

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2011年4月21日(21.04.2011)

(10) 国際公開番号
WO 2011/045961 A1

- (51) 国際特許分類:
G01N 15/02 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2010/061188
- (22) 国際出願日: 2010年6月30日(30.06.2010)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2009-239775 2009年10月16日(16.10.2009) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 国立大学法人群馬大学(National University Corporation Gunma University) [JP/JP]; 〒3718510 群馬県前橋市荒牧町四丁目2番地 Gunma (JP).
- (72) 発明者: および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 荒木 幹也 (ARAKI Mikiya) [JP/JP]; 〒3768515 群馬県桐生市天神町一丁目5番1号 国立大学法人群馬大学内 Gunma (JP). 江端 晃暢 (EBATA Akinobu) [JP/JP]; 〒3768515 群馬県桐生市天神町一丁目5番1号 国立大学法人群馬大学内 Gunma (JP). 井上 尊道 (INOUE Takamichi) [JP/JP]; 〒3768515 群馬県桐生市天神町一丁目5番1号 国立大学法人群馬大学内 Gunma (JP). 志賀 聖一 (SHIGA Seichi) [JP/JP]; 〒3768515 群馬県桐生市天神町一丁目5番1号 国立大学法人群馬大学内 Gunma (JP).
- (74) 代理人: 特許業務法人信友国際特許事務所 (Shin-yu International Patent Firm); 〒1510073 東京都渋谷区笹塚1-6-4-8 笹塚サウスビル Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

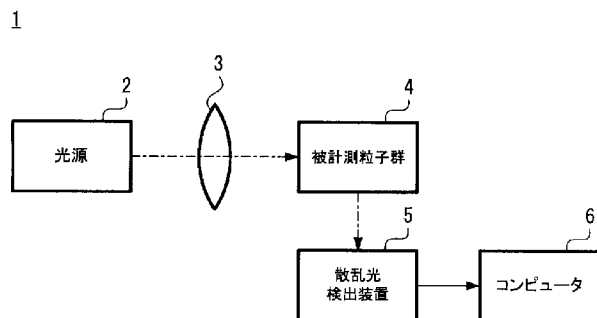
[続葉有]

(54) Title: PARTICLE SIZE MEASURING DEVICE AND PARTICLE SIZE MEASURING METHOD

(54) 発明の名称: 粒径計測装置、及び粒径計測方法

[図5]

FIG. 5



- 2 LIGHT SOURCE
4 GROUP OF TARGET PARTICLES
5 SCATTERED LIGHT DETECTION APPARATUS
6 COMPUTER

(57) Abstract: Disclosed are a particle size measuring device and a particle size measuring method that are capable of measuring particle sizes without making contact with the target particles, and which allow for measuring a greater range of particle sizes. A plurality of laser beams of different wavelengths is constantly emitted by a light source (2), striking the particle to be measured in suspension. From among the scattered light that is scattered by the particle being measured, and with the laser beam wavelengths being varied, first scattered light, having a first plane of polarization, and second scattered light, having a second plane of polarization that is perpendicular to the first plane of polarization, are detected by a scattered light detection device (5). The luminosities of the first scattered light and the second scattered light that are detected by the scattered light detection device (5) are expressed numerically, and the polarization ratio is found therefrom. The size of the particle being measured is computed by comparing the plurality of polarization ratios obtained for each wavelength with a logically derived analytical solution.

(57) 要約:

[続葉有]



WO 2011/045961 A1



規則 4.17 に規定する申立て:

添付公開書類:

- 不利にならない開示又は新規性喪失の例外に関する申立て (規則 4.17(v)) — 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

被計測粒子に非接触で粒径を計測でき、かつ、計測可能な粒径範囲の拡大が可能とされた粒径計測装置、及び粒径計測方法を提供する。光源 2 から波長の異なる複数のレーザー光を随時射出し、浮遊する被計測粒子に照射する。そして被計測粒子によって散乱された散乱光のうち、第 1 の偏波面を有する第 1 の散乱光と、第 1 の偏波面に垂直な第 2 の偏波面を有する第 2 の散乱光とをレーザー光の波長を異ならせながら散乱光検出装置 5 で検出する。次に、散乱光検出装置 5 で検出された第 1 の散乱光と第 2 の散乱光との輝度を数値化し、これにより偏光比を求める。そして、波長毎に得られた複数の偏光比と理論的に導出された解析解とを比較することにより、被計測粒子の粒径を算出する。

明 細 書

発明の名称： 粒径計測装置、及び粒径計測方法

技術分野

[0001] 本発明は、非接触にて粒径を計測することのできる偏光を用いた粒径計測装置、及び粒径計測方法に関する。

背景技術

[0002] 自動車の排気ガスに含まれる微粒子や、大陸から飛来する黄砂のようなエアロゾルは、粒径が $1\ \mu\text{m}$ を下回るサブミクロン粒子を多く含むことが知られている。また、近年の液体微粒化技術の発展と共に、算術平均粒径が数 μm オーダーの微細噴霧生成が可能となっており、その粒径分布の下限は、もはや $1\ \mu\text{m}$ 以下の領域にあると推定される。このようなサブミクロン粒子の振る舞いを把握するためには、その粒径計測法の確立が必須の課題である。

[0003] 非特許文献1には、 $1\ \text{nm}\sim 10\ \mu\text{m}$ オーダーのサブミクロン領域を含む粒径範囲を対象とした粒径計測法について記載があり、それぞれの計測法の特長についての記載がある。粒径計測法は、主に非接触式と採取式に大別される。

[0004] 非接触式粒径計測法は、主にレーザ光を用いたものであり、散乱パターンを用いたレーザ回折法、散乱光強度を用いた光散乱法、粒子運動による散乱光の周波数変動を用いた動的散乱法などが知られている。これらは、プローブにレーザ光を用いる為、非接触計測が可能であり、手法によっては2次元計測が可能という大きな利点を有する。

[0005] レーザ回折法及び光散乱法は、 $100\ \text{nm}\sim 100\ \mu\text{m}$ オーダーの粒径計測範囲を有し、燃料噴霧、粉体などの粒径計測に幅広く用いられている。しかしながら現状では、平均粒径が $1\ \mu\text{m}$ 以下の粒子にそのまま適用するには多くの困難を伴う。

[0006] 動的散乱法は、 $1\ \text{nm}\sim 1\ \mu\text{m}$ オーダーと極めて微小な粒径計測が可能で

ある、火炎中の微粒子生成過程の観察に適用されて大きな成果を挙げている。しかしながら、強力なレーザ光源と複雑な信号処理が必要なため敷居が高く、また点計測を基本とするため2次元データ取得には、数多くの実験を必要とする。

[0007] 粒子を採取して分析する採取式粒径計測法としては、光学・電子顕微鏡を用いた計測法、慣性衝突法、重力沈降・遠心沈降法、電気的検知帯法、静電分級法など数多くの手法が知られている。このような採取式粒径計測法では、手法によっては1 nmオーダーと極めて微小な粒径計測が可能である。しかしながら、粒子を採取して分析する必要がある為、粒径の空間分布や時間変化といった貴重な情報が失われてしまうという問題がある。

[0008] 一方、レーザ光を用いたサブミクロン粒径計測法として、偏光比法が知られている。偏光比法は、エアロゾルの粒径計測法として発展してきた手法であり、火炎中の微粒子生成過程の観察に適用され、大きな成果をあげている。偏光比法は、粒子からの散乱光に含まれる2つの偏光成分の強度比がその粒径に依存する性質を利用したものである。

[0009] 特許文献1には、偏光比を用いて浮遊粒子の粒径を計測するレーザ計測装置について記載されている。ここでは、浮遊粒子にレーザ光を照射してその散乱光を構成する垂直方向及び水平方向の偏波に分離して光強度を求め、その光強度の比を求めることにより粒径及び粒子の数密度を算出する構成とされている。

[0010] このような偏光比法を用いた粒径計測方法は、レーザ波長よりも小さい粒子でも計測が可能であり、非接触での粒径計測が可能であるという大きな利点を有する。しかしながら、計測可能な粒径範囲が狭く、現状では1 nm～100 nmオーダー（後述する粒径パラメータ $\alpha < 2$ のオーダー）に限定される。

[0011] このため、偏光比法は、先述のレーザ回折法や散乱光法などと粒径計測範囲が重複しておらず、両者の間を埋める粒径計測法の開発が求められている。

先行技術文献

特許文献

[0012] 特許文献1：特開平8-159948号公報

非特許文献

[0013] 非特許文献1：櫻井博、粒子の気中個数濃度と粒径分布の計測技術と標準、産総研計量標準報告、産業技術総合研究所、Vol. 4、No. 1、53-63。

発明の開示

発明が解決しようとする課題

[0014] 上述の点に鑑み、本発明の目的は、被計測粒子に非接触で粒径を計測でき、かつ、計測可能な粒径範囲の拡大が可能とされた粒径計測装置、及び粒径計測方法を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0015] 上記課題を解決し、本発明の目的を達成するため、本発明の粒径計測装置は、光源と、散乱光検出装置と、算出部とを有して構成されている。光源は、複数の異なる波長の光を射出可能な構成とされている。散乱光検出装置は、被計測粒子によって散乱された散乱光のうち、第1の偏波面を有する散乱光からなる第1の散乱光と、第1の偏波面に垂直な第2の偏波面を有する散乱光からなる第2の散乱光とを光源の波長を変えながら取得するものである。算出部は、散乱光検出装置で取得された第1の散乱光と第2の散乱光との輝度を数値化し、数値化された第1の散乱光の輝度と第2の散乱光の輝度の比による偏光比を光源の波長毎に算出するものである。また、算出部では、波長毎に得られた複数の偏光比と、予め算出部に保持している解析解とを比較することにより、被計測粒子の粒径が算出される。

[0016] 本発明の粒径計測方法は、以下の工程で行われる。まず、光源から波長の異なる複数の光を射出し、浮遊する被計測粒子又は被計測粒子群に照射する。次に、被計測粒子によって散乱された散乱光のうち、第1の偏波面を有する散乱光からなる第1の散乱光と、第1の偏波面に垂直な第2の偏波面を有

する散乱光からなる第2の散乱光とを光源の波長を異ならせながら取得する。次に、散乱光検出装置で取得された第1の散乱光と第2の散乱光との輝度を数値化し、数値化された第1の散乱光の輝度と第2の散乱光の輝度の比による偏光比を、光源の波長毎に算出する。そして、波長毎に得られた複数の偏光比と理論的に導出された解析解とを比較することにより、被計測粒子の粒径を算出する。

[0017] 本発明の粒径計測装置並びに粒径計測方法では、被計測粒子に光を照射することにより発生する散乱光を構成する第1の散乱光と、第2の散乱光との輝度の比を求めることにより、偏光比が求められる。また、複数の異なる波長の光を照射することにより、波長毎に複数の偏光比が求められる。そして、波長毎に計測された複数の偏光比と、理論的に求められている解析解とを比較することにより、被計測粒子の粒径が一意に決定される。

発明の効果

[0018] 本発明によれば、計測の対象となる被計測粒子の粒径を非接触かつ2次元で計測することができる。また、複数の異なる波長の光を用いて計測することにより、計測可能な粒径範囲の拡大を図ることができる。

図面の簡単な説明

[0019] [図1] 図1は、単一粒子へ入射するランダム偏光 L_r と散乱光 L_s の関係を示した概略図である。

[図2] 図2は、単一粒子へ入射する直線偏光 L_l と散乱光 $L_{s,1}$ 、 $L_{s,2}$ の関係を示した概略図である。

[図3] 図3は、偏光比 ρ と、幾何平均粒径パラメータ α_g の関係を示した図である。

[図4] 図4は、偏光比 ρ と幾何平均粒径 D_g の関係を示した図である。

[図5] 図5は、本発明の一実施形態の形態に係る粒径計測装置の概略構成図である。

[図6] 図6A、Bは、本発明の一実施形態の粒径計測装置における光学系の概略構成図である。

[図7] 図7は、本発明の一実施形態の粒径計測装置で用いられる石英セルの概略構成、並びに、散乱光検出装置で撮影される典型的な散乱光像を示した図である。

[図8] 図8 A～Cは、試料8の試験粒子による偏光比 ρ と幾何平均粒径 D_g の関係を示した図である。

[図9] 図9は、試料8において導出された幾何平均粒径の収束値 ε と対数幾何標準偏差 $\ln \sigma_g$ の関係を示した図である。

[図10] 図10 A～Dは、偏光比 ρ と、幾何平均粒径 D_g の関係を示した図である。

[図11] 図11 A、Bは、散乱角度 θ と偏光比 ρ の関係を示した図である。

[図12] 図12は、幾何平均粒径の収束値 ε と粒子数密度 N の関係を示した図である。

[図13] 図13は、本発明の一実施形態の粒径計測方法における過濃及び希薄計測限界を示す。

[図14] 図14 A、Bは、本発明の一実施形態における粒径計測方法と従来用いられている遠心沈降法の計測結果の相関を示した図である。

[図15] 図15は、変形例に係る粒径計測装置の概略構成図である。

発明を実施するための形態

[0020] 以下、本発明の実施形態に係る粒径計測装置と粒径計測方法の一例を、図1～図15を参照しながら説明する。本発明の実施形態は以下の順で説明する。なお、本発明は以下の例に限定されるものではない。

1. 偏光比法を用いた粒径計測方法の原理説明
2. 本発明の一実施形態に係る粒径計測装置
 - 2-1 粒径計測装置の概略構成
 - 2-2 粒径計測方法

[0021] 〈1. 偏光比を用いた粒径計測方法の原理説明〉

本発明の一実施形態に係る粒径計測装置及び粒径計測方法の説明に先立ち、偏光比法を用いた粒径計測方法の原理を説明する。

[0022] 粒子による光散乱現象の理論的解析は、ミーの散乱理論によって行うことができる。ミーの散乱理論を用いることで、粒子からの散乱光強度は、粒径、媒質に対する粒子の相対屈折率、媒質中の入射光波長、散乱角度の関数で与えられることが知られている。

[0023] 図1に、単一粒子11へ入射するランダム偏光 L_r と散乱光 L_s の関係を示す。単一粒子11に照射されたランダム偏光 L_r は散乱する。そして、散乱角 θ 方向に散乱された散乱光 L_s は2つの偏光成分からなり、偏光フィルタ12を介することにより観測平面10に垂直な偏波面を持つ偏光成分 i_1 と、観測平面と平行な偏波面を持つ偏光成分 i_2 とに分けることができる。

[0024] 図1では、ランダム偏光 L_r を単一粒子11に照射した場合を示したが、直線偏光を単一粒子に照射した場合も光の散乱場を図1と等価に示すことができる。図2は、単一粒子11へ入射する直線偏光 L_l と散乱光 L_{s1} 、 L_{s2} の関係を示す。図2では、図1と異なり入射光自体が直線偏光 L_l である。この場合、入射光の偏波面と垂直方向の観測点で観測される散乱光を偏光成分 i_1 、入射光の偏波面と平行方向の観測点で観察される散乱光を偏光成分 i_2 と見ることができる。これらの偏光成分 i_1 、 i_2 は、単一粒子11に入射する直線偏光 L_l と同じ偏波面を持つ偏光である。このように、図1と図2で示される光の散乱場は等価とみることができ同等の扱いができる。

