

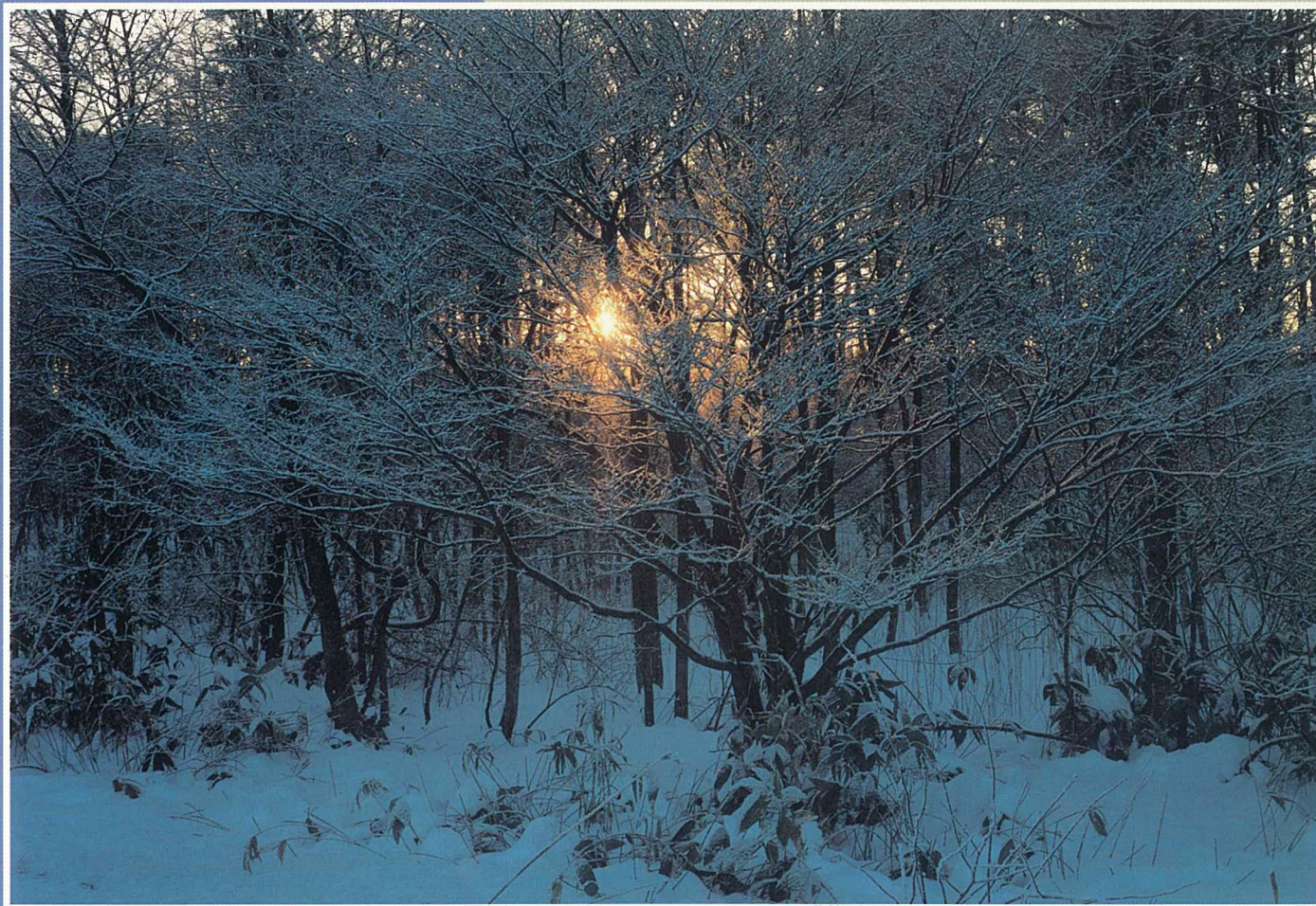
# Readout

HORIBA Technical Reports

特集

粒子をはかる

January 1992 ■ No.4



**HORIBA**



○誌名について

誌名“Readout”（リードアウト）には、「当社が創造・育成した技術を、広く世にお知らせし、多くの皆様に読み取っていただきたい」という願いが込められています。

○表紙写真「冬」

撮影：松井秀雄氏（二科会写真部関西支部所属）  
枝を錯綜させる樹々と雪，射しこむ光の中に冬の静けさをとらえています。

- 
- 巻頭言 わが社の研究開発に思う 石田耕三———3
- 特別寄稿 光と物質の相互作用  
—光学定数の由来について— 中井祥夫———4  
粒度分布測定はなぜ難しいか 椿 淳一郎———12
- .....
- 特集論文 微粒子計測関連製品の現状と課題 岸本俊彦———17  
自然/遠心沈降式粒度分布測定装置 CAPA-700 東川喜昭———23  
レーザ回折/散乱式粒度分布測定装置 LA-700 湯原義公・鈴木哲也———30  
薬液用微粒子カウンター PLCA-700 久保良宏———37  
粒度分布測定における分散媒の効果 千代光彦———43  
時間分解蛍光分光光度計を用いた蛍光偏光解消による  
分子の大きさの測定 南 孝明———48  
エネルギー分散形X線マイクロアナライザを使った粒子の分析  
坂東 篤・大塚謙———53
- .....
- 特別寄稿 人間社会の発展を担う  
「計測科学」のすすめ 荻屋公明———58
- .....
- 一般論文 汎用水質計の変換器と検出器 α-900シリーズ  
山内 進・鈴木理一郎———66  
運行管理システム HIT-500 中西保之———73  
「人の動き」センサー：フレネルアーデット 操谷俊之・高田秀次———83
- 研究施設紹介 研究開発用多目的クリーンルーム 大槻久仁夫———91
- ◇一口メモ 自然/遠心沈降式粒度分布測定装置 CAPA シリーズの保守  
—トラブル発生を予防する— 田中輝夫———95
- ◇特許メモ ———96
- ◇社外技術発表リスト(1991年5月~1991年10月) ———98
- ◇バックナンバー掲載記事 ———100
-

□Foreword	Some Thoughts on R & D at Horiba Kozo Ishida—————3
□Guest Forum	Interaction of Light with Medium —Origin of Optical Constants— Yoshio Nakai—————4 Why is Particle-Size Analysis so Difficult? Junichiro Tsubaki—————12
.....	
