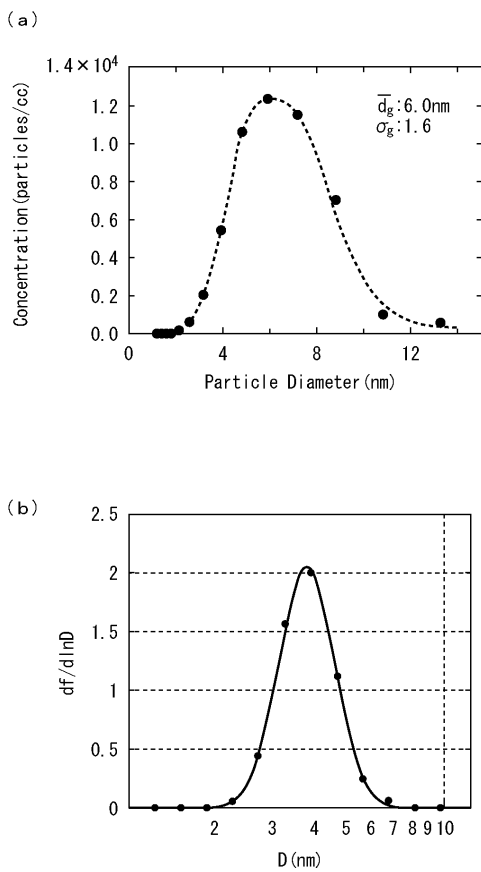
【図7】



【図8】



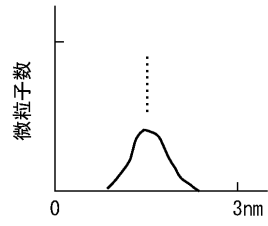
【図10】



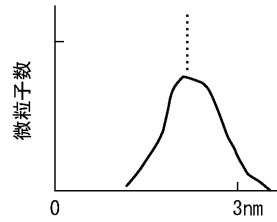
【図9】

内径3.25mmのノズルを使用した場合

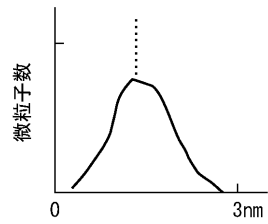
第1排気口=0sccm, 第2排気口=500sccm



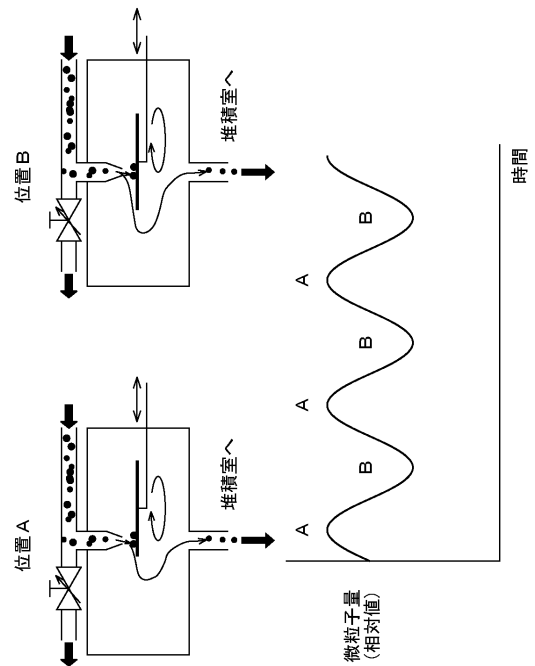
第1排気口=0sccm, 第2排気口=1000sccm



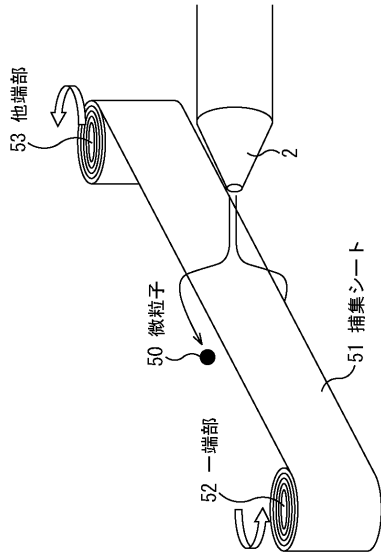
第1排気口=500sccm, 第2排気口=500sccm



【図11】



【図12】



フロントページの続き

- (56)参考文献 特開2005-091118(JP,A)
特開昭58-210822(JP,A)
特開2005-069950(JP,A)
特開昭59-029068(JP,A)
国際公開第2006/001852(WO,A1)
特表2007-526478(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

B07B 1/00 - 15/00
G01N 1/00 - 1/34
B05B 1/00 - 3/18
B05B 7/00 - 9/08
B05B 12/00 - 17/08
B82B 3/00