以降、図1と図2の区別なく、散乱光について同じ定式化を行う。

[0025] ミーの散乱理論により、均質かつ球形の単一粒子からの散乱光強度 I は、粒径 D 、媒質に対する粒子の相対屈折率 m 、媒質中の入射光波長 λ 、散乱角度 θ （入射光進行方向からの角度）の関数で与えられる。波長 λ の入射光が粒径 D 、相対屈折率 m の粒子で散乱される場合、粒子中心から観測点までの距離 R 、散乱角度 θ での光散乱強度は〔数1〕で表される。

[0026] 〔数1〕

$$I = \frac{\lambda^2}{8\pi^2 R^2} (i_1 + i_2)$$

[0027] ここで、 i_1 及び i_2 は、上述したようにそれぞれ、入射光の偏波面と垂直方向の観測点で観測される散乱光成分と、入射光の偏波面と平行方向の観測点で観測される散乱光成分であり、散乱角 θ 、相対屈折率 m 、粒径パラメータ α の関数として [数2]、[数3] で表される。

[0028] [数2]

$$i_1 = \left| \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} \{a_n \Pi_n + b_n \tau_n\} \right|^2$$

[0029] [数3]

$$i_2 = \left| \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} \{b_n \Pi_n + a_n \tau_n\} \right|^2$$

[0030] [数2] 及び [数3] において、 Π 及び τ は、散乱角 θ を関数とするルジャンドル陪関数を含む式で表され、 a 、 b は、相対屈折率 m 、粒径パラメータ α を関数とする球ベッセル関数を含む式で表される。また、粒径パラメータ α は、次の [数4] で表される。

[0031] [数4]

$$\alpha = \pi D / \lambda$$

[0032] 粒径計測法としての応用を考えた場合、その計測対象は単一粒子ではなく、粒子群の場合が多い。そこで、本実施形態例では粒径分布が対数正規分布であると仮定し、定式化を行う。対数正規分布を用いた場合、 k 番目の粒径パラメータ α_k の頻度 Δf_k は、次の [数5] で与えられる。

[0033] [数5]

$$\Delta f_k = \frac{1}{\sqrt{2\pi\alpha_k \ln \sigma_g}} \exp \left\{ -\frac{1}{2} \left(\frac{\ln \alpha_k - \ln \alpha_g}{\ln \sigma_g} \right)^2 \right\} \Delta \alpha$$

[0034] 対数正規分布を考慮しなければ、単一粒子からの散乱光を取り扱ったこと

になる。また、対数正規分布以外にも様々な粒径分布関数が適用可能であることは言うまでもない。本実施形態例では、対数正規分布を用いる例とするが、粒子群の生成過程に応じて様々な粒径分布関数が提案されており、ロジック・ラムラーの式（固体を粉砕して得られる粉体にしばしば適用される）、抜山・棚沢の式（気流噴射弁で得られる液滴にしばしば適用される）など、被計測粒子群に応じて様々な粒径分布関数が適用可能である。

[0035] ここで、 $\Delta\alpha$ は粒径パラメータ α の刻み幅、 α_g は幾何平均粒径パラメータ、 σ_g は幾何標準偏差である。各粒径の粒子からの散乱光を積分したものが、粒子群全体からの散乱光となる。粒子群から散乱される各偏光成分 I_1 、 I_2 は、次の[数6]及び[数7]で与えられる。

[0036] [数6]

$$I_1 = C_1 \sum_k i_1(\alpha_k, m, \theta) \Delta f_k$$

[0037] [数7]

$$I_2 = C_2 \sum_k i_2(\alpha_k, m, \theta) \Delta f_k$$

[0038] ここで、 C_1 、 C_2 は、粒子数密度の因子である。粒子数密度が小さい場合、両者は一致する。そして、粒子群から散乱される各偏光成分 I_1 、 I_2 の比は偏光比 ρ とよばれ、次の[数8]で与えられる。

[0039] [数8]

$$\rho = \frac{I_2}{I_1} = F(\alpha_g, \sigma_g, m, \lambda, \theta)$$

[0040] 偏光比 ρ は、幾何平均粒径パラメータ α_g 、幾何標準偏差 σ_g 、媒質に対する粒子の相対屈折率 m 、媒質中の入射光波長 λ 、散乱角度 θ （入射光進行方向からの角度）の関数で与えられる。

[0041] すなわち、偏光比 ρ を計測することが可能であり、その際の m 、 λ 、 θ が

既知であれば、幾何平均粒径パラメータ α_g 並びに幾何標準偏差 σ_g を決定できる。つまり、粒子群の粒径分布を決定できることになる。このため、偏光比 ρ の計測に先立ち、予め [数 8] の関数形を解析的に求めておく必要がある。そして、以上のようにして導出される偏光比 ρ の解析解と、実際に計測される偏光比 ρ とを用いて、被計測対象粒子群の粒径分布の導出を行う。

[0042] 図 3 に、偏光比 ρ と、幾何平均粒径パラメータ α_g の関係を示す。縦軸は、偏光比 ρ を示し、横軸は対数正規分布における幾何平均粒径パラメータ α_g を示している。この図 3 では、媒質に対する粒子の相対屈折率 $m = 1.20$ 、対数幾何標準偏差 $\ln \sigma_g = 0.025$ 、散乱角度 $\theta = 90 \text{ deg}$ とし、幾何平均粒径パラメータ α_g の刻み幅を $\Delta \alpha = 0.001$ とし、 $0 < \alpha_g < 10$ の範囲で解析した解析解を実線 A で示している。また、実際に計測される偏光比 ρ の実測値を鎖線 B で示す。ここでは、波長 632.8 nm のレーザ光源を用いた場合の結果を示す。この実線 A で示す解析解と、鎖線 B で示す偏光比 ρ の実測値とが交わる点で幾何平均粒径パラメータ α_g が求められ、この幾何平均粒径パラメータ α_g により、被計測粒子群の幾何平均粒径 D_g が求められる。

[0043] 図 3 からわかるように、幾何平均粒径パラメータ α_g が、約 2 よりも小さい領域 ($\alpha_g < 2$) では、偏光比 ρ の解析解は単調増加関数である。このため、この領域では偏光比 ρ から幾何平均粒径パラメータ α_g を一意に決定することが可能である。そして、従来報告されてきた偏光比法による粒径計測は、この領域で実施されたものである。

[0044] しかしながら、幾何平均粒径パラメータ α_g が約 2 より大きい領域 ($2 < \alpha_g$) では、偏光比 ρ の解析解は大きく振動を開始する。この領域では、偏光比 ρ が幾何平均粒径パラメータ α_g の多価関数となるため、幾何平均粒径パラメータ α_g の値を一意に求めることができない。例えば、偏光比 ρ の計測値が、図 3 の鎖線 B で示すように、 $\rho = 0.80$ であった場合、複数の幾何平均粒径パラメータ α_g が候補にあがり、予測粒径を一意に決定することができない。

- [0045] そこで、本実施形態例は、複数の波長の光源を組み合わせた偏光比法（多波長偏光比法）により、この問題を解決するものである。
- [0046] 図4に、偏光比 ρ と幾何平均粒径 D_g の関係を示す。縦軸は偏光比 ρ を示し、横軸は、幾何平均粒径 D_g を示す。幾何平均粒径 D_g は、幾何平均粒径パラメータ α_g を[数4]に適用して導出したものであり、図4は、図3に示した解析解と実質的に同じものである。
- [0047] 図4では、実線Cで、波長632.8nmのレーザ光源を用いたときの解析解を示し、破線Dで、波長543.5nmのレーザ光源を用いたときの解析解を示している。[数4]で与えられるように、幾何平均粒径パラメータ α_g は光源波長 λ の関数である。図4の横軸を幾何平均粒径 D_g とした場合、幾何平均粒径パラメータ α_g が同じであっても、光源の波長 λ が異なるため、光源波長毎に異なる曲線が現れる。また、実際の偏光比 ρ の計測においても、光源波長ごとに異なる値が計測されることになる。波長632.8nmの光を被計測粒子群に照射して計測した実際の偏光比 ρ の計測値を実線Eで示し、波長543.5nmの光を被計測粒子群に照射して計測した実際の偏光比 ρ の計測値を破線Fで示す。
- [0048] 異なる光源波長を用いる場合、波長632.8nmのときに計測値（実線E）と解析解（実線C）とが交わることで決定される幾何平均粒径 D_g と、波長543.5nmのときに計測値（破線F）と解析解（破線D）とが交わることで決定される幾何平均粒径 D_g とが重複する値を被計測粒子群の幾何平均粒径 D_g として一意に決定できる。すなわち、2つの波長で重複する幾何平均粒径 D_g を一意に決定することができる。これが、本発明の粒径計測法に用いられる多波長偏光比法の計測原理である。
- [0049] 上述の原理説明では、多波長光源として、異なる2つの波長のレーザ光を用いることで偏光比 ρ が幾何平均粒径パラメータ α_g の多価関数になっている領域においても幾何平均粒径 D_g を求めることができることを説明した。多波長光源は、異なる2つの波長のレーザ光源に限定されるものではなく、2以上の複数の波長のレーザ光源を用いても、あるいは連続的に波長が変化する

波長可変レーザを用いても、上述の理論と同様に、被計測粒子群の幾何平均粒径 D_g を一意に決定することができる。また多波長光源は、レーザ光源に限定されるものではなく、水銀灯、ハロゲン灯、白熱灯などの白色光源に色フィルタを設置しある波長帯の光のみを透過したものをを用いても、上述の理論と同様に、被計測粒子群の幾何平均粒径 D_g を一意に決定することができる。

[0050] 実際の偏光比の計測値には誤差が含まれており、2つの波長で求められる粒径は、完全には一致しない。このため、2組以上の候補が現れた場合には、どちらが正しい粒径であるか判別することが困難となる。このため、3つの異なる光源波長を用いることがより好ましい。

[0051] 〈2. 本発明の一実施形態に係る粒径計測装置〉

次に、以上の原理説明を踏まえて、本発明の一実施形態に係る粒径計測装置及び粒径計測方法について説明する。

[0052] [2-1. 粒径計測装置の概略構成]

図5は、本実施形態例の粒径計測装置1の概略構成図である。図5に示すように、本実施形態例の粒径計測装置1は、光源2と、光学レンズ3と、被計測粒子群4と、散乱光検出装置5と、算出部であるコンピュータ6とを有して構成されている。また、図6Aに本実施形態例の粒径計測装置1における光学系の概略構成図を示し、光の散乱場（直線偏光光源）を具体的に示す。図6Aにおいて、図5に対応する部分には同一符号を付して説明する。

[0053] 光源2は、波長・出力・偏光の安定性からHe-Neレーザで構成され、図示しない光学台上水平に設置されている。また、本実施形態例では、3つの異なる波長のレーザ光を射出するHe-Neレーザを準備し、適宜、光源として用いる。表1に、本実施形態例で用いた光源2の仕様を示す。

[0054]

[表1]

光源	光源記号	光源タイプ	偏光 (消光比)	波長 λ (in water) [nm]	出力強度 [mW]
光源2A	緑(G)	He-Ne レーザ	直線 (500:1)	543.5 (408.6)	1
光源2B	黄(Y)			594.1 (446.7)	2
光源2C	赤(R)			632.8 (475.8)	5

[0055] 本実施形態例では表1に示すように、波長の異なる3つの光源2A、2B、2Cを準備した。光源2Aは緑(G)、光源2Bは黄色(Y)、光源2Cは赤(R)のレーザ光を射出するHe-Neレーザである。各光源2A、2B、2Cは、直線偏光のレーザ光を射出する仕様とされており、その消光比は500:1である。この場合、偏光の質に起因する誤差は1/500のオーダーとなるため、計測に及ぼす影響は比較的小さいと考えられる。計測に用いた3つの光源2A、2B、2Cのうち、緑(G)のレーザ光を射出するHe-Neレーザの波長は、543.5nm(水中での波長は、408.6nm)であり、出力は1mWである。また、黄色(Y)のレーザ光を射出するHe-Neレーザの波長は、594.1nm(水中での波長は、446.7nm)であり、出力は2mWである。また、赤色(R)のレーザ光を射出するHe-Neレーザの波長は、632.8nm(水中での波長は、475.8nm)であり、出力は5mWである。また、これらの光源2A、2B、2Cではレーザヘッドを回転することで、図6Aに示すように直線偏光の偏波面を変化させ、レーザ光 L_1 を偏光成分 i_1 のレーザ光 L_{11} 、又は偏光成分 i_2 のレーザ光 L_{12} に変化させることができる。

[0056] 本実施形態例では、直線偏光のレーザ光を使用する例としたが、ランダム偏光のレーザ光を用いることもできる。ランダム偏光のレーザ光源を用いる場合には、射出口に直線偏光フィルタを設け、それを回転することで任意の角度の偏波面を持つ直線偏光を生成することが可能である。

[0057] 光学レンズ3は、例えば凸レンズで構成され、光源2から射出されるレー

ザ光 L_1 の光軸上に配置されている。光学レンズ3では、光源2から射出されたレーザ光 L_1 が同じく光軸上に配置された石英セル7に入射するように集光される。光を集光すれば光のエネルギー密度は高くなり、またある狭い領域に存在する粒子のみの計測が可能となる。

[0058] 被計測粒子群4は、前述したように、光学レンズ3で集光されたレーザ光 L_1 の光軸上に配置されている。本実施形態例では、粒径計測の対象となる被計測粒子群4が純水に懸垂された状態で石英セル7に封入されている。純水中に懸垂させる理由は、試験粒子の凝集・飛散を防ぐ為である。本実施形態例では、四角柱型で計測部の内法寸法が $10\text{ mm} \times 10\text{ mm} \times 40\text{ mm}$ 、肉厚が 1.25 mm の石英セル（ジールサイエンス社製、品番F15-UV-10）を用いた。石英セル7は、粒径計測に用いる全ての光源波長に対して十分な透過率を有し、レーザ光 L_1 が石英セル7を透過する際に、偏光の偏波面が保存されることが確認されている。また、純水についても同様に、偏光の偏波面が保存されることが確認されている。本実施形態例では、被計測粒子群4は純水中に懸垂されるもの、空気中に懸垂される状態と同等の計測が可能である。ただしこの場合、水中に入射するレーザ光 L_1 の波長の変化や、水と被計測粒子の相対屈折率 m を考慮する必要がある。

[0059] 散乱光検出装置5は、例えば、デジタルCCD（Charge Coupled Device）カメラによって構成され、観測平面10において石英セル7に入射するレーザ光 L_1 の光軸に対して散乱角度 θ の散乱光 L_s の光軸上に配置されている。本実施形態例では、図6Aに示すように散乱角度 $\theta = 90^\circ$ の散乱光 L_s の光軸上であって石英セル7の側面を撮影できる位置に配置された例としている。ここで、本実施形態例における散乱角度 θ とは、レーザ光 L_1 の進行方向に対する散乱光 L_s の角度とする。本実施形態例では、散乱角度 $\theta = 90^\circ$ 近傍を中心に解析・計測を行う例とする。