●Feature Article	Topics on State-of-The-Art Equipment for the Measurement of Minute Particles Toshihiko Kishimoto—————17 The CAPA-700 Particle-Size Distribution Analyzer Using Photo-Sedimentation with Gravitational and Centrifugal Acceleration Yoshiaki Togawa—————23 Laser Scattering Particle-Size Distribution Analyzer LA-700 Yoshihito Yuhara, Tetsuya Suzuki—————30 The Model PLCA-700 Liquid-Particle Counter Yoshihiro Kubo—————37 Effects of the Dispersing Medium on the Measurement of Particle-Size Distribution Mitsuhiko Chishiro—————43 Determination of Molecular Size by Fluorescence Depolarization Using A Time-Resolved Fluorescence Spectrometer Takaaki Minami—————48 Particle Analsis Using the Energy-Dispersive X-ray Microanalyzer Atsushi Bando, Kenichi Ohbori—————53
.....	
□Guest Forum	Recomendation of Masurement Science —orientates The Development of Human Society— Komyo Kariya—————58
.....	
●Selected Topics	Transmitter and Probes for the $\alpha$ -900 Series All-Purpose Water Quality Meter Susumu Yamauchi, Riichiro Suzuki—————66 Intelligent Tachometer HIT-500 Yasuyuki Nakanishi—————73 The Fresnel-IRDET Human-Movement Sensor Toshiyuki Kuritani, Shuji Takada—————83
●New Facility	Horiba's Multi-Purpose Clean Room for R & D Kunio Otsuki—————91
◇Short Note	Maintenance Procedure of the CAPA Series Particle-Size Distribution Analyzer Teruo Tanaka—————95
◇Patents	—————96
◇Technical Reports List	—————98
◇Articles List of Readout No. 2 and 3	—————100



# わが社の研究開発に思う

## Some Thoughts on R & D at Horiba

21世紀を目前にして、我々を取りまく企業環境は加速度的に厳しくなってきました。それぞれの企業は、ある時には採算を度外視した研究開発投資により、サバイバルの糸口を探そうとしています。

