

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第4354121号
(P4354121)

(45) 発行日 平成21年10月28日 (2009.10.28)

(24) 登録日 平成21年8月7日 (2009.8.7)

(51) Int.Cl.

G O 1 N 15/02 (2006.01)

F I

G O 1 N 15/02

A

請求項の数 1 (全 8 頁)

(21) 出願番号	特願2001-16083 (P2001-16083)	(73) 特許権者	000155023
(22) 出願日	平成13年1月24日 (2001.1.24)		株式会社堀場製作所
(65) 公開番号	特開2002-221479 (P2002-221479A)		京都府京都市南区吉祥院宮の東町2番地
(43) 公開日	平成14年8月9日 (2002.8.9)	(74) 代理人	100074273
審査請求日	平成19年12月25日 (2007.12.25)		弁理士 藤本 英夫
		(74) 代理人	100151149
			弁理士 西村 幸城
		(72) 発明者	梅沢 誠
			京都府京都市南区吉祥院宮の東町2番地
			株式会社堀場製作所内
		(72) 発明者	山口 哲司
			京都府京都市南区吉祥院宮の東町2番地
			株式会社堀場製作所内
		審査官	渡▲辺▼ 純也

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 動的光散乱式粒径分布測定装置

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

試料セル内に、分散媒中に粒子を分散させた測定試料を収容し、この測定試料に対してレーザ光を照射し、前記粒子により散乱された光の周波数強度分布に基づいて粒径分布を求めるようにした動的光散乱式粒径分布測定装置において、前記分散媒と粒子が供給され、分散媒中に粒子を分散させるための分散バスと前記試料セルとを循環流路で接続するとともに、粒径分布測定に先立って、前記分散バスから試料セルに対して測定試料を供給し、この測定試料に対してレーザ光を照射し、そのとき得られる散乱光強度に基づいて前記測定試料の濃度を測定し、この測定された濃度を予め設定されている目標濃度と比較し、この比較結果に基づいて前記測定試料の濃度調整を行えるようにしたことを特徴とする動的光散乱式粒径分布測定装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

この発明は、動的光散乱式粒径分布測定装置に関する。

【0002】

【従来の技術】

粒径分布測定方法の一つに、動的光散乱式粒径分布測定装置を用いるものがある。この動的光散乱式粒径分布測定装置は、試料セル内に、分散媒中に粒子を分散させた測定試料を収容し、この測定試料に対してレーザ光を照射し、前記粒子により散乱された光の周波数

強度分布に基づいて粒径分布を求めるもので、従来の有機顔料やセラミックスなどに加えて、近時においては、半導体ウェハやハードディスクの研磨剤や、インクジェットプリンタなど先端材料の研究開発の現場におけるニーズが高まっている。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】

ところで、上記動的光散乱式粒径分布測定装置は、従来においては、測定の都度、試料セルに対して測定試料を供給する所謂バッチ処理が主流であるとともに、測定装置の測定可能濃度が非常に低く、測定試料として低濃度のものまたは高濃度のものを希釈して用いる必要があったため、試料を測定可能な範囲の濃度まで自動的に希釈する手法が採用されることもあった。これは、従来においては、この種の装置を用いるユーザにおいて、希釈によって測定するノウハウやデータベースを多く持っていたことにもその原因があると思われる。

10

【0004】

そして、前記試料を希釈するに際しては、従来、試料を定量的に採取し、この試料に対して100倍あるいは1000倍と言うように希釈液を定量的に注入する方法が採用されていた。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、上記手法は、測定装置の測定可能濃度に測定試料を希釈調整することが目的であり、凝集しやすい試料（粒子）においては、希釈による凝集の影響を受けたまま測定されることになり、粒子の実際の現場における使用状態と異なった状態における測定になる場合もあった。そして、前記凝集が生じた状態で粒径分布測定を行うと、散乱光強度に大きな変化を生じたり、希釈しても散乱光強度が微弱となり、所定の測定を行えないことが生ずる。

20

【0006】

この発明は、上述の事柄に留意してなされたもので、その目的は、粒径分布測定前に測定に供される試料濃度を測定し、所望の測定濃度に達するまで自動的に試料を希釈するようにして、所定の粒径分布測定を効率よく行うことができるようにした動的光散乱式粒径分布測定装置を提供することである。