[0060] デジタルCCDカメラを用いた場合、被計測粒子群からの散乱光は画像データとして取得される。取得された画像上のピクセル毎に、あるいはいくつかのピクセルからなる小さな領域毎に粒径分布の計測が可能となり、光源で

照射された領域の各位置における粒径分布を一度に知ることができる。また散乱光検出装置 5 は、本実施例に示したデジタル CCD カメラ以外にも、光電子増倍管 (PMT : Photo Multiplier Tube) やフォトダイオードで構成する例としてもよい。光電子増倍管やフォトダイオードを用いた場合、空間中のある 1 点のみの計測となるものの、より暗い散乱光を検出することが可能となる。

[0061] また、本実施形態例では、散乱光検出装置 5 として、輝度階調 12 ビットのデジタル CCD カメラ (浜松ホトニクス社製、品番 C8484-05G01) を用い、入力強度に対して出力信号が飽和しないように、条件毎にレンズの絞り・露光時間を調整した。散乱光検出装置 5 では、石英セル 7 内の被計測粒子群 4 に光源 2 から射出されたレーザ光 L_1 が照射されることで散乱された散乱光 L_s による画像 (散乱光像) が取得される。

[0062] コンピュータ 6 は、散乱光検出装置 5 で取得した散乱光強度データを取り込み、散乱光強度 (輝度) を電気信号レベルに変換するものであり、ここにおいて、第 1 の散乱光像と第 2 の散乱光像の輝度により偏光比が算出される。またコンピュータ 6 には、上述した [数 1] ~ [数 8] を用いて導出される幾何平均粒径 D_g および対数幾何標準偏差 $\ln \sigma_g$ に対する偏光比 ρ の解析解がデータベースとして予め保持されている。このコンピュータ 6 では、散乱光検出装置 5 で取得されたデータ (偏光比の計測値) と、予め保持された解析解とが随時比較可能となっており、比較することにより石英セル 7 に封入されている被計測粒子群 4 の粒径が算出され出力される。

[0063] なお、本実施形態例では、図 6 A に示すように、散乱光検出装置 5 は、散乱角度 $\theta = 90^\circ$ の散乱光 L_s の光軸上であって石英セル 7 の側面を撮影できる位置に配置された例としているが、これに限られるものではない。例えば、図 6 B に示すように、散乱角度 $\theta < 90^\circ$ の散乱光 L_s の光軸上に配置してもよく、また、散乱角度 $\theta > 90^\circ$ としてもよい。解析・計測に好適な散乱光強度を取得できる散乱光 L_s の散乱角度 θ については、後に説明する。

[0064] [2-2. 粒径計測装置を用いた粒径計測方法]

次に、本実施形態例の粒径計測装置 1 を用いた粒径計測方法を、実際の実験例を示しながら説明する。

[0065] まず、本実施形態例では、被計測粒子として、表 2 に示す試料 1 ~ 試料 11 までの試験粒子を準備した。

[0066] [表2]

試料No.	材料	屈折率 n_p (相対屈折率 m)	形状	算術平均粒径 $D_{10}[\mu m]$	標準偏差 $\sigma[\mu m]$	数密度 [$1/m^3$]
試料1	ポリスチレン (透明)	1.59 (1.20 in water)	球形	0.356	0.014	1.1×10^{14}
試料2				0.465	0.011	2.7×10^{11}
試料3						4.2×10^{12}
試料4						5.3×10^{13}
試料5						1.8×10^{14}
試料6						6.0×10^{14}
試料7				0.771	0.025	4.5×10^{11}
試料8						8.4×10^{12}
試料9						1.3×10^{14}
試料10				1.025	0.010	5.0×10^{12}
試料11				3.004	0.065	3.4×10^{11}

[0067] 本実施形態例の多波長偏光比法を用いた粒径計測装置 1 の有用性を示すため、既知の粒径分布ならびに物性値を持つ試験粒子を用いた。表 2 に示すように、試験粒子の材質はポリスチレンであり、球形かつ透明であり、屈折率 n_p は 1.59 である。なお、本実施形態例では、ポリスチレンを用いる例としたが、すすや、金属粉体のような非透明粒子の場合にも光の吸収を考慮した複素屈折率を導入することで、先述の理論のまま計測が可能である。

[0068] また、表 2 に示すように、試料 1 ~ 試料 11 の試験粒子の算術平均粒径 D_{10} ならびに標準偏差 σ は、予め遠心沈降法により計測されている。試験粒子の算術平均粒径 D_{10} を、 $0.356 \mu m < D_{10} < 3.004 \mu m$ の範囲で変化させた。この粒径は、従来の偏光比法では計測不能な粒径領域に対応するものである。また、試験粒子の数密度は、 $10^{11} [1/m^3] < N < 10^{14} [1/m^3]$ のオーダで変化させ石英セル 7 内に封入した。また、純水の屈折率は

$n_w = 1.33$ であり、媒質に対する試験粒子の相対屈折率は、 $m = 1.20$ である。

- [0069] 試料 8 を例に、実際の偏光比 ρ の計測方法を説明する。まず、試料 8 の試験粒子が封入された石英セルと、緑 (G) の波長の光源 2 を配置する。次に、光源 2 のレーザヘッドを回すことにより光源 2 から出射するレーザ光 L_1 を第 1 の偏波面を有する偏光成分 i_1 の直線偏光 L_{11} に調整し、その調整されたレーザ光 L_{11} を光学レンズ 3 により絞りこみ、石英セル 7 の底面中心に入射させる。石英セル 7 内へと透過したレーザ光 L_{11} は、試料 8 に係る試験粒子に散乱される。そして、散乱光検出装置 5 では、散乱角度 $\theta = 90^\circ$ の方向に散乱された第 1 の散乱光像を撮影する。撮影された第 1 の散乱光像はコンピュータに取り込み、第 1 の散乱光像の輝度 (散乱光強度) を数値化する。
- [0070] 次に、光源 2 のレーザヘッドを回すことにより、光源 2 から出射するレーザ光 L_1 を第 1 の偏波面に垂直な第 2 の偏波面を有する偏光成分 i_2 の直線偏光 L_{12} に調整し、前述と同様に石英セル 7 に入射させる。そして、偏光成分 i_2 のレーザ光 L_{12} による第 2 の散乱光像を散乱光検出装置 5 で同様に撮影し、コンピュータに取り込み、第 2 の散乱光像の輝度 (散乱光強度) を数値化する。
- [0071] 図 7 に、本実施形態例で用いられる石英セル 7 の概略構成、並びに、散乱光検出装置 5 で撮影される典型的な散乱光像を示す。図 7 の (I) は、試料 8 に係る試験粒子を計測したときの第 1 の散乱光像であり、(II) は、第 2 の散乱光像である。本実施形態例では、石英セル 7 の底面中心を原点とし、レーザ光進行方向に x 軸をとる。また、本実施形態例では、 $12\text{ mm} < x < 15\text{ mm}$ を計測領域とした。石英セル 7 の底面近傍 7 b では、レーザ光が底面を透過する際の拡散散乱光が重畳するため、計測が困難であることが確認されている。また、石英セル 7 のキャップ近傍 7 a では、特に、数密度の大きい条件において、レーザ光の減衰が顕著なため、十分な S/N 比を確保できない。このため、本実施形態例のように、 $12\text{ mm} < x < 15\text{ mm}$ の範囲を計測領域 z とすることが好ましい。コンピュータ 6 では、この計測領域

z 内の第 1 及び第 2 の散乱光像が写された全ピクセルの輝度平均値から偏光成分 i_1 及び偏光成分 i_2 の散乱光強度が算出される。

[0072] 図 7 に示すように、試料 8 の試験粒子を封入した石英セル 7 における偏光成分 i_1 で構成される第 1 の散乱光像（図 7 の (I)）と、偏光成分 i_2 で構成される第 2 の散乱光像（図 7 の (II)）を比較すると、両者の散乱光強度に顕著な差があることがわかる。この場合、偏光成分 i_1 による第 1 の散乱光像の光強度の方が偏光成分 i_2 による第 2 の散乱光像の光強度よりも大きい。

[0073] 本実施形態例では、偏光成分 i_1 による第 1 の散乱光像と、偏光成分 i_2 による第 2 の散乱光像とをそれぞれ 100 枚ずつ取得し、コンピュータにより上述の散乱光強度を算出した。そして、散乱光強度を 100 枚の画像で平均化することにより、光源の波長・強度・消光比の変動、散乱光検出装置の感度変動、光学機器設置の再現性などに起因する誤差を極力排除する。

[0074] そして、上述のようにして取得された偏光成分 i_1 による散乱光強度と、偏光成分 i_2 による散乱光強度とから、緑 (G) の波長のレーザ光を射出する光源 2A を用いた場合の偏光比 ρ を求める。

[0075] 光源 2A を、随時光源 2B (黄色 (Y) のレーザ光)、及び光源 2C (赤 (R) のレーザ光) に取り替えて同様の計測をすることにより、3 種類の異なる波長のレーザ光による偏光比をレーザ光の波長毎にそれぞれ計測することができる。

[0076] 本実施形態例では、試料 1～試料 7 及び試料 9～試料 11 の試験粒子についても、同様の計測を行い、異なる 3 つの波長のレーザ光を用いた場合の偏光比を、波長毎にそれぞれ計測した。

[0077] 図 8A～C に、試料 8 の試験粒子による偏光比 ρ と粒径 D の関係を示す。縦軸は偏光比 ρ 、横軸は対数正規分布における幾何平均粒径 D_g を示す。図 8A は光源 2A を用いたときの偏光比であり、図 8B は光源 2B を用いたときの偏光比であり、図 8C は光源 2C を用いたときの偏光比である。図 8A～C の実線 G, I, K で示す解析解は、上述した [数 8] の関数形を数値解析

により求めた結果である。図 8 A～C の鎖線 H, J, L で示す計測値は、上述の計測方法により散乱光検出装置 5 を用いて実測された偏光比である。

[0078] 図 8 A～C に示すように、横軸を幾何平均粒径 D_g とした場合、幾何平均粒径パラメータ α_g が同じであっても光源から射出されるレーザ光の波長が異なるため、[数 8] を用いて導出される解析解は光源波長毎に異なる曲線となる。図 8 A～C において解析解における幾何平均粒径パラメータ α_g の刻みは、 $\Delta \alpha_g = 0.001$ であり、対数幾何標準偏差 $\ln \sigma_g$ の刻みは、 $\Delta \ln \sigma_g = 0.005$ である。各光源波長 λ (ただし純水中での値) を用い、偏光比 ρ を幾何平均粒径 D_g の関数として求めた。

また、図 8 A～C における偏光比 ρ の計測値も、光源波長毎に異なる値が計測される。

[0079] 以上のように導出された偏光比 ρ の解析解と、計測値とを比較する。異なる波長のレーザ光を用いた図 8 A～C の偏光比 ρ 毎に、解析解と計測値の交点は複数現れる。この図 8 A～C に現れた交点を比較することにより、図 8 A～C 間でもっとも近接している交点を求め、その交点を予測粒径として求める。

[0080] 実際の偏光比 ρ の計測値には、誤差が含まれるため、緑 (G)、黄色 (Y)、赤 (R) の 3 つの光源を用いて導出された幾何平均粒径 D_g は完全には一致しない。図 8 A～C において候補となる幾何平均粒径 D_g の最大値と最小値の差から、下記の [数 9] を用いて収束値 ε を求める。

[0081] [数 9]

$$\varepsilon = \frac{D_{g,\max} - D_{g,\min}}{D_{g,\min}}$$

[0082] 続いて、対数幾何標準偏差 $\ln \sigma_g$ を変化させ、収束値 ε の最小値を与える条件を求める。このときの幾何平均粒径 D_g 並びに、対数幾何標準偏差 $\ln \sigma_g$ の組み合わせを最終的な計測結果とする。本実施形態例では、収束値 ε が 1 % 以下まで収束したときのみ、計測可能と判定した。

[0083] 図9に、試料8において導出された幾何平均粒径の収束値 ε と対数幾何標準偏差 $\ln \sigma_g$ の関係を示す。対数幾何標準偏差を増大していくと、 $\ln \sigma_g = 0.015$ において幾何平均粒径の収束値 ε は最小値をとることが分かる。このときの幾何平均粒径と対数幾何標準偏差の組み合わせを最終的な計測結果とする。3つの異なる波長のレーザ光で得られた幾何平均粒径の平均値は、 $D_g = 0.790 \mu\text{m}$ である。本実施形態例では、計測対象の粒子群が対数正規分布を持つと仮定している。対数正規分布における算術平均粒径 D_{10} は、次の[数10]で与えられる。

[0084] [数10]

$$D_{10} = \exp(\ln D_g + 0.5(\ln \sigma_g)^2)$$

[0085] [数10]より、算術平均粒径は $D_{10} = 0.790 \mu\text{m}$ となる。この値は、遠心沈降法で予め計測された算術平均粒径 $D_{10} = 0.771 \mu\text{m}$ と比較し、+2.4%である。遠心沈降法は、従来の粒径計測法において比較的信頼性の高い計測方法であるため、遠心沈降法で計測された粒径と、本実施形態例で計測された粒径との誤差で本実施形態例の粒径計測装置及び粒径計測方法の有用性を確認することができる。本実施形態例の粒径計測装置及び粒径計測方法では、試料8における試験粒子を、遠心沈降法で予め計測された粒径に比較的少ない誤差で計測できたということが出来る。従来の偏光比法を用いた粒径計測方法では、粒径計測範囲の上限は100nmオーダーであったが、本実施形態例では、複数の異なる波長の光源を用いた多波長偏光比法を用いることで、粒径計測範囲の上限を3 μm オーダーまで、すなわち従来技術の10倍程度と大幅に拡大することができた。

[0086] ここで、本実施形態例の粒径計測装置1を用いた粒径計測方法における散乱光の散乱角度 θ の適用範囲について説明する。

[0087] 図10A~Dに、[数1]~[数8]を用いて導出した、幾何平均粒径 D_g と偏光比 ρ の関係を示す。相対屈折率は $m = 1.20$ 、対数幾何標準偏差は $\log \sigma_g = 0.015$ 、光源波長は $\lambda = 632.8 \text{nm}$ である。図10Aは

、散乱角度 $\theta = 90^\circ$ で散乱される散乱光から求めた偏光比 ρ である。図 10B は、散乱角度 $\theta = 80^\circ$ で散乱される散乱光から求めた偏光比である。図 10C は、散乱角度 $\theta = 70^\circ$ で散乱される散乱光から求めた偏光比である。図 10D は、散乱角度 $\theta = 60^\circ$ で散乱される散乱光から求めた偏光比である。これはあくまで一例であるが、本実施例の条件の範囲内であれば、図 10A ~ 図 10D と、定性的な傾向は同じである。