わが社は、これまで限られた人材、費用を集中的に研究開発に振り向け、「キリの理論」で、いわゆるニッチ商品を開発してきました。これらの商品の基本要素部品は必ず社内開発・社内生産を基本とすることで優れた品質を維持し、世界的にも市場占有率の高い商品群を持つ開発指向型の分析計専門メーカーとして発展してきました。しかし、最近では顧客ニーズの高度化、多様化が急速に進んできており、これまでの研究開発指向の考え方だけではこれからの先端ニーズ、技術を反映したタイムリーな商品開発能力を維持することは難しく、わが社の21世紀への成長にとって不安要素ともなってきました。

そこでわが社では、中長期的な視野に立った市場指向型企业への体質変換を目指した営業・開発・生産の基盤の整備、機能改革をはかる中で、図に示すような市場ニーズから遊離しない新しい研究開発の体制、すなわち市場ニーズを中心にマーケティング-研究-開発-設計-生産-営業のサークルをイメージし、かつそれぞれの機能をしっかりとリンクした「市場指向型“もの造り”研究開発体制」の強化をはかって行きたいと考えています。

一方では、これまでわが社の中で培ってきた一つの強みでもある、技術屋のロマンや自己主張、感性を前面に出した商品開発が可能な創造性豊かな研究開発環境を作っていくことが大切であると思います。さらには、最先端の分析計測技術を常に追求し、ユーザーニーズに的確に応えられよう我々の受信感度を高める不断の努力と、同時に我々が積極的な情報の発信源となり、ニーズとシーズの融合基地としての機能を果たせるような研究開発活動を続けて行きたいと思う次第です。

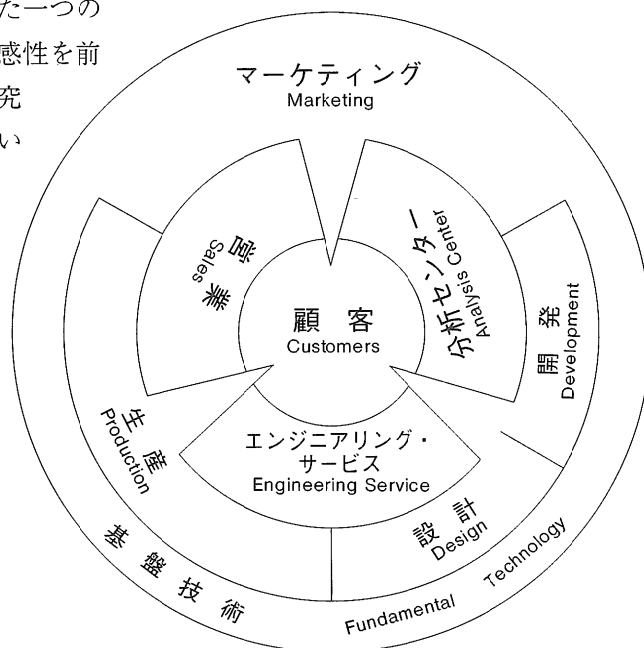


常務取締役

石田 耕三

工学博士

Kozo Ishida, Dr. Eng.  
Managing Director



市場指向型“もの造り”研究開発体制  
Research and Development for Market-Oriented Products

# 光と物質の相互作用

—光学定数の由来について—

Interaction of Light with Medium

—Origin of Optical Constants—

## はじめに

光と物質の相互作用といえば光学定数のスペクトルに関する物理学に尽きると言うことができます。つまり、気体、液体、固体等の各種の媒質について光の屈折率や吸収係数などの光学定数の波長による変化が測定できれば、すべての情報が揃うわけです。他方、電磁気学の側からいえば、物質の誘電率と誘電損失が電磁波の周波数によってどの様に変化するかが測定できればよいわけです。ご承知のように19世紀の終り頃、マクスウェルの偉大な業績によって光とは電磁波のことであると判明しましたので、以下ではこれらの光学定数を電磁気学的な定数であらわしてみようと思えます。

## 1. 光の電磁気学

よく知られているように媒質中の電磁波はマクスウェルの電磁方程式で記述されます。マクスウェルの電磁方程式は電気及び磁気に関するガウスの定理とアンペールの法則、ファラデーの法則に基づく四つの方程式からなっており、これらから電磁波に関する有名な波動方程式が導かれます。マクスウェルの最大の業績は、光が電磁波の一種で、しかも厳密に横波として媒質中を進むということを知ったこととあります。ファインマンの有名な教科書から言葉を借りますと「恐らく19世紀を通じての物理学の歴史の中で最も劇的な瞬間は、1860年代のある日、J.C.マクスウェルが電気と磁気の法則と光の性質に関する法則とを結合したときに訪れた」ものであります。(ファインマン物理学 II, p.24, 岩波書店, 1988)