【0007】

【課題を解決するための手段】

上記目的を達成するため、この発明では、試料セル内に、分散媒中に粒子を分散させた測定試料を収容し、この測定試料に対してレーザ光を照射し、前記粒子により散乱された光の周波数強度分布に基づいて粒径分布を求めるようにした動的光散乱式粒径分布測定装置において、前記分散媒と粒子が供給され、分散媒中に粒子を分散させるための分散バスと前記試料セルとを循環流路で接続するとともに、粒径分布測定に先立って、前記分散バスから試料セルに対して測定試料を供給し、この測定試料に対してレーザ光を照射し、そのとき得られる散乱光強度に基づいて前記測定試料の濃度を測定し、この測定された濃度を予め設定されている目標濃度と比較し、この比較結果に基づいて前記測定試料の濃度調整を行えるようにしている。

30

40

【0008】

上記動的光散乱式粒径分布測定装置においては、測定に供される試料を、希釈したい濃度（または濃度範囲）まで自動的に希釈することができる。そして、希釈による試料の状態変化を防止しながら濃度の確認を行うことができるので、希釈しすぎになったり希釈不足を生ずることがない。

【0009】

【発明の実施の形態】

発明の実施の形態を、図面を参照しながら説明する。図1～図5は、この発明の一つの実施例を示す。まず、図1は、この発明の動的光散乱式粒径分布測定装置の一例を概略的に示すもので、この図において、1は分散バス、2は試料セルで、両者1、2は循環流路3

50

で接続されている。

【0010】

前記分散バス1は、例えば円筒状の液槽よりなり、測定対象試料である粒子4aとこれを分散させる分散媒4bとを混合して測定試料4とするもので、その底部外部には、発振器によって振動する超音波振動子5が設けられており、分散バス1内で粒子4aが凝集するのを防止するようにされている。

【0011】

前記試料セル2は、所謂フローセルよりなり、その一端に試料入口2aが形成され、他端に試料出口2bが形成されている。

【0012】

前記循環流路3は、一端が分散バス1の底部に接続され、他端が試料セル2の試料入口2aに接続された往路管3aと、一端が試料セル2の試料出口2bに接続され、他端が分散バス1の上部において分散バス1内に開口する復路管3bとから構成されている。

【0013】

前記分散バス1側の構成を説明すると、復路管3bの下流側には、三方電磁弁6と循環用ポンプ7が設けられており、より上流側に位置する三方電磁弁6は、その第1、第2のポート6a、6bが復路管3bにそれぞれ接続され、第3のポート6cには管8を介して分散媒貯留槽9が接続されている。そして、三方電磁弁6は、例えば、電源オフ時にはポート6b、6cが連通し、電源オン時にはポート6a、6bが連通するよう構成されている。また、分散バス1の上部には、別途秤量された粒子4aを分散バス1内に供給する粒子供給ホッパー10と、分散剤を分散バス1内に供給する分散剤供給管11が設けられている。さらに、往路管3aの分散バス1の底部に近い部分には、開閉弁12を備えた排水管13が分岐接続されている。

【0014】

なお、前記分散媒4bとしては、例えば水（純水）、エタノール、油などの液体が用いられるが、測定対象である粒子4aの種類によって適宜使い分けられる。また、前記分散剤は、粒子4aが分散媒4b中において分散しやすくするもので、例えば界面活性剤など粒子どうしを反発させるもので、必要により供給される。

【0015】

そして、前記試料セル2側の構成を説明すると、14は試料セル2の一側に設けられるレーザー光源で、このレーザー光源14と試料セル2との間の光路には、レーザー光源14からのレーザー光15をコリメートするレンズ16、ビームスプリッタ17、集光レンズ18がこの順で設けられている。前記ビームスプリッタ17は、例えば中央にレーザー光15を通過させる孔が設けられ、その反射面が試料セル2方向に形成されたミラーよりなり、レーザー光源14を発したレーザー光15の光軸と例えば45°の角度をなすように設けられており、前記孔を通過したレーザー光15が試料セル2内の粒子4bによる散乱光のドップラーシフトによって生じた干渉光19を90°以下の適宜の角度曲げて反射するように構成されている。そして、ミラー17で反射された干渉光19の光路にはこれを集光するレンズ20と、前記干渉光19を電氣的な検出信号D(t)に変換する光検出器21が設けられている。