[0088] まず、幾何平均粒径 $D_g = 0.20 \mu\text{m}$ の結果に注目する。散乱角度 $\theta = 90^\circ$ (図 10A) の場合、偏光比は $\rho = 2.0 \times 10^{-3}$ 程度となる。つまり、粒子群から散乱される各偏光成分 i_1 、 i_2 の散乱光強度の差は約 500 倍にも達する。同一の散乱光検出装置 5 を用いて、約 500 倍もの輝度の差がある 2 つの対象を、同時に精度良く観測することは困難である。一般に、光検出装置のダイナミックレンジは 1000 倍程度である。散乱光強度の差が約 500 倍もある場合には、輝度の大きい条件では信号が飽和し、輝度の小さい条件では信号が計測下限レベルとなり検出できなくなる。このため、散乱角度 $\theta = 90^\circ$ の条件での計測は、実用上困難を伴う。一方、散乱角度 θ を、 80° 、 70° 、 60° と減じていくと、偏光比は増大して $\rho = 1$ ($\rho = 10^0$) に近づいていき、粒子群から散乱される各偏光成分 i_1 、 i_2 の散乱光強度の差は 10 倍程度以内 ($\rho = 10^{-1} \sim 10^1$ 程度) に収まるようになる。この条件であれば、実用上問題なく計測が可能である。

[0089] 次に、図 10A ~ D において、幾何平均粒径 $D_g = 0.70 \mu\text{m}$ のときの偏光比 ρ に注目する。散乱角度 $\theta = 90^\circ$ (図 10A) ~ 60° (図 10D) の範囲内で散乱される散乱光 L_g から求めた偏光比は、常に $\rho = 10^{-1} \sim 10^1$ 程度の範囲内となる。つまり散乱光強度の差は 10 倍程度の範囲内に収まる。この条件であれば、実用上問題なく計測が可能である。このように、幾何平均粒径 D_g に応じて、撮影に好適な散乱光 L_g の散乱角度 θ は変化することが分かる。

[0090] 図 11A, B に、[数 1] ~ [数 8] を用いて導出した、散乱角度 θ と偏光比 ρ の関係を示す。図 11A, B は、図 10A ~ D を別の見方で示したも

のといえる。図 1 1 A は、比較的小粒径の条件 ($D_g = 0.10 \sim 0.20 \mu\text{m}$) において偏光比 ρ を求めたものであり、図 1 1 B は、比較的大粒径の条件 ($D_g = 0.30 \sim 1.0 \mu\text{m}$) で偏光比 ρ を求めたものである。

[0091] まず、比較的小粒径の条件の結果 (図 1 1 A) に注目する。散乱角度が $\theta < 50^\circ$ 程度の場合、ならびに $\theta > 130^\circ$ 程度の場合、粒径によらず偏光比は $\rho = 10^0$ すなわち $\rho = 1$ に漸近していく。これは、レイリー散乱と呼ばれる光源波長以下の小粒径粒子の光散乱現象に特徴的な現象である。偏光比が $\rho = 1$ に漸近する、すなわち散乱光強度の差が無くなるため、粒径の違いが検出できなくなる。このため、撮影する散乱光の散乱角度としては不適である。一方、散乱角度が $80^\circ < \theta < 100^\circ$ 程度の場合、偏光比は $\rho = 10^{-3} \sim 10^{-4}$ に達し、散乱光強度の差は著しく大きくなる。この領域では、先に述べたように散乱光検出装置 5 のダイナミックレンジが対応できず、やはり撮影する散乱光 L_s の散乱角度 θ としては不適である。

[0092] 比較的小粒径の条件 (図 1 1 A) の場合、散乱角度が $50^\circ \leq \theta \leq 80^\circ$ 程度の範囲と、散乱角度が $100^\circ \leq \theta \leq 130^\circ$ 程度の範囲で散乱される散乱光を撮影する構成が好適であるといえる。

[0093] 次に、比較的大粒径の条件の結果 (図 1 1 B) に注目する。図 1 1 A と比較し、偏光比 ρ はばらつき・変動が大きくなることが分かる。これは、ミー散乱と呼ばれる、光源波長と同程度あるいはそれ以上の粒径の粒子の光散乱現象に特徴的な現象である。散乱角度 $\theta < 50^\circ$ 程度の場合、粒径によらず偏光比は $\rho = 1$ に漸近していく。散乱光強度の差が無くなるため、粒径の違いが検出できなくなる。このため、散乱角度としては不適である。一方、散乱角度 $\theta > 90^\circ$ 程度の場合、偏光比 ρ はばらつきを生じ全体的に減少していく。それでも、偏光比は $10^{-2} < \rho < 10^1$ のオーダーにあり、散乱光強度の差は最大でも 100 倍程度である。この領域では、最も好ましいとまでは言えないものの、計測が不可能というわけではない。すなわち、比較的大粒径の条件の場合、散乱角度 $\theta > 90^\circ$ で散乱される散乱光を撮影する構成はやや好適と言える。

- [0094] 比較的大粒径の条件（図 1 1 B）の場合、散乱角度が $50^\circ \leq \theta \leq 90^\circ$ の範囲で散乱される散乱光を撮影する構成が最も好適であるといえる。
- [0095] 可能な限り光学系配置を変化せずに、幅広い粒径範囲の粒子の計測をできることが望ましいことは言うまでもない。したがって、散乱角度 θ は、 $50^\circ \leq \theta \leq 90^\circ$ 程度、特に光源波長以下の小粒径粒子を含む場合には散乱角度 $50^\circ \sim 80^\circ$ 程度で散乱される散乱光を撮影する構成が最も好適といえる。
- [0096] 次に、本実施形態例の粒径計測装置を用いた粒径計測方法における計測可能範囲を検証する。
- [0097] 図 1 2 に、幾何平均粒径の収束値 ε と粒子数密度 N の関係を示す。図 1 2 では、試料 3 ~ 試料 6 の試験粒子の結果を示す。希釈の度合いが異なるものの、全て同一粒径の粒子（遠心沈降法による算術平均粒径 $D_{10} = 0.465 \mu\text{m}$ ）の結果である。図 1 2 により、数密度 N の増大とともに、幾何平均粒径の収束値 ε は急激に増大することが分かる。また、数密度 $N = 10^{14} [1/\text{m}^3]$ のオーダーで、収束値 $\varepsilon = 1\%$ を超えることがわかる。図 1 2 に示される結果より、散乱光が粒子に入射し再度散乱する多重散乱の影響が数密度 N の増大とともに顕著になったと推察される。収束値 $\varepsilon = 1\%$ 以下まで収束する時のみ計測可能とすると、試料 3 ~ 試料 6 のうち、試料 3 ~ 試料 5 の条件の試験粒子の粒径が計測可能な範囲にあるといえることができる。このように、従来のレーザ回折法を用いた粒径計測装法などと同様に、高濃度場での計測には制約があることがわかる。
- [0098] 図 1 3 に、本実施形態例の粒径計測方法の過濃及び希薄計測限界を示す。縦軸は、粒子数密度 N 、横軸は遠心沈降法で計測された算術平均粒径 D_{10} を示す。図 1 3 に示すように、本実施形態例で用いた試料 1 ~ 試料 11 のうち、試料 1, 3, 4, 5, 8, 10 及び 11 は、収束値 $\varepsilon < 1\%$ となり、計測可能であった条件である。また、試料 6 及び 9 は、収束値 $\varepsilon > 1\%$ となり、計測不可能であった条件である。また、試料 2 及び 7 は、散乱光強度が小さく十分な S/N 比を確保できなかった条件を示す。

- [0099] 数密度が大きい側の計測限界は、多重散乱の影響によるものと考えられる。多重散乱の影響は、粒子の平均間隔 δ と粒径 D により評価され、一般に $\delta/D=50$ 程度を閾値としてその影響が顕著になる。図13の過濃計測限界ラインは、 δ/D が一定となる条件を示したものであり、図12で与えられた過濃計測限界をもとに定数を決定した。なお、本実施形態例の場合、散乱体積の厚さは、5mm程度(石英セルの内法断面寸法法10mm×10mm)である。過濃計測限界は、本実施形態例の粒径計測方法に限らず、散乱光を用いた粒径計測法の本質的な限界を示す特性である。
- [0100] 数密度が小さい側の計測限界は、散乱光強度が小さく十分な S/N 比を確保できないことによるものである。粒子群からの散乱光強度は、粒子数密度 N 及び粒子の散乱断面積 D^2 に概ね比例する。図13の希薄計測限界ラインは、 ND^2 が一定となる条件を示したものであり、試料7の計測限界を元に定数を決定した。希薄計測限界は、光源の出力強度の増大、散乱光検出装置における検出感度の増大、散乱光検出装置における露光時間の増大、光学レンズ等のレンズ系の見直しといった対策で拡大できると考えられる。
- [0101] 図14A, Bに、本実施形態例における粒径計測方法と従来用いられている遠心沈降法の計測結果の相関を示す。図14A, Bには、図13の計測可能範囲にある全ての試料の結果が示されている。図14Aは、幾何平均粒径の収束値 ε を示し、図14Bは、本実施形態例の粒径計測方法及び従来の遠心沈降法の2つの方法で求められた算術平均粒径 D_{10} の相関を示している。また、図14Bには、試料の計測誤差も併せて示されている。
- [0102] 本実施形態例の粒径計測方法と従来の遠心沈降法の計測誤差は粒径によって異なり、最小で+0.1% (試料1)、最大で+7.6% (試料5)である。
- [0103] このように、本実施形態例の粒径計測装置1を用いた粒径計測方法では、粒子数密度が大きすぎても小さすぎても計測が困難となる。被計測粒子の粒径が小さい場合、数密度の小さい希薄な条件で計測が困難となる傾向がある。被計測粒子の粒径が大きい場合、数密度の大きい過濃な条件で計測が困難

となる傾向がある。このため、計測可能な数密度の範囲を一概に規定することは難しい。しかしながら数密度の範囲を限定すれば、本実施例で検討した全ての粒径の試料粒子について計測可能であることが示された。従来の単波長偏光比法と比較し、計測可能な粒径を拡大することができることが検証された。また、粒子数密度に応じて計測が困難となるという問題は、従来の単波長偏光比法も全く同様に抱える問題であり、本発明特有の欠点ではない。

[0104] そして、本実施形態例の粒径計測装置 1 及び粒径計測方法では、波長の異なる複数のレーザ光を用いることにより、偏光比 ρ の解析解が、幾何平均粒径パラメータ α_g の多価関数となり大きく振動するような範囲においても、粒径分布を一意に決定することができる。そして、これにより従来の偏光比法では計測不可能だった $3 \mu\text{m}$ オーダの粒径の粒子を計測することが可能であることがわかる。

[0105] ところで、本実施形態例の粒径計測装置 1 では、3つの波長の異なる光源を随時取り替えて、散乱光の計測を行う例としたが、1つの光源にて複数の異なる波長のレーザ光を照射できる光源を用いる例としてもよい。また、本実施形態例では、3つの異なる波長のレーザ光を粒子に照射する例としたが、2つ以上の異なる波長のレーザ光を粒子に照射する構成であれば、本発明の効果を得ることができる。本実施形態例のように、3つの異なる波長のレーザ光による被計測粒子の散乱を計測することにより、より精度よく被計測粒子の粒径を求めることができる。

[0106] 本実施形態例の粒径計測装置、及び粒径計測方法によれば、従来の偏光比法を多波長のレーザ光で実施する構成とすることにより、従来の偏光比法における計測可能な粒径範囲である $1 \text{ nm} \sim 100 \text{ nm}$ を 10 倍程度拡大し、 $3 \mu\text{m}$ オーダの粒径を計測することができる。また、従来非接触による粒径計測方法として用いられてきたレーザ回折法や散乱光法の計測範囲の最小値と重複する $3 \mu\text{m}$ オーダまで拡大することができる。これにより、本実施形態例の粒径計測方法を、従来の非接触による粒径計測方法と併せることにより、計測可能な粒径範囲を連続的に拡大することができる。

- [0107] また、本実施形態例では、緑（G）、黄色（Y）、赤（R）の3つの波長の異なるレーザ光を用いる例としたが、その他の波長のレーザ光を組み合わせてもよい。この場合、3つの波長のうち、2つの光源波長が接近しすぎると解析解に差が現れず、図3で示した結果と同様の結果となってしまう。このため、図4に示される解析解の曲線群が十分に離れて表示される程度の波長の差があるレーザ光を組み合わせることが必要となる。
- [0108] また、本実施形態例の粒径計測装置では、直線偏光のレーザ光を射出する光源を用いる例としたが、ランダム偏光のレーザ光を射出する光源を用いてもよい。この場合は、例えば、石英セルに入射する前段の光軸上に偏光フィルタを配置することにより、石英セルに入射する偏光を観測平面に垂直な成分と水平な成分に調整可能な構成にすればよい。そして、偏光フィルタによって石英セルに入射するレーザ光の偏光成分を変えることで、上述と同様に、第1の散乱光像と第2の散乱光像を撮影することができる。
- [0109] また、本実施形態例では、散乱角度 $\theta = 90^\circ$ の散乱光像を撮影する構成としたが、これに限定されず、所望の散乱角度 θ で散乱された光による散乱光像を撮影することによっても、本実施形態例と同様に被計測粒子の粒径を求めることができる。この散乱角度 θ の設定は、第1の散乱光像の輝度と、第2の散乱光像の輝度の差が散乱光検出器5のダイナミックレンジの範囲内にあり、かつ十分に違いを検出できるだけの差があることが好ましい。本実施形態例のように、散乱角度 $\theta = 90^\circ$ の近傍、最も好適な条件で言えば $\theta = 50^\circ \sim 80^\circ$ 程度で散乱される散乱光からなる散乱光像を計測する構成とすれば、例えば、光源からシート状のレーザ光を射出するような場合に、石英セル内に封入された被計測粒子の2次元計測が可能となるという利点を有する。
- [0110] ここで、2次元計測を行う上で、散乱光像の観測は、厳密に、散乱角度 $\theta = 90^\circ$ の散乱光による散乱光像を観測する設定である必要は無い。やや斜め方向からの観測、例えば散乱角度 $\theta = 70^\circ$ の散乱光による散乱光像の観測であっても、画像処理による台形補正（画像のゆがみ補正）を行うことで

、散乱角度 $\theta = 90^\circ$ の散乱光による散乱光像と全く同様の可視化像を取得することが可能であるためである。

[0111] このように、本発明の粒径計測装置は、波長の異なる複数の偏光による偏光比を計測できる構成であればよく、その光学系の構成には種々の変更が可能であり、本発明は、本実施形態例の仕様に限定されるものではない。また、本実施形態例では粒径分布が対数正規分布を持つと仮定し解析解を求めたが、これに限られるものではない。その他の手法で求めた解析解のデータベースを予め算出部となるコンピュータに保持する構成としてもよい。

[0112] また、本実施形態例では、光学レンズ 3 を一枚の凸レンズで構成する例としているが、複数のレンズを組み合わせたレンズ群で構成する例としてもよい。また光学レンズ 3 は、本実施形態例に示した凸レンズ以外にも、光の光路を調整するものであれば種々適用可能であり、例えば、凹レンズ又はシリンドリカルレンズで構成する例としてもよい。凹レンズを用いた場合、光は拡散する。光を拡散すれば光のエネルギー密度は低下するものの、広い領域に存在する粒子の計測が可能となる。シリンドリカルレンズを用いた場合、光はシート状に広がる。シート光を生成すれば、ある平面上に存在する粒子の 2 次元計測が可能となる。シート光を順次移動しながら計測を実施すれば、空間中に存在する粒子の 3 次元計測が可能となる。凹レンズの場合も、シリンドリカルレンズの場合も、複数のレンズを組み合わせたレンズ群で構成する例としてもよい。