真空中の光の速度を $c$ 、絶縁媒質の屈折率を $n$ 、誘電率を $\epsilon$ とするとき、波の速度は $c/n$ にひとしく、 $n$ は $(\epsilon)^{1/2}$ に等しい量です。透明でない媒質中では波は進行すると共にエネルギーを失うような減衰波となります。減衰の仕方は波の振動数によっていろいろと変化します。他方、誘電率が周波数とともに変化したり、屈折率が波長とともに変化する様子は分散とよばれます。分散には正常分散と異常分散とがありますが、これらについては後でNaClを例に取り上げて少し詳しく説明します。

実験からは媒質の誘電率と電気伝導率が求まりますから、それらの値から見積もることの出来る屈折率と吸収係数の大きさが実測の結果と一致するか否かを試すことができるはずであります。ところがマクスウェルの理論が出たとき、ただちにこの様なチェックをするための実測がされましたが理論と実験はまったく一致しませんでした。実はこの不一致こそ、媒質の構造をもっと詳しく知るための手がかりとなるものですが、手がかりの第一は誘電率や電気伝導率が周波数によって変化する



京都大学名誉教授

中井祥夫

Yoshio Nakai, Dr.Sci.

理学博士

京都産業大学講師

堀場製作所顧問

〈略歴〉

1947年 京都大学理学部卒業

1957年 同教養部助教授

1959~61年 米国ロチェスター大  
学研究員

1967年 京都大学理学部教授

1990年 同退官

〈研究分野〉

物性光学

真空紫外固体分光学

シンクロトロン放射分光光学

〈研究業績〉

アルカリハライドを中心とする  
絶縁体結晶における色中心ない  
し励起子の実験的研究

H. フレーリッヒ著『誘電体論』,

B. ロッシ著『光学』(吉岡書店)

共訳

〈趣味〉

園芸と音楽鑑賞。

(時折、年末には第九の合唱にま  
ぎれこむ癖あり)

家族は妻、娘2人(長女、三女)、

雑種犬1匹

と考えることであります。筆者の専門である物性光学とか固体電子論の重要な部分  
はもっぱら誘電率や電気伝導率の周波数による変化の原因をつきとめることにある  
といっても過言ではありません。

## 2. 分散と吸収

分散や吸収の光学は殆どがローレンツ(Lorentz)とドゥルデー(Drude)の議論に基  
づいています。一般に絶縁体における束縛電子はローレンツ・モデルで記述され、  
金属の自由電子はドゥルデー・モデルで記述されます。両者とも非常に簡単で且つ  
大胆な古典的モデルであるのに、固体の光学的性質を議論するときに取り分け役に  
立ち、そこに出てくる物理量に関して適当な読み替えをしてやれば基本的な考え方は  
まったく変えること無くそのまま量子論へ移行して一般化出来ます。この点は大  
変見事なモデルであると言うほかありません。

## 3. ローレンツ振動子

原子や分子に電場がかかると、なかの電子の平衡位置がずれることによって分極  
します。これらの電子に対しては元の位置からのずれ  $x$  に比例した復元力  $(ax)$  が  
働いていると考えます。電子の電荷を  $-e$  として電場  $E$  から受ける力  $(-eE)$  が復元  
力  $(ax)$  と釣り合うと考えますと  $x = (-eE/a)$  となりますから、この分極によって誘  
起される双極子能率は

$$-ex = (e^2 E/a) = \hat{\alpha} E$$

となって誘起された双極子能率は電場  $E$  に比例することがわかります。このときの  
比例係数  $(\hat{\alpha} = e^2/a)$  は分極率とよばれる重要な物理量であります。

以上は静電場がはたらく場合の話ですが、外からの電場が振動するときは、電子  
が質量をもつ為に慣性を示すことや、電子には弾性的な復元力が働くこと以外に、  
速度に比例するような摩擦力がはたらくことを考える必要が生じます。