【0016】

また、22は信号処理部で、前記光検出器21の出力D(t)を必要により増幅しデジタル信号に変換処理する信号処理部23、この信号処理部23から出力される検出信号D(t)をデータ処理して粒径分布を求めるCPU24、装置の各部を制御したり、前記CPU24における処理結果を表示するための画像処理など種々の処理を行うパソコン25などよりなり、パソコン25には、粒径分布など処理結果を表示したり、各種の制御画面を表示するための表示装置26が付設されている。

【0017】

次に、上記構成の動的光散乱式粒径分布測定装置の作動について、図2～図5をも参照しながら説明する。この実施例の動的光散乱式粒径分布測定装置は、以下の作動を、パソコ

10

20

30

40

50

ン 2 5 に内蔵されているプログラムにしたがって自動的に行う。

【0018】

(1) まず、開閉弁 1 2 を閉状態にして、秤量された粒子 4 a および分散媒 4 b を分散バス 1 内に投入する (図 2 のステップ S 1)。分散媒 4 b の投入は、三方電磁弁 6 がオフの状態 (ポート 6 b, 6 c が連通している状態) でポンプ 7 を適宜時間オンすることにより適宜量の分散媒 4 b が分散バス 1 内に供給される。このとき、必要に応じて分散剤を適量投入してもよい。

【0019】

(2) 三方電磁弁 6 をオンにして、ポート 6 a, 6 b を連通させることにより循環流路 3 が開成され、ポンプ 7 をオンすることにより、分散バス 1 内の粒子 4 a および分散媒 4 b は、往路管 3 a、試料セル 2、復路管 3 b、三方電磁弁 6 およびポンプ 7 を経て分散バス 1 に戻るようにして循環流路 3 内を循環し、これによって、粒子 4 a が分散媒 4 b 内に分散して十分に攪拌混合された測定試料 4 になる (図 2 のステップ S 2)。この場合、超音波振動子 5 を動作させ、分散バス 1 内で粒子 4 a が凝集するのを防止するようにしてもよい。

【0020】

(3) 前記測定試料 4 の循環を適宜行い、これを十分に攪拌混合した後、ポンプ 7 をオフにした状態で、レーザ光源 1 4 をオンにしてレーザ光 1 5 を試料セル 2 内の測定試料 4 に照射する。すなわち、レーザ光源 1 4 から出たレーザ光 1 5 は、コリメートレンズ 1 6、ビームスプリッタ 1 7 および集光レンズ 1 8 を経て試料セル 2 内に集光する。このとき、一部のレーザ光はセル壁面を通過して、分散媒 4 b 中に分散し、ブラウン運動する粒子 4 a に当たり、前記ブラウン運動によってドップラーシフトしたレーザ光 (散乱光) が散乱する。一方、一部のレーザ光はセル壁面で散乱 (非散乱光) して、もとの周波数のレーザ光が逆方向に進む。前記散乱光と非散乱光は互いに干渉し合って干渉光となり、集光レンズ 1 8、ビームスプリッタ 1 7、レンズ 2 0 を経て光検出器 2 1 上に集光する。

【0021】

前記干渉光は、光検出器 2 1 において電気的な検出信号 $D(t)$ に変換され、信号処理部 2 3 において適宜処理され、デジタル化された光散乱データが CPU 2 4 に取り込まれる。前記光散乱データは、図 3 に示すように、測定試料 4 の濃度に応じた振幅 A_m を有しており、この振幅 A_m に基づいて測定試料 4 の濃度 (測定濃度) を得ることができる (図 2 のステップ S 3)。なお、前記光散乱データを CPU 2 4 において高速フーリエ変換してパワースペクトルを求め、このパワースペクトルに基づいて粒子 4 a の粒径分布状態を求めるようにしてもよい。