[0113] また、本実施形態例では、被計測粒子群 4 を石英セル 7 内に封入する例としたが、例えば火炎中で生成されるすす粒子や、加湿器などで生成される微細水滴の粒径計測も可能である。その場合には、空気中の粒子にレーザ光を照射する構成とすればよい。また、本実施形態例では、複数の被計測粒子からなる被計測粒子群 4 を被計測物として準備したが、例えば 1 つの粒子を計測することも可能である。

[0114] 以下に、光学レンズの構成と被計測粒子（被計測粒子群）を配置する構成を異ならせた例を本実施形態例における変形例として説明する。

[0115] [変形例]

図15は、変形例における粒径計測装置20の概略構成図である。図15において図6A、Bに対応する部分には同一符号を付し重複説明を省略する。

[0116] 変形例では、図15に示すように、光学レンズとしてシリンドリカルレンズ23を用い、光源から射出されるレーザ光 L_1 を、シリンドリカルレンズ23にて光がシート状に形成されたシート光24としている。この場合、シート光24は、例えば、CCDカメラで構成される散乱光検出装置5の観察画面に対して平行な面を有するように形成される。また、本実施形態例では、被計測粒子発生源21をシート光24のシート面に沿った面上に配置し、その被計測粒子発生源21から、所望の被計測粒子群22をシート光24の面に沿うように発生する構成としている。被計測粒子発生源21からは、被計測粒子群22がシート光24の面内に到達するように発生されている。

[0117] 変形例では、発生された被計測粒子群22と、シート光24との交わる領域において、散乱光が発生し、その散乱光が、2次元的に散乱光検出装置5により検出される。そして、上述の実施形態例と同様の方法により、被計測粒子群22の粒径が計測される。

[0118] シリンドリカルレンズ23を用いてレーザ光 L_1 をシート光24とすることにより、被計測粒子群22の2次元平面上での状態を観察することが可能となる。また、上述したが、変形例を用いることにより、シート光24を順次移動しながら計測を実施すれば、空間中に存在する粒子の3次元計測が可能となる。シリンドリカルレンズ23の場合も、複数のレンズを組み合わせたレンズ群で構成する例としてもよい。

符号の説明

- [0119] 1・・・粒径計測装置
2（2A，2B，2C）・・・光源
3・・・光学レンズ
4・・・被計測粒子群

5 . . . 散乱光検出装置

6 . . . コンピュータ

7 . . . 石英セル

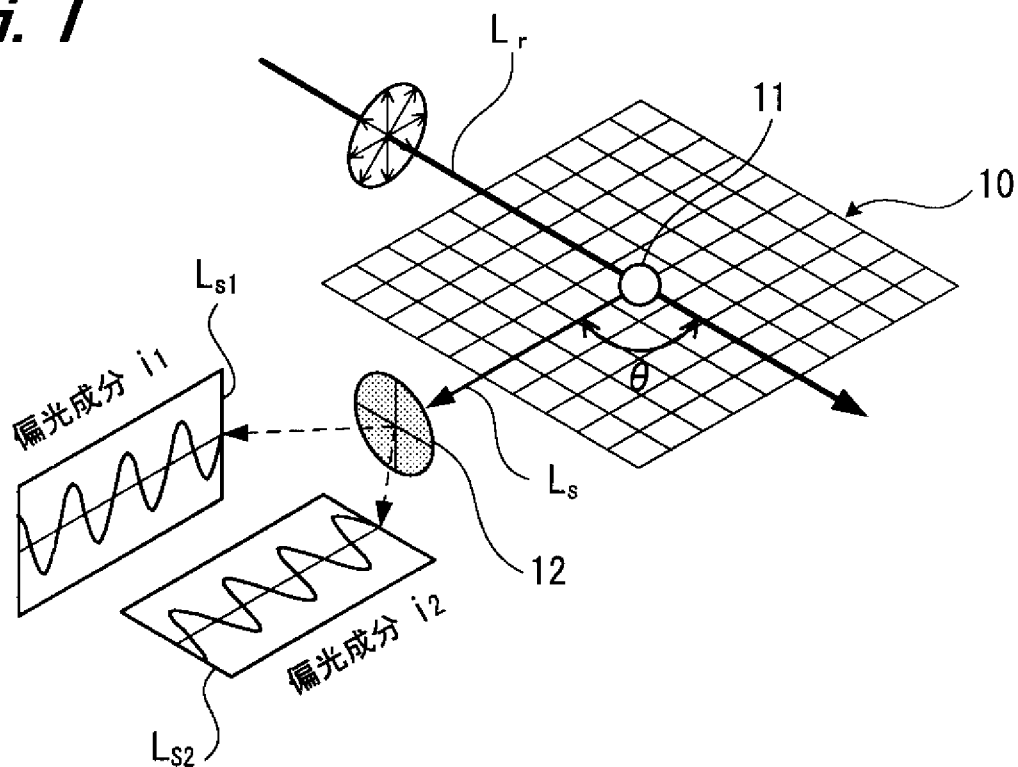
請求の範囲

- [請求項1] 複数の異なる波長の光を浮遊する被計測粒子又は被計測粒子群に照射するために射出する光源と、
被計測粒子又は被計測粒子群に前記光が照射されることによって散乱された散乱光のうち、第1の偏波面を有する散乱光からなる第1の散乱光と、前記第1の偏波面に垂直な第2の偏波面を有する散乱光からなる第2の散乱光を、前記光源から射出される光の波長を変えながら検出する散乱光検出装置と、
前記散乱光検出装置で検出された前記第1の散乱光と前記第2の散乱光との輝度を数値化し、数値化された前記第1の散乱光の輝度と前記第2の散乱光の輝度の比による偏光比を前記光源から射出される光の波長毎に算出し、波長毎に得られた複数の偏光比と予め保持している解析解とを比較することにより、前記被計測粒子又は前記被計測粒子群の粒径を算出する算出部と、
を有して構成される粒径計測装置。
- [請求項2] 前記光源からは、3つの異なる波長のレーザ光が射出され、前記偏光比は3つの異なる波長毎に算出される、
請求項1に記載の粒径計測装置。
- [請求項3] 前記光源から射出されるレーザ光は、直線偏光である、
請求項1又は2に記載の粒径計測装置。
- [請求項4] 前記光源と前記被計測粒子又は前記被計測粒子との間の領域であって、前記光源から射出される光の光軸上には、前記光の光路を調整する光学レンズが構成されている
請求項1～3のいずれかに記載の粒径計測装置。
- [請求項5] 前記散乱光検出装置は、前記光源から射出される光の光軸に対して、散乱角度 50° ～ 80° で散乱される散乱光を検出できる位置に配置されている、
請求項1～4のいずれかに記載の粒径計測装置。

- [請求項6] 光源から波長の異なる複数の光を射出し、浮遊する被計測粒子又は被計測粒子群に照射する工程と、
- 前記被計測粒子によって散乱された散乱光のうち、第1の偏波面を有する散乱光からなる第1の散乱光と、前記第1の偏波面に垂直な第2の偏波面を有する散乱光からなる第2の散乱光を前記光の波長を異ならせながら所望の散乱光検出装置で検出する工程と、
- 前記散乱光検出装置で検出された前記第1の散乱光と前記第2の散乱光との輝度を数値化し、数値化された前記第1の散乱光の輝度と前記第2の散乱光の輝度の比による偏光比を、前記光源から射出された光の波長毎に算出し、波長毎に得られた複数の偏光比と理論的に導出された解析解とを比較することにより、前記被計測粒子の粒径を算出する工程と、
- を含む粒径計測方法。
- [請求項7] 前記光源からは3つの異なる波長の光を射出し、前記偏光比は3つの異なる波長毎に算出する、
- 請求項6に記載の粒径計測方法。
- [請求項8] 前記光源から射出される光は、直線偏光である、
- 請求項6又は7に記載の粒径計測方法。
- [請求項9] 前記光源と前記被計測粒子又は前記被計測粒子との間の領域であって、前記光源から射出される光の光軸上には、前記光の光路を調整する光学レンズが構成されている
- 請求項6～8のいずれかに記載の粒径計測方法。
- [請求項10] 前記散乱光検出装置での検出は、前記光源から射出される光の光軸に対して散乱角度 50° ～ 80° で散乱される散乱光を検出できる位置から行う、
- 請求項6～9のいずれかに記載の粒径計測方法。

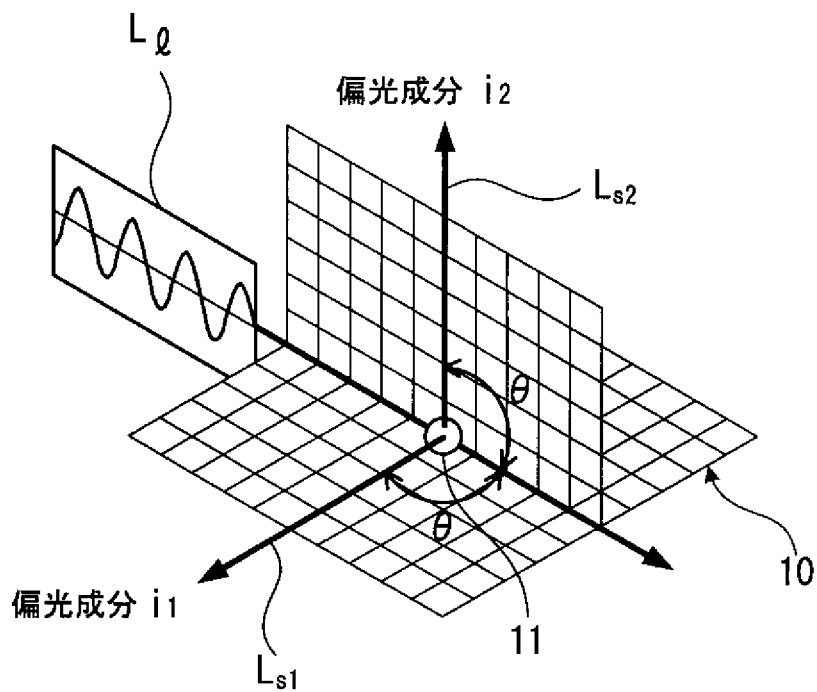
[图1]

FIG. 1



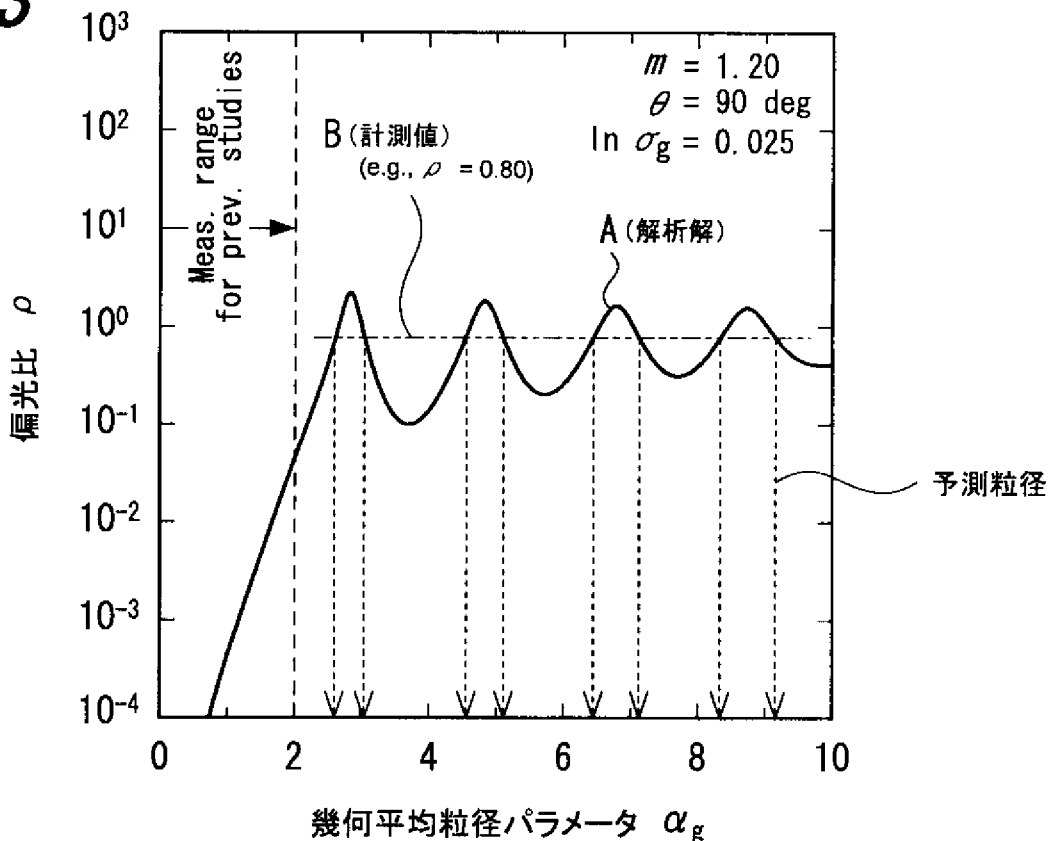
[图2]

FIG. 2



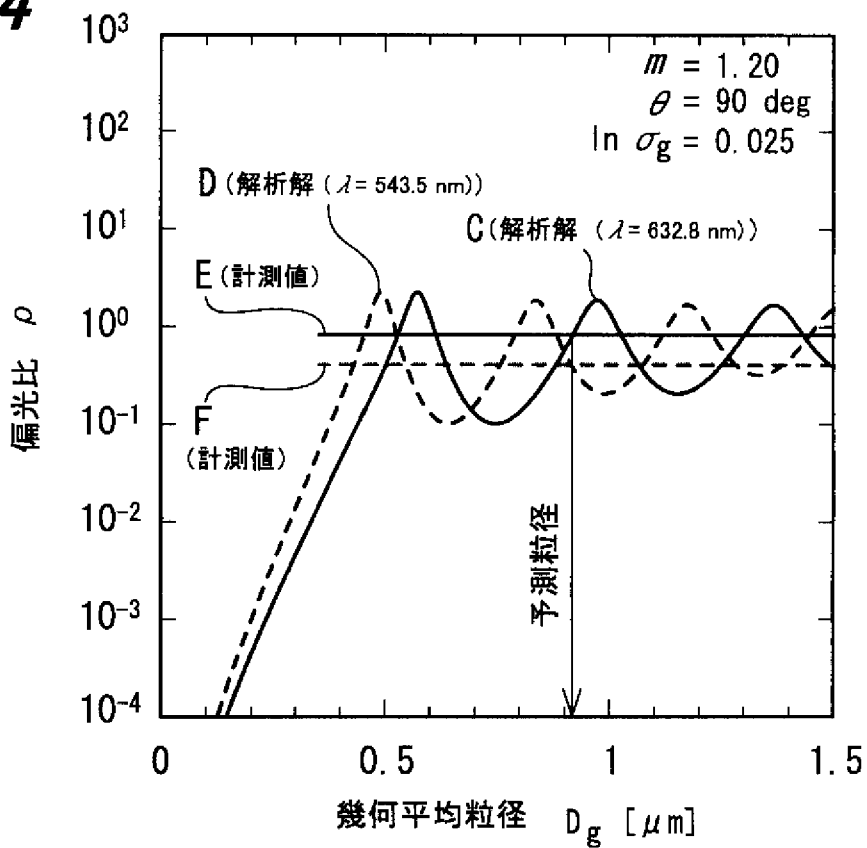
[図3]