原子や分子の中の電子は原子核からの電氣的な引力で束縛されていると考えるの  
が普通ですが、ここでは大胆にも原子核の存在を無視して、電子は電場のないとき  
の平衡点を中心として特定のバネで繋がれて直線往復運動をするものと仮定しま  
す。量子力学の理論に基づいた原子や分子の描像によりますと、光との相互作用を  
考えるかぎり電子はあたかも上述のようなばねで支えられたときと同じ運動をする  
ものとして取り扱っても一向に構わないのです。このとき、ニュートン力学にもと  
づく電子の運動方程式は次のようになります。



$$m \frac{d^2 x}{dt^2} + m\Gamma \frac{dx}{dt} + m\omega_0^2 x = -eE$$

第二項の $\Gamma$ は減衰力の大きさに対応した係数です。第三項は電子の位置のずれ、 $x$ 、に比例した復元力を意味しています。外力 $(-eE)$ も $\Gamma$ もともにゼロのときは上式は簡単な単振動の式となり、それを解いて得られる単振動の固有振動数が $\omega_0$ であります。 $\Gamma \neq 0$ のときは減衰振動となり、 $x$ は例えば図1のような時間変化をします。

そこで、外力のもとになる電場 $E$ は $\cos$ 関数のように時間的振動をすると考えて、 $E = E_0 e^{i\omega t}$ の実数部分によってあらわされると仮定し、 $x$ の時間変化も $x = x_0 e^{i\omega t}$ の実数部分、つまり $\cos$ 関数であらわされると仮定しますと、上式の解は次のようになります。

$$x = \frac{(e/m)E}{(\omega_0^2 - \omega^2) + i\omega\Gamma}$$

すなわち、振動は図1のように減衰せず、外から加わる電場と同じ周期で、振幅一定の振動をしますが、摩擦力のため振動の位相は遅れますし、振幅は外から加える電場の角振動数 $(\omega)$ が変わるとともに大きく変化します。このとき、分極率 $\hat{\alpha}(\omega)$ は静電場のときと同様に考えて、

$$\hat{\alpha}(\omega) = \frac{e^2}{m} \cdot \frac{1}{(\omega_0^2 - \omega^2) + i\omega\Gamma} \quad \dots\dots(1)$$

となります。摩擦項 $\Gamma$ がゼロでないので分極率は複素数となります。このため、双極子能率 $p$ の振動は原子に作用した電場の振動からは少し遅れたものになります。

単位体積に $N$ ケの分子が含まれるとすると全体の分極 $P$ は

$$P = Np = N\alpha E$$

となります。この式は分子が互いに遠く離れていて分子間の相互作用がないと見なすことのできる気体については正しいのですが、液体や固体の場合には近くにある他の分子との相互作用を考慮しますと、分子に作用する実効的な電場は $E$ ではなく $E + (4\pi/3)P$ となります。即ち、ローレンツ補正項と呼ばれる電場 $(4\pi/3)P$ が加わります。この補正項は固体効果の一種と考えられますが、以下では簡単のため補正項は無視して電場は $E$ に等しいと仮定します。\*

媒質の誘電率はよく知られた $D = \epsilon E = E + 4\pi P$ の式で定義されますが、分極率が複素数だと $\epsilon$ も複素数となりますので

$$D = \hat{\epsilon} E = E + 4\pi P$$

と書くことにします。この時、複素誘電率、 $\hat{\epsilon}$ 、は

$$\hat{\epsilon} = 1 + 4\pi N\hat{\alpha},$$

となります。この式に(1)の $\hat{\alpha}$ を入れますと、誘電率の周波数による変化の一般式(誘電関数ともいいます)は次のようになります。

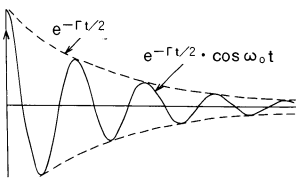


図1 コサイン型の減衰振動  
A damped oscillation of cosine type

(\*)このような簡単な補正項では話のかたづかない固体効果もあります。その著しい例が後に述べますポラリトンです。

$$\epsilon = 1 + \frac{4\pi Ne^2}{m} \cdot \frac{1}{(\omega_0^2 - \omega^2) - i\Gamma\omega} \quad \dots\dots\dots (2)$$