【0022】

そして、パソコン 2 5 において、測定担当者が、図 4 に示す画面を用いて目標濃度 (電圧値) を設定する。図 4 は、自動濃度調整を行うときの表示装置 2 6 における画面の一例を示し、この例では、目標濃度を表す電圧値は 12.50 V である。そして、前記測定濃度を目標濃度と比較する (図 2 のステップ S 4)。ここで、図 5 に示すように、測定濃度 (測定濃度電圧) が目標濃度 (目標濃度電圧) と一致しているときは、測定試料濃度の調整が終了したことになり (図 2 のステップ S 5)、粒径分布測定に移行する。この粒径分布測定は、前記 (3) で説明したように、レーザ光源 1 4 をオンにしてレーザ光 1 5 を試料セル 2 内の測定試料 4 に照射し、そのとき得られる、粒子 4 a 粒子により散乱された光の周波数強度分布に基づいて粒径分布を求めるようにすればよい。

【0023】

これに対して、前記測定濃度が目標濃度と一致していないときは、図 2 に示すように、ステップ S 2 に戻り、測定試料 4 の濃度調整をさらに行う必要がある。すなわち、前記測定濃度 (測定濃度電圧) が、例えば図 6 の画面例に示すように、12.50 V というように、目標濃度 (目標濃度電圧) 10.50 V より大きいときは、希釈倍率を設定し、測定試料 4 の調整を行うのである。

【0024】

具体的には、開閉弁 12 を 1 ～ 2 秒程度開いて分散バス 1 内の測定試料 4 の一部を排出した後、この排出量に等しい分散媒 4b を分散媒貯留槽 9 から分散バス 1 に供給して希釈するのである。このとき、分散剤を適宜量供給してもよい。その後、前記 (2) に記載した手法により、粒子 4a および分散媒 4b よりなる測定試料 4 を循環流路 3 を循環させることにより、十分に攪拌混合された測定試料 4 とする。

【0025】

そして、ステップ S3 に示すように、測定試料 4 の濃度を再度測定するのである。

【0026】

以下、測定試料 4 の濃度が目標濃度になるまで、上記作業を繰り返す。なお、測定試料 4 の濃度が目標濃度よりも小さい場合、粒子 4a を分散バス 1 に加えるようにすればよい。また、目標濃度として、土の多少の許容範囲を設けておき、測定濃度がこの目標濃度の許容範囲内に入った場合に、粒径分布測定に移行するようにしてもよい。

【0027】

上述のように、この発明の動的光散乱式粒径分布測定装置においては、粒径分布測定に先立って、測定試料 4 の濃度を散乱光強度に基づいて確認し、試料濃度が測定可能範囲内にあるか否かを確認しながら希釈しているので、希釈しすぎになったり希釈不足を生ずることがない。そして、測定試料 4 が所定の濃度になった状態で粒径分布測定を行うことができるので、精度の高い測定結果を得ることができ、所定の粒径分布測定を効率よく行うことができる。

【0028】

特に、分散バス 1 と試料セル 2 とを循環流路 3 によって接続し、測定試料 4 を循環流路 3 内を繰り返し循環させることができるので、粒子 4a と分散媒 4b の混合攪拌が確実に行われるとともに、凝集による粒径の変化やそれに伴う散乱光強度の急激な変化を抑制することができる。

【0029】

なお、測定試料 4 の希釈方法として、濃度を定量的に 2 の倍数ずつ希釈するようにしてもよい。すなわち、分散バス 1 内の測定試料 4 の量を分散バス 1 に設けたセンサ（図示していない）によってモニターして、半量排水し、この排出量と同量の分散媒 4b を供給して、2 倍希釈し、この 2 倍希釈を回数から希釈倍率を簡単に求めるようにしてもよい。