FIG. 3



[図4]

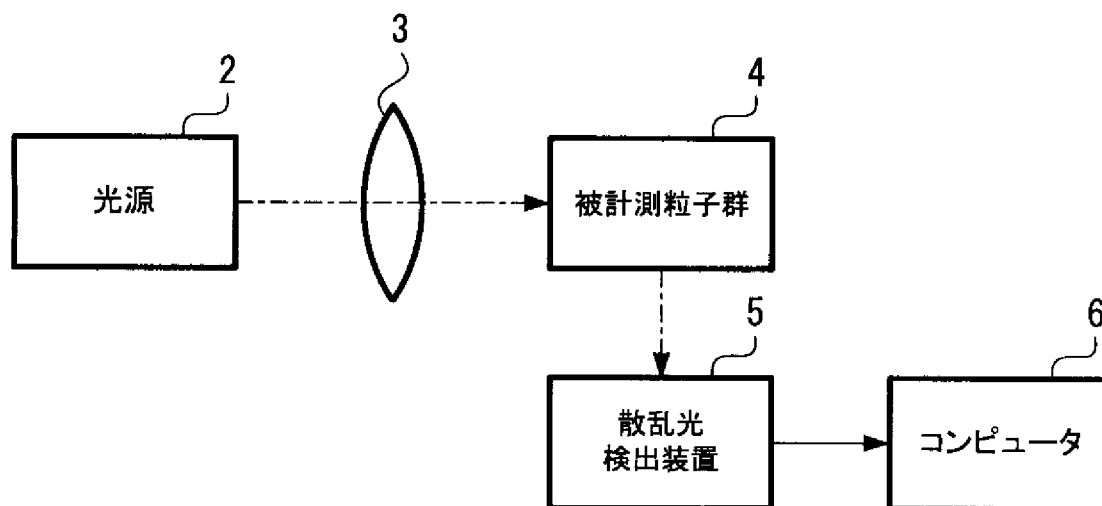
FIG. 4



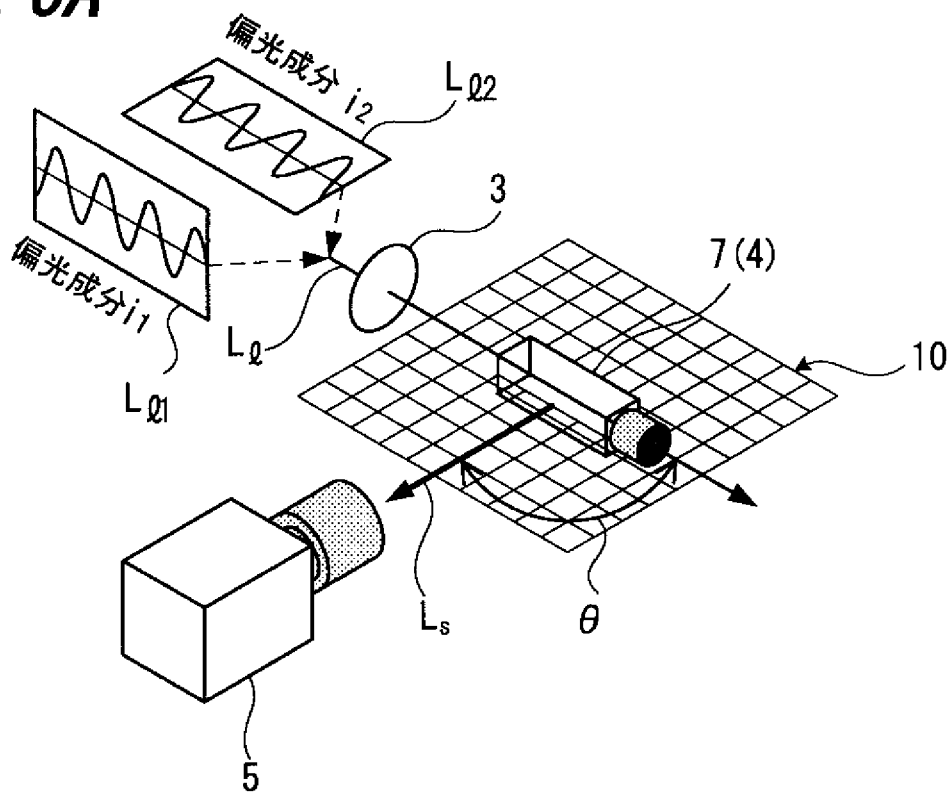
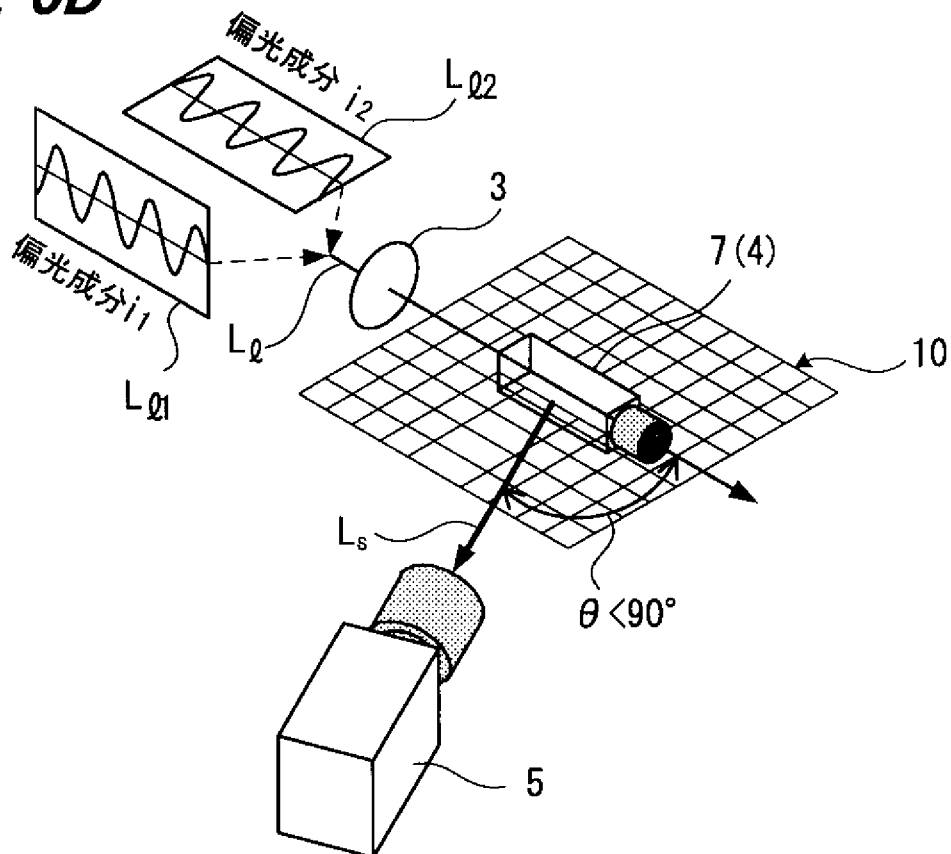
[図5]

FIG. 5

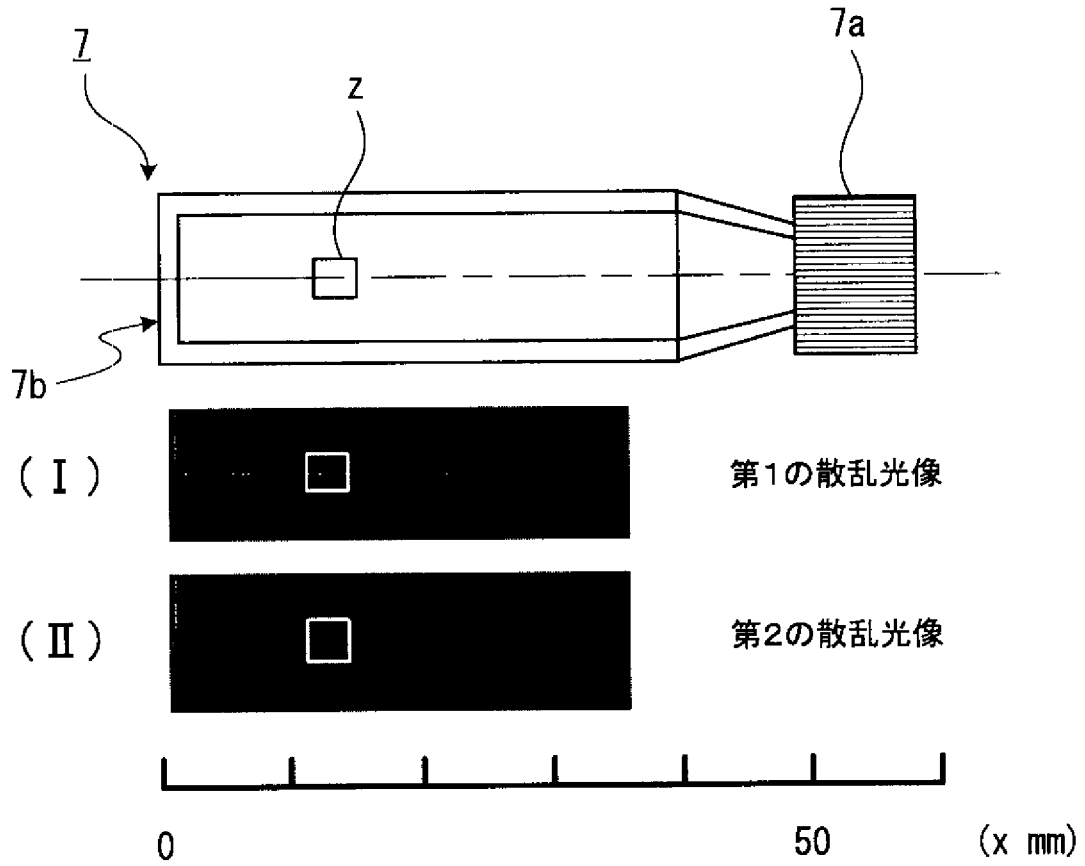
1



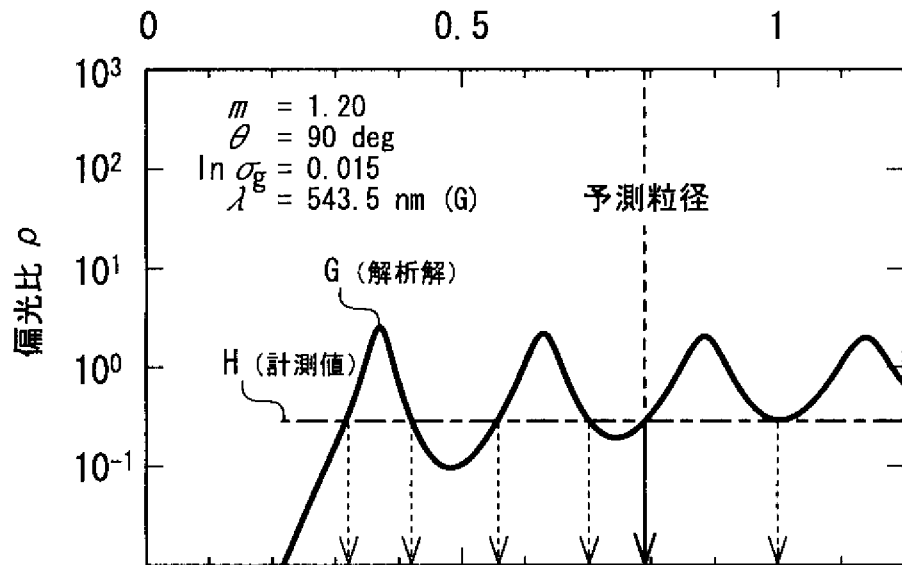
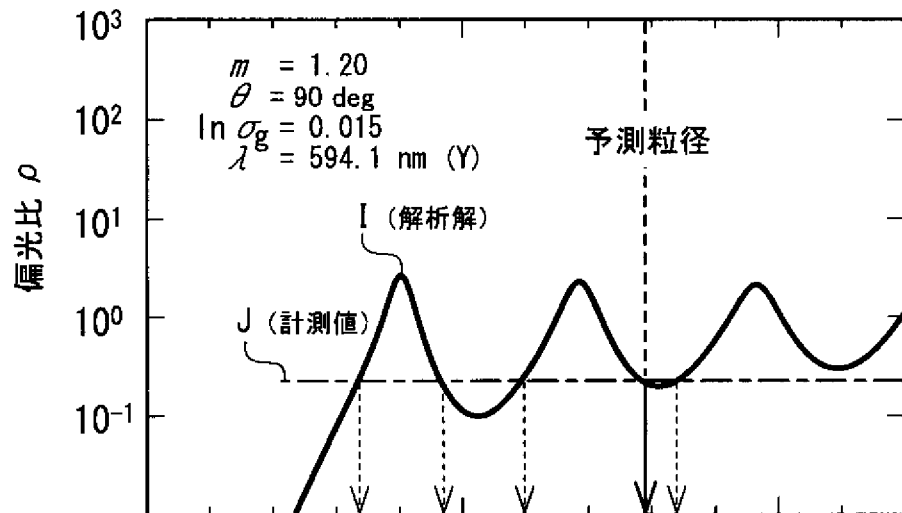
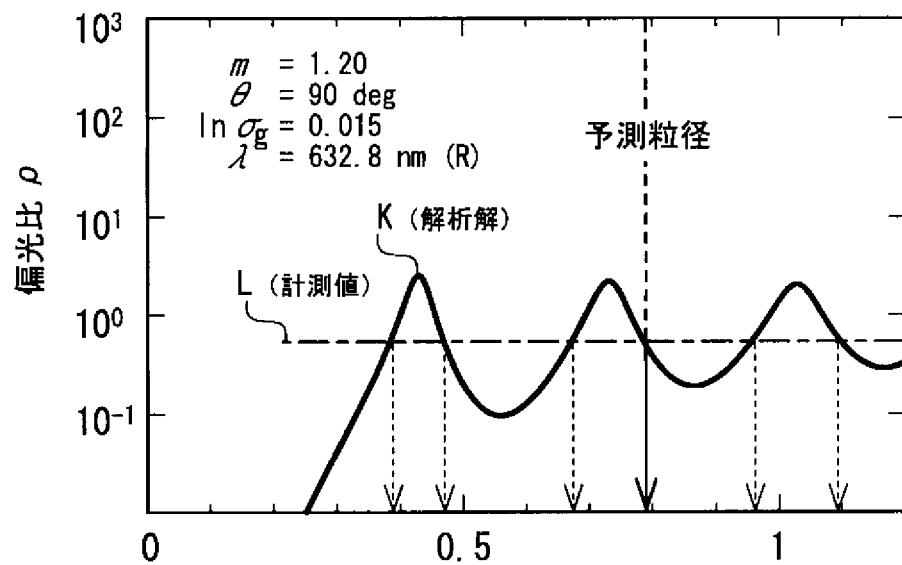
[图6]