そこで、複素誘電率を

$$\epsilon = \epsilon_1 + i\epsilon_2 \quad \dots\dots\dots (3)$$

のように実数部と虚数部とに分けて書いてみますと、数学でいう有理化の手続きをへて、最終的には $\epsilon_1$ と $\epsilon_2$ は次のようになります。

$$\epsilon_1 = 1 + \frac{4\pi Ne^2}{m} \cdot \frac{(\omega_0^2 - \omega^2)}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \Gamma^2\omega^2} \quad \dots\dots\dots (4)$$

$$\epsilon_2 = \frac{4\pi Ne^2}{m} \cdot \frac{\Gamma\omega}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \Gamma^2\omega^2} \quad \dots\dots\dots (5)$$

ここで $\epsilon_1$ と $\epsilon_2$ の周波数による変化について考えてみることにします。図2は $\epsilon_1 - 1$ と $\epsilon_2$ の $\omega$ による変化を描いたものです。この図で $\epsilon_2$ のカーブは $\omega_0$ を中心とする釣鐘型となっており、後述の(10)式でもわかりますように吸収に対応します。 $\omega_0$ でのピーク値は

$$\epsilon_2(\max) = (4\pi e^2/m) / \Gamma\omega_0$$

で与えられます。このカーブの半値幅(full width at half maximum)が $\Gamma$ となることは簡単な計算で確かめることができます。

$\epsilon_2$ が吸収に対応する理由について考えてみます。一般に、強度 $I_0$ の単色光が媒質中を厚さ $r$ だけ進んだとき、その強度が $I$ となったとすると、媒質中での強度の変化は $I = I_0 e^{-\alpha r}$ と表わされます。 $\alpha$ は波の進行方向に沿って単位長さ当りの減衰の割合を表わす量で、吸収係数(absorption coefficient)とよべれます。ふつう、 $\text{cm}^{-1}$ を単位として表します。マクスウェル方程式をとりて媒質中を進む平面波は指数関数を使って

$$E = E_0 [\exp(i(\frac{\omega}{c} \hat{n} \cdot r - \omega t))] \quad \dots\dots\dots (6)$$

のようにあらわされます。ここに、

$$\hat{n} = n - i\kappa \quad \dots\dots\dots (6)$$

は複素屈折率とよばれる量で、実数部( $n$ )は普通の屈折率、虚数部( $\kappa$ )は消衰係数(extinction coefficient)となります。 $\kappa$ も $n$ と同じく無次元の量です。

ここで、複素屈折率 $n$ を上式に入れて整理してみますと

$$E = E_0 [\exp(-\frac{\omega}{c} \kappa r)] [\exp(i(\frac{\omega}{c} n r - \omega t))] \quad \dots\dots\dots (7)$$

となって、減衰する因子(はじめにある実数の指数項)と振動する因子(あとにある虚数の指数項)とが現われてきます。 $\kappa$ は上述の吸収係数 $\alpha$ に比例する量で、光の強度 $I$ は振幅の2乗( $E^2$ )に比例しますから、

$$\alpha = 2\kappa (\omega/c) \quad \dots\dots\dots (8)$$

となることがわかります。つまり、(7)式は $(c/n)$ という位相速度で進む波の振幅を

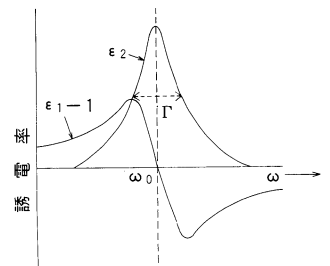


図2 減衰調和振動子の複素誘電率。実数部( $\epsilon_1 - 1$ )と虚数部( $\epsilon_2$ )を角振動数に対して描いたもの。  
The real and imaginary parts of the complex dielectric constant for damped harmonic oscillators

あらかし、その強度は単位の長さ当り、 $\alpha$ で減衰して行くことになります。波の波長を $\lambda$ としますと $\lambda = 2\pi c/\omega$ ですから(8)から $4\pi\kappa = \alpha\lambda$ となります。つまり波の強度は1波長進むごとに $4\pi\kappa$ の割合で弱くなると考えることも出来ます。冒頭でも触れましたが、透明体でよく知られた $n = (\epsilon)^{1/2}$ の関係に対応して、吸収媒質でも $n^2 = \epsilon$ が成り立つと考えて、この式に(3)と(6)の関係を入れますと、