【0030】

【発明の効果】

以上説明したように、この発明の動的光散乱式粒径分布測定装置においては、分散バスと試料セルとを循環流路で接続するとともに、粒径分布測定に先立って、記分散バスから試料セルに対して測定試料を供給し、この測定試料に対してレーザ光を照射し、そのとき得られる散乱光強度に基づいて前記測定試料の濃度を測定し、この測定された濃度を予め設定されている目標濃度と比較し、この比較結果に基づいて前記測定試料の濃度調整を行えるようにしているので、測定試料を希釈したい濃度にまで効率よく、自動的に（無人で）希釈することができる。そして、希釈による状態変化を防止しながら濃度の確認を行うことができ、したがって、最適な濃度状態で所望の粒径分布測定を行うことができ、精度の高い測定を効率よく行うことができる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】この発明の動的光散乱式粒径分布測定装置の一例を概略的に示す図である。

【図 2】前記測定装置による粒径分布測定に先立って行われる測定試料の調整手順の一例を示すフローチャートである。

【図 3】検出信号（光散乱データ）の一例を示す図である。

【図 4】自動濃度調整を行うための画面の一例を示す図である。

【図 5】自動濃度調整を行うための画面の一例を示す図である。

【図 6】自動濃度調整を行うための画面の一例を示す図である。

【符号の説明】

1 … 分散バス、 2 … 試料セル、 3 … 循環流路、 4 … 測定試料、 4a … 粒子、 4b … 分散媒

10

20

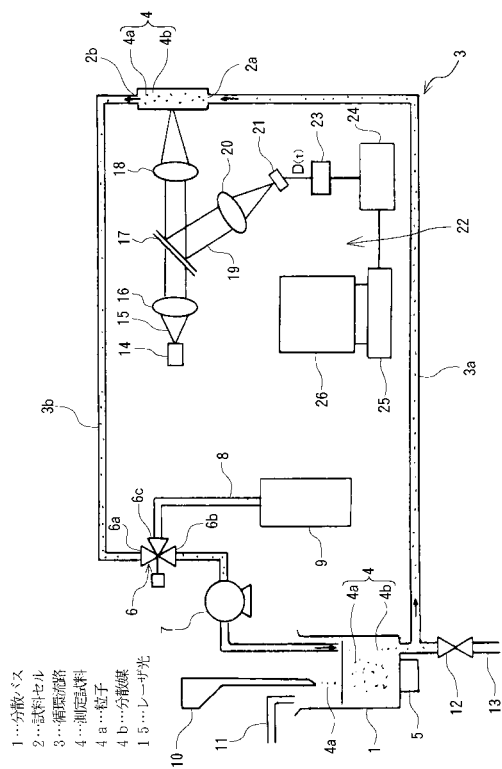
30

40

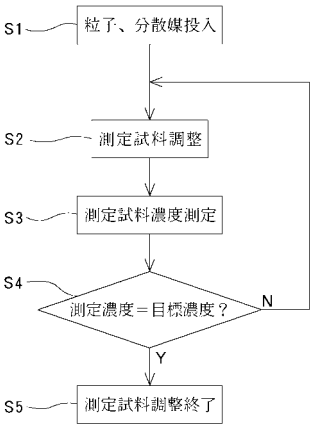
50

、15…レーザ光。

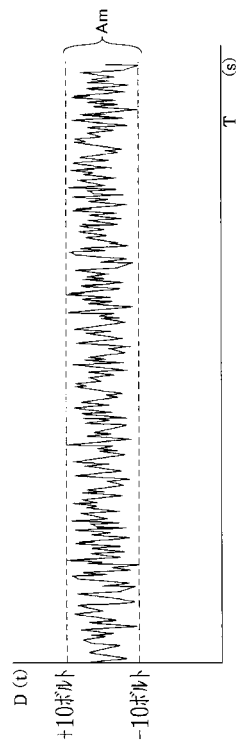
【図1】



【図2】



【図 3】



【図 4】

自動濃度調整

自動濃度調整

☐ 希釈倍率 倍

☒ 濃度電圧 V

OK キャンセル

【図 5】

自動濃度調整

目標値: 10.50 V 現在値: 10.50 V

自動濃度調整が完了しました。

OK

【図 6】

自動濃度調整

目標値: 10.50 V 現在値: 12.50 V

自動濃度調整中です。

OK

フロントページの続き

- (56)参考文献 特開2001-74637 (JP, A)
特公平6-58314 (JP, B2)
特開平7-198578 (JP, A)

- (58)調査した分野(Int.Cl., DB名)
G01N 15/00 ~ 15/14