FIG. 6A**FIG. 6B**

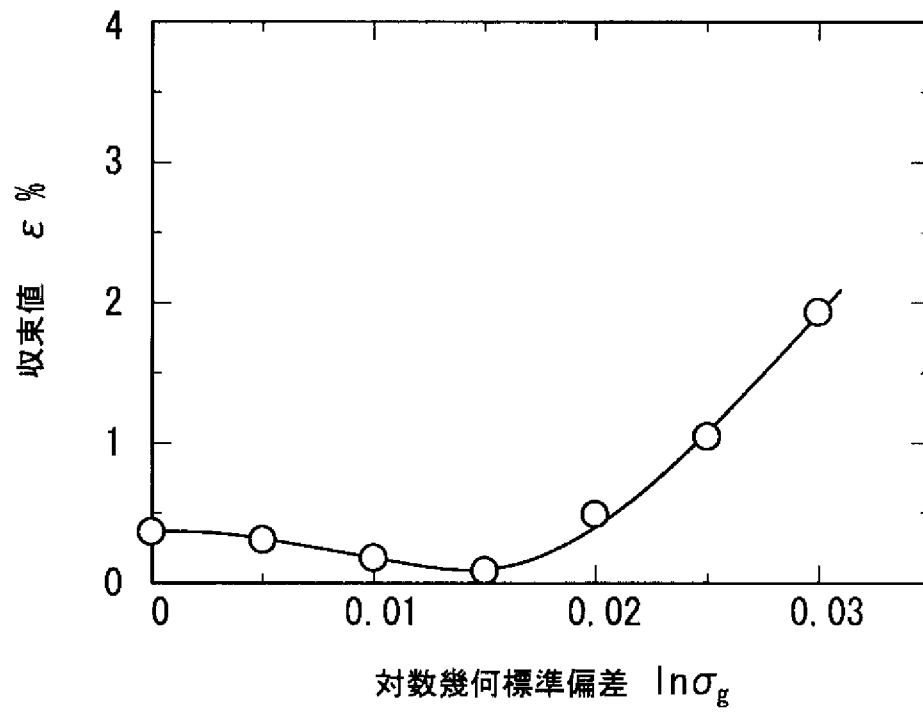
[図7]

FIG. 7

[図8]

FIG. 8A**FIG. 8B****FIG. 8C**幾何平均粒径 $D_g [\mu\text{m}]$

[図9]

FIG. 9

[図10]

FIG. 10A

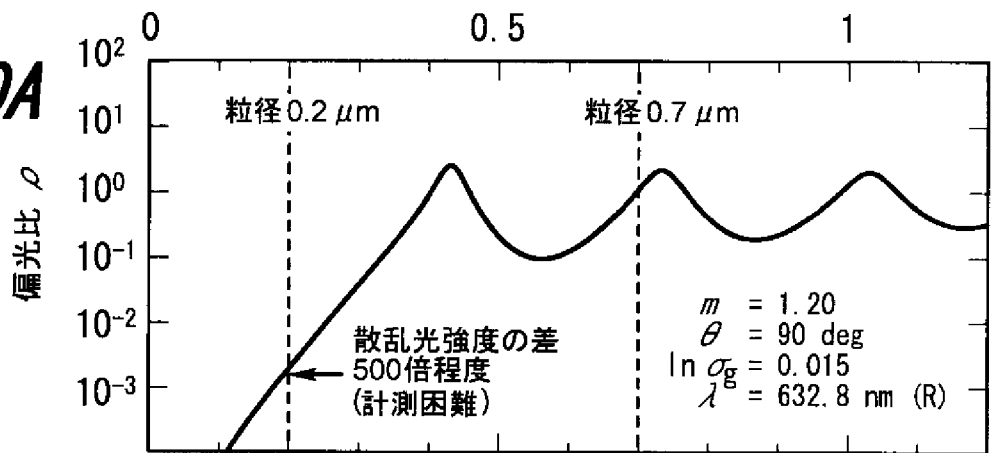


FIG. 10B

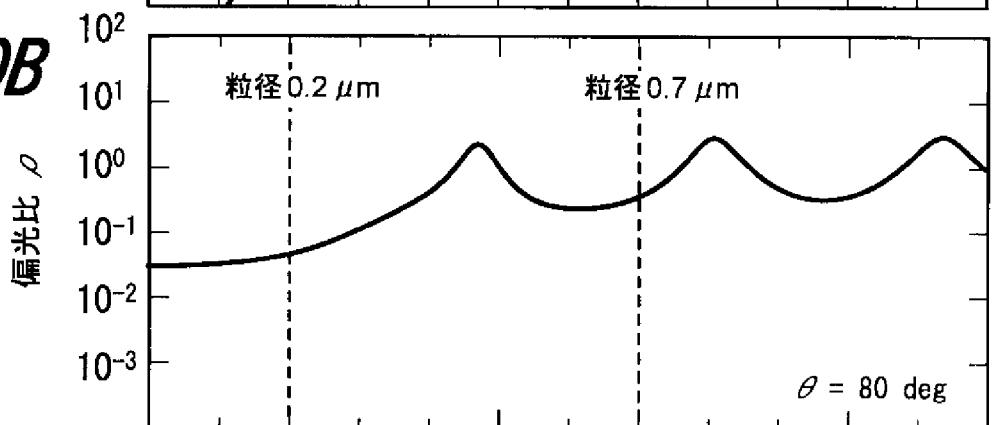


FIG. 10C

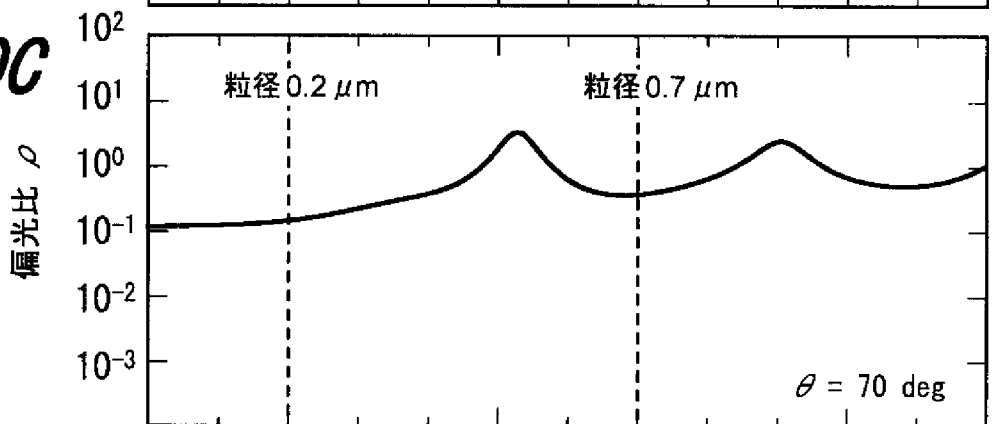
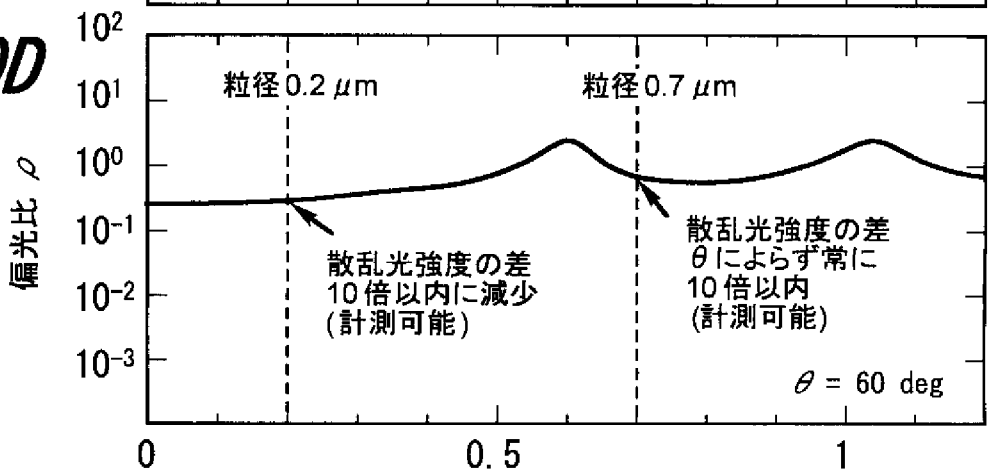


FIG. 10D



幾何平均粒径 D_g [μm]

[図11]

FIG. 11A

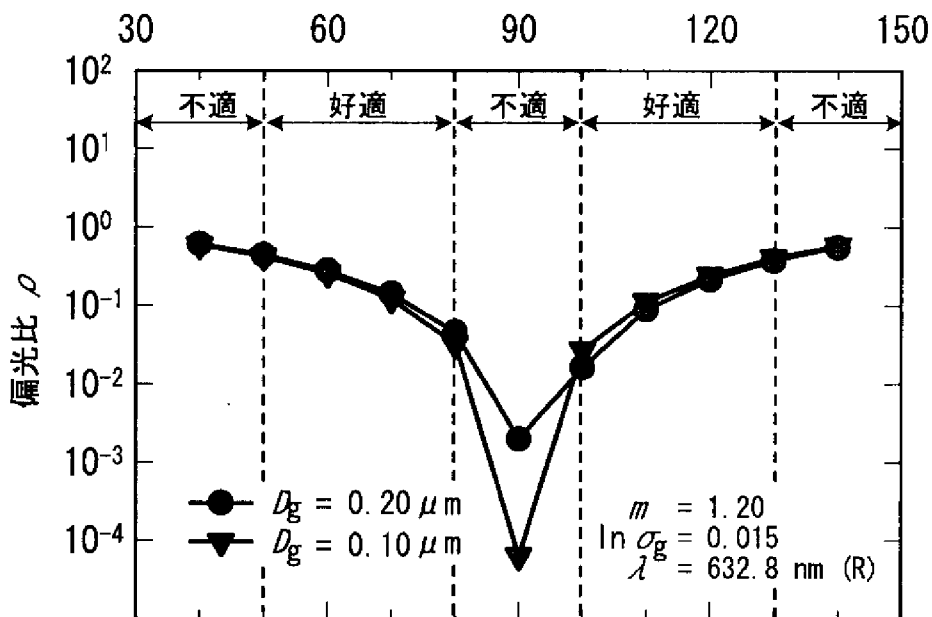
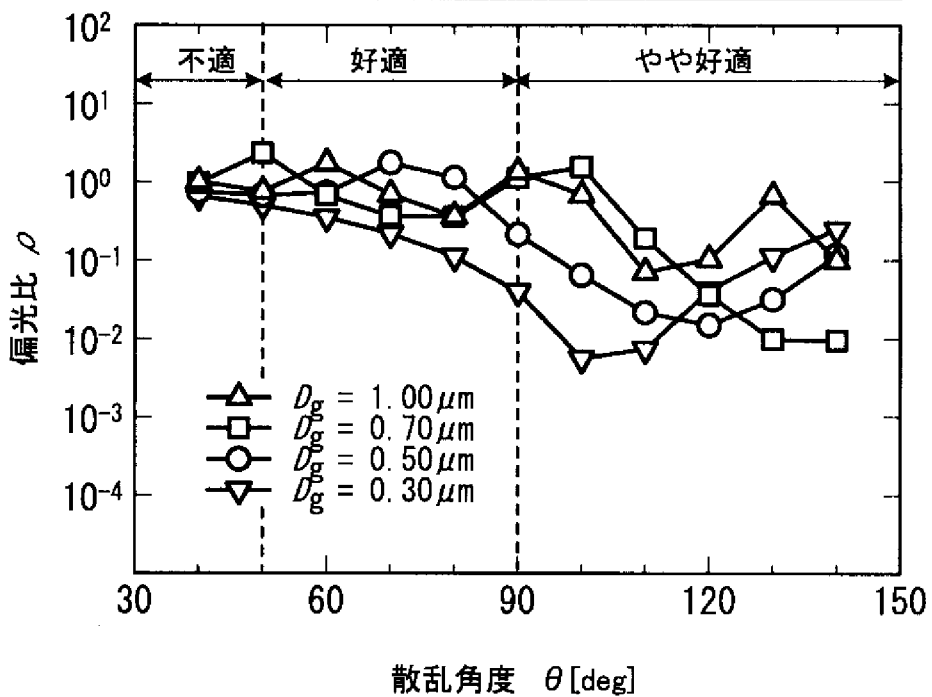
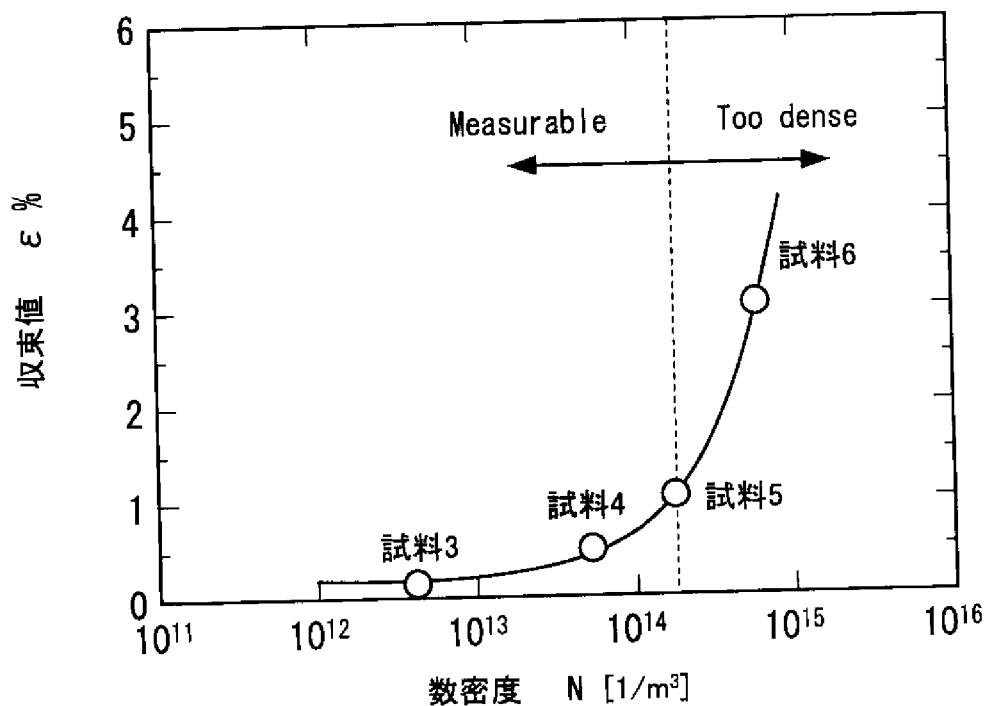