$$\epsilon_1 = n^2 - \kappa^2 \quad \dots\dots\dots (9)$$

$$\epsilon_2 = 2n\kappa \quad \dots\dots\dots (10)$$

がえられ、 $\epsilon_2$ が吸収に対応した量であることがわかります。

共鳴角振動数 $\omega_0$ の近くの領域を除きますと $\epsilon_1$ はいつも $\omega$ が増加すると共に増加しており、この領域は正常分散(normal dispersion)領域とよべれます。ところが、 $\omega_0$ の近くでは $\epsilon_1$ は $\omega$ が増加するとともに減少しており、この部分は異常分散(anomalous dispersion)領域とよべれます。この部分の幅は(4)の微分を0とおいて求めることができ、 $\epsilon_1$ の極大となる角振動数を $\omega_m$ として

$$(\omega_0 - \omega_m) \sim (\Gamma/2)$$

という結果となります。

よくお目にかかる光学定数に反射率(reflectivity)がありますが、屈折率 $n$ 、消衰係数 $\kappa$ 、をもった媒質の表面で光が反射される場合の反射率は、反射面での境界条件をマクスウェルの電磁方程式に適用すれば簡単に求めることが出来ます。反射率は一般に入射の角度や光の偏光面の方向によっていろいろと変化しますが垂直入射の場合は簡単で、媒質の $n$ と $\kappa$ のみであらわすことが出来ますので結果だけを示しておきます。

$$R = \frac{(n-1)^2 + \kappa^2}{(n+1)^2 + \kappa^2}$$

## 4. NaClの誘電分散

図3は種々の方法で測定されたNaClの誘電率 $\epsilon_1$ の広い範囲に亘ってのスペクトルを模式的に示したものです。低周波領域での誘電率は静電誘電率(static dielectric constant) ( $\epsilon_s = 5.6$ )とよべれます。その大きさは $10^{10}$ ヘルツまではわずかながら徐々に増加します。 $\sim 10^{13}$ ヘルツと $\sim 10^{16}$ ヘルツの近傍ではそれぞれ顕著な異常分散がみられます。異常分散の領域での様子は図2に示した( $\epsilon_1 - 1$ )のカーブの様子とよく似ていますが、誘電率は高周波数側で必ず小さくなっていることに注意していただきたいと思います。二ヶ所の異常分散のうち低周波数側のものは結晶の格子振動との共鳴によって生じており、高周波数側のものは電子遷移(つまり励起子吸収)との共鳴によってひきおこされている異常分散です。図3は非常に簡単な概念



図で、実際は格子振動にも、電子遷移にもそれぞれ数種類の共鳴周波数があり、その各々が異常分散となりますので誘電分散のカーブは複雑になります。

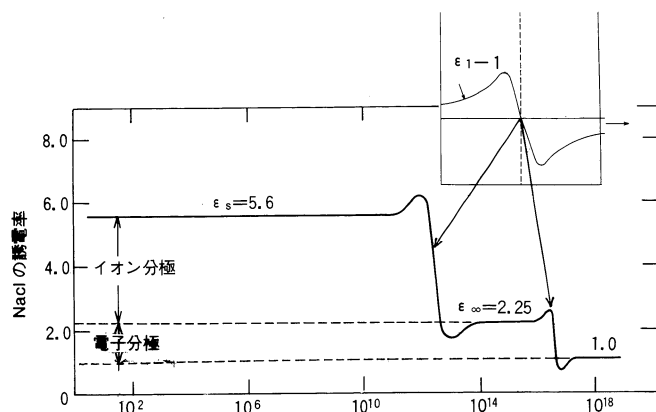


図3 NaClの誘電率（広範囲の角振動数 $\omega$ について模式的に描いたもの）  
The dielectric constant of NaCl over a wide range of frequencies  
A schematic drawing

NaClで見られる二ヶ所での異常分散（ $\sim 10^{13}$ ヘルツと $\sim 10^{16}$ ヘルツ）の中間の領域での誘電率は光学的誘電率（ $\epsilon_{\infty} = 2.25$ ）とよばれます。静電誘電率の周波数領域から見るとこの領域の周波数は殆ど $\infty$ とみなしてもよいので $\epsilon_{\infty}$ と記されたのだと思います。この領域ではイオン振動の固有振動数よりも電場の振動数の方が高いため、

質量の大きいイオンは電場の変化について行けず、イオンの振動は起りません。イオンは立ちすくむわけですが、しかし電子は軽いので電場の振動について行くことができます。それゆえ、誘電率への寄与をするのは電子分極(electronic polarization)のみとなります。図3で $10^{12}$ ヘルツ付近での、異常分散の高周波数側で誘電率が小さくなるのは、イオン分極(ionic polarization)からの寄与が無くなってしまいうからであります。