FIG. 11B



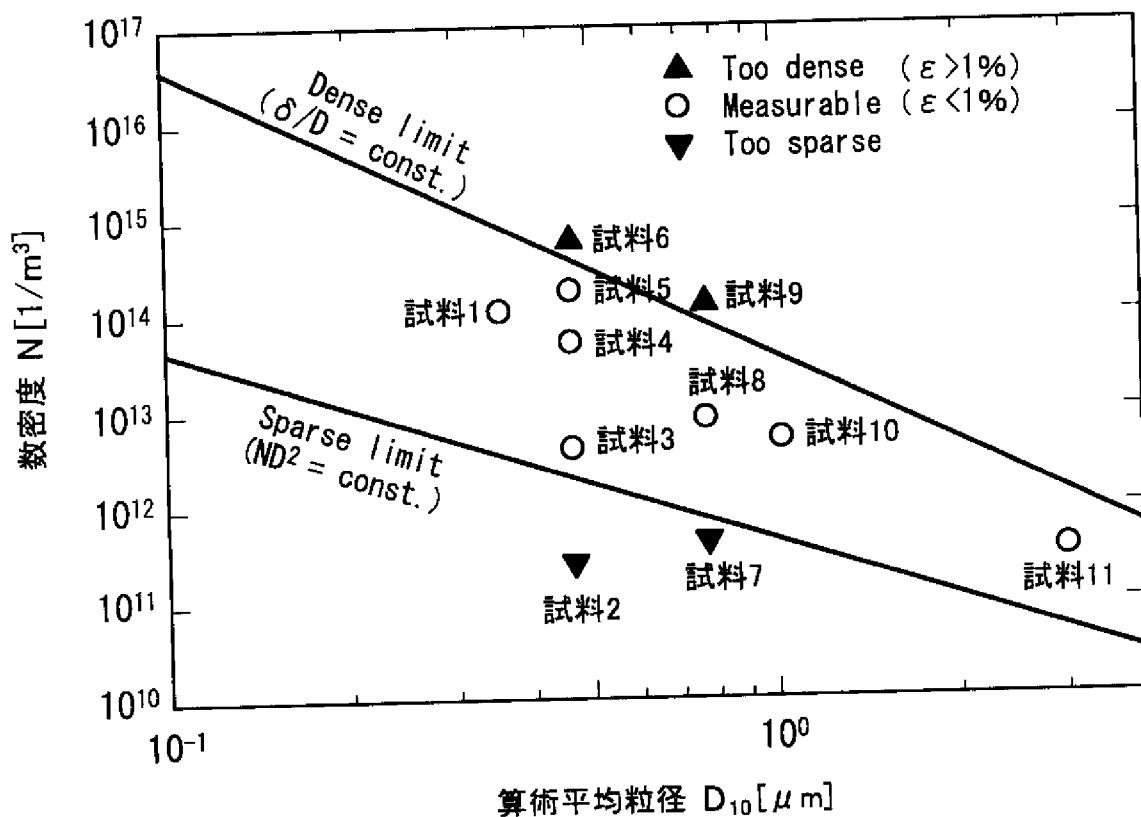
[図12]

FIG. 12



[図13]

FIG. 13



[図14]

FIG. 14A

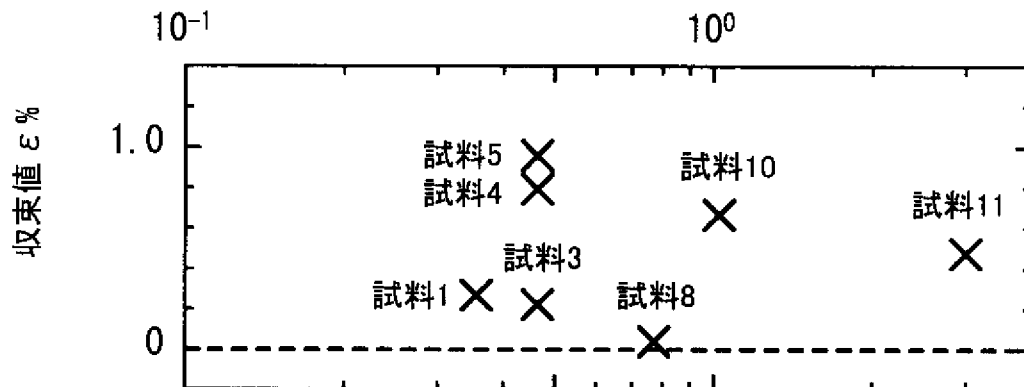
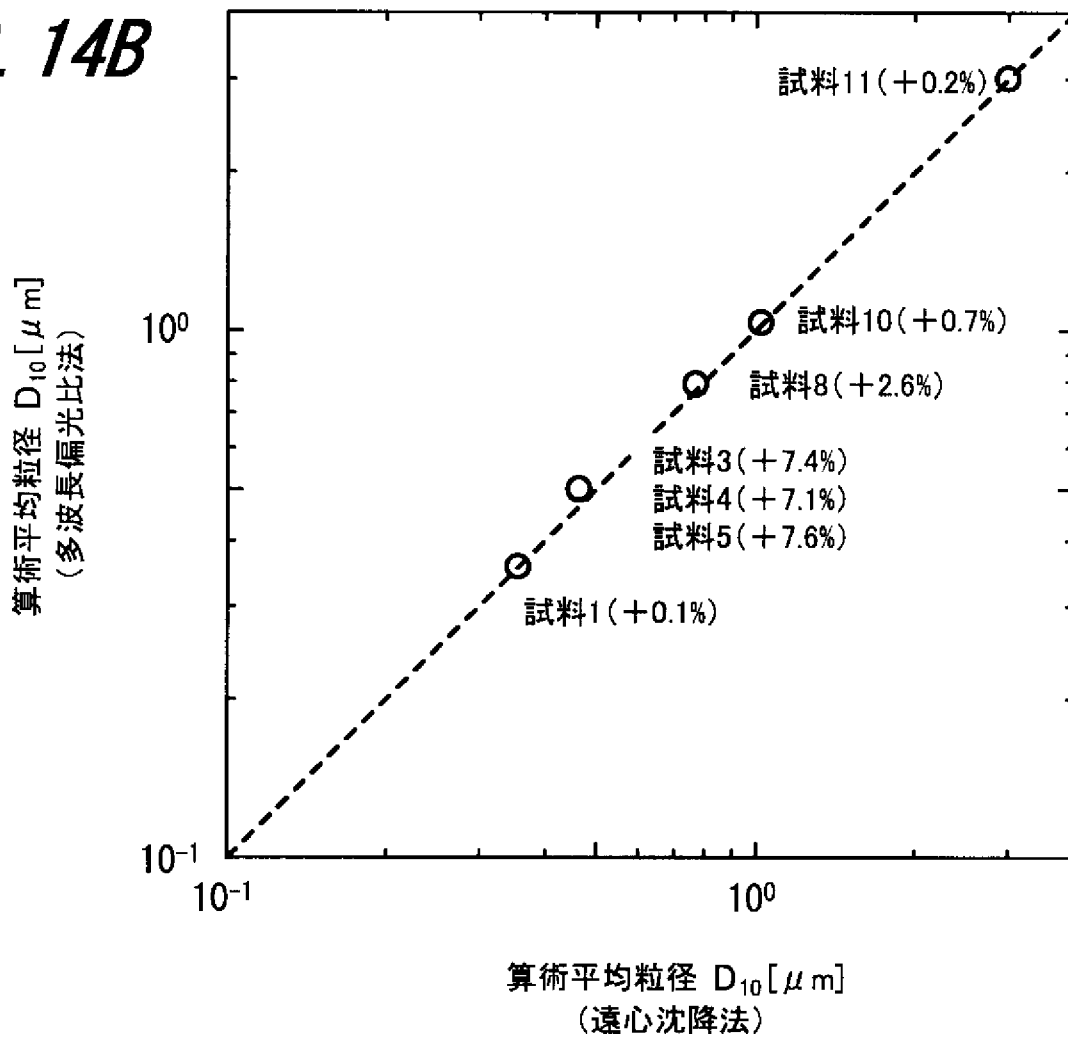
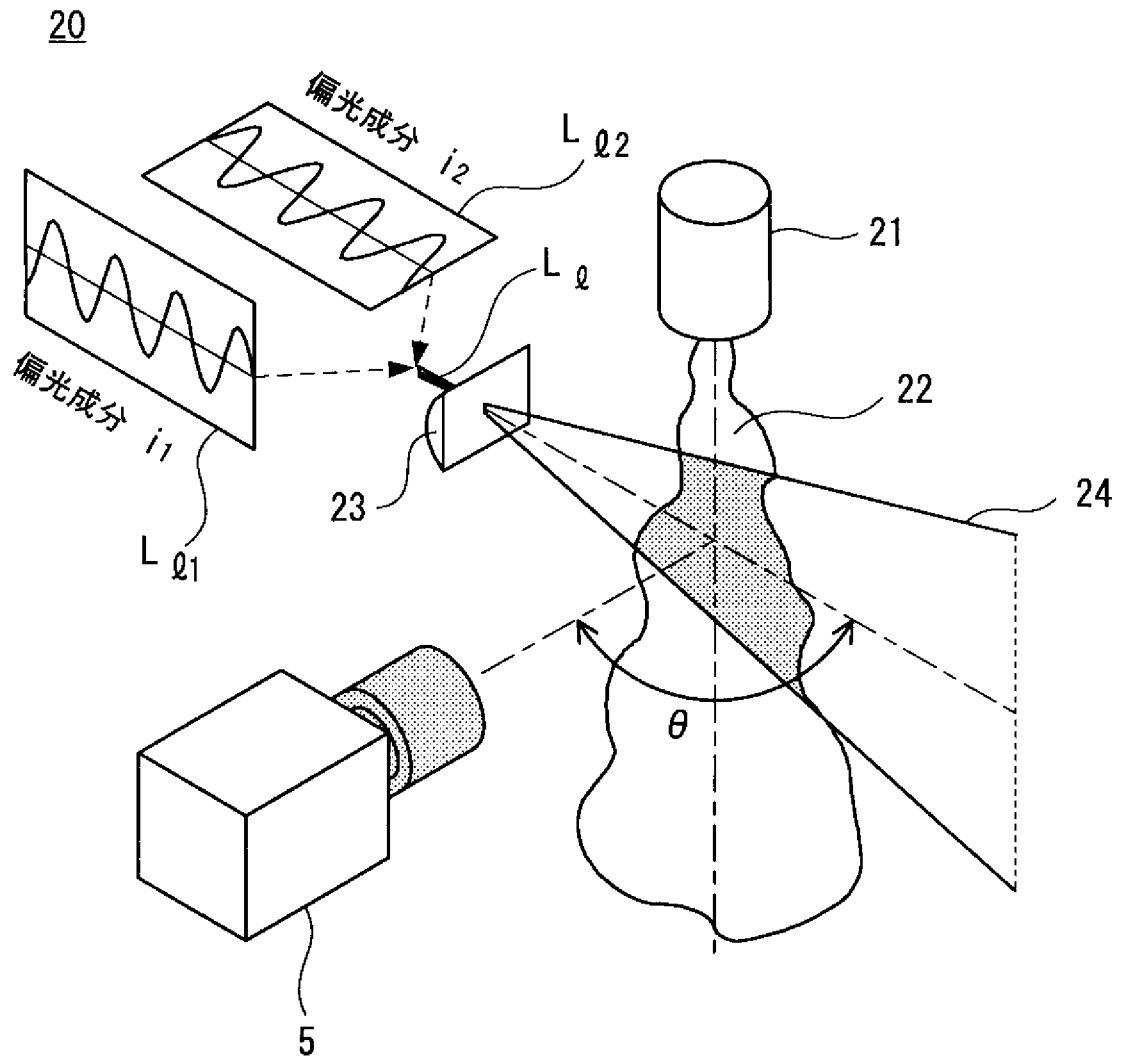


FIG. 14B



[図15]

FIG. 15

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2010/061188

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

G01N15/02 (2006.01) i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

G01N15/00-15/14

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2010
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2010	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2010

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

JSTPlus/JMEDPlus/JST7580 (JDreamII)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	Akinobu EBATA et al., "Particle Diameter Measurement of Sub-Micron Particles Using Polarization Ratio of Scattered Lights", Journal of the Visualization Society of Japan, 01 July 2009 (01.07.2009), vol.29, Suppl. no.1, pages 145 to 148	1-10
A	JP 2930710 B2 (Coulter Electronics of New England, Inc.), 03 August 1999 (03.08.1999), entire text; all drawings & US 4953978 A & EP 413812 A & WO 1990/010215 A1 & DE 69028588 C & AT 143138 E	1-10

Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search 21 September, 2010 (21.09.10)	Date of mailing of the international search report 05 October, 2010 (05.10.10)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2010/061188

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 1-284738 A (Director-General of National Aerospace Laboratory of Science and Technology Agency), 16 November 1989 (16.11.1989), entire text; all drawings (Family: none)	1-10
A	Manabu SHIMADA et al., "Measurement of size and spatial distribution of fine particles by 2-color laser light scattering method", Annual Technical Meeting on Air Cleaning and Contamination Control Program Yokoshu, 23 April 1999 (23.04.1999), Dai 17 Kai, pages 68 to 70	1-10
A	JP 3-163332 A (Mitsubishi Electric Corp.), 15 July 1991 (15.07.1991), entire text; all drawings (Family: none)	1-10
A	JP 2-93344 A (Kowa Co., Ltd.), 04 April 1990 (04.04.1990), page 2, upper left column, line 17 to upper right column, line 9 & US 5135306 A & EP 361770 A2	1-10

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. G01N15/02(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. G01N15/00 - 15/14

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2010年
日本国実用新案登録公報	1996-2010年
日本国登録実用新案公報	1994-2010年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

JSTPlus/JMEDPlus/JST7580(JDreamII)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	江端晃暢 他, 散乱光の偏光比を用いたサブミクロン粒子の粒径計測, 可視化情報学会誌, 2009.07.01, 第29巻 Suppl. No. 1, p145 - p148	1-10
A	JP 2930710 B2 (コウルター エレクトロニクス オブ ニュー イングランド, インコーポレイテッド) 1999.08.03, 全文全図 & US 4953978 A & EP 413812 A & WO 1990/010215 A1 & DE 69028588 C & AT 143138 E	1-10

C欄の続きにも文献が列挙されている。

パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献
 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

21.09.2010

国際調査報告の発送日

05.10.2010

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)
 郵便番号100-8915
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

渡▲辺▼ 純也

2 J

3606

電話番号 03-3581-1101 内線 3252

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 1-284738 A (科学技術庁航空宇宙技術研究所長) 1989. 11. 16, 全文全図 (ファミリーなし)	1-10
A	島田学 他, 2波長レーザ光散乱法による微粒子の粒径と空間分布 の測定, 空気清浄とコンタミネーションコントロール研究大会予稿 集, 1999. 04. 23, 第17回, p68 - p70	1-10
A	JP 3-163332 A (三菱電機株式会社) 1991. 07. 15, 全文全図 (ファミリーなし)	1-10
A	JP 2-93344 A (興和株式会社) 1990. 04. 04, 第2頁左上欄第17行 ~右上欄第9行 & US 5135306 A & EP 361770 A2	1-10