図3の右端はX線ないしは $\gamma$ 線の領域で、誘電率は異常分散領域での小さい値から徐々に増加して最終的には真空の誘電率(=1)に下の方から漸近して行きます。この場合は電子の固有振動数よりも電場の振動数のほうが高いので、そこでは電子すらも立ちすくむことになり、電子分極からの寄与が無くなってしまいます。この領域では電磁波に応答できるものがもはや何者も存在しなくなって真空と同じ状況になってしまうということができます。

## 5. ポラリトン

以上述べてきました異常分散には必ずポラリトン(polariton)とよばれる特別な振動状態が付随します。ポラリトンと言うのは媒質中の電磁波とそれから生じた電気双極子による分極波(polarization wave)との再結合による連成振動の状態です。

連成振動とは二つの振子(AとB)を 図4のように、弱いばねでつないだときの振動のことです。ばねでつながれていないときには、AとBはそれぞれ独立に $\omega_0$ という固有振動数で振動します(縮退といいます)が、ばねでつながると、二種類の基準振動モードが発生します。それらはAとBがいつもほぼ同じ方向に動いて $\omega_1$ で振動するCモードと、AとBがいつも反対方向に動いて $\omega_2$ で振動するDモードであります。このときCモードの振動では、ばねがあまり伸び縮みしないので $\omega_1$ は $\omega_0$ とほとんど変わりませんが、Dモードの振動ではばねの伸縮をとるため必ず $\omega_2 > \omega_0$ となります。同じ固有角振動数( $\omega_0$ )を持つ二つの振動(A, B)が、ばねによる相互作用のために縮退が解けて $\omega_1$ と $\omega_2$ という二つのモード(C, D)に分裂してしまうというわけです。

一般にイオン結晶の格子振動では正負のイオンが互いに反対の方向に変位してイオン分極を生じる結果、双極子モーメントが誘起されるような振動のモードが存在し、光学フォノン(optical phonon)と呼ばれております。この分極波の振動のうちで横波モードのものは波長と振動数さえ一致すれば、力学的な刺激によっても誘起されるし、電磁気的な刺激によっても誘起されるわけです。つまり同じ振動数を持った電磁波の横波振動(図4でのA)と結晶格子で生じる力学的なイオン分極波の横波振動(図4でのB)とが連成されて新しい振動モード(CとD)が発生することになります。これがポラリトンといわれる連成振動状態で、先程のCモードに当るものをロウワー・ポラリトン、Dモードに当るものをアッパー・ポラリトンと呼びます。これらのポラリトンは格子振動によって生じるポラリトン

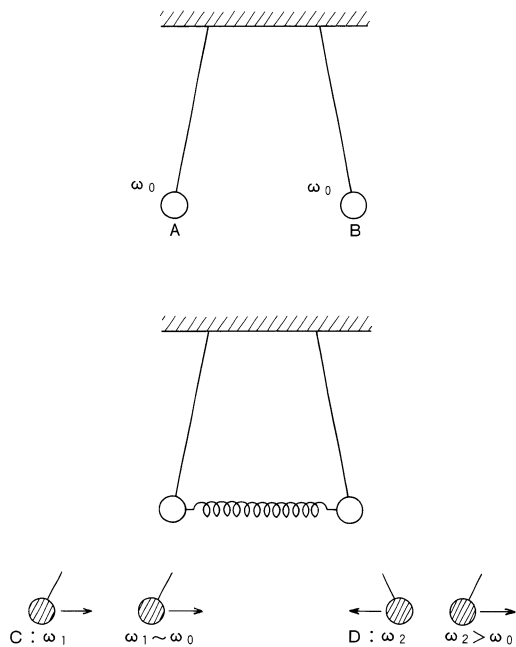


図4 連成振子と二つの基準振動モード  
A coupled oscillator and two modes of normal vibration

であるため、特にフォノン・ポラリトン(phonon polariton)よばれます。格子振動の分極波の場合とまったく同様に、電子状態の励起に伴う電子分極波(励起子のことです)の場合でも同じような連成振動モードが発生し、励起子(exciton)に起因するポラリトンであるため励起子ポラリトン(exciton polariton)とよばれます。

電磁波と分極波やそれらの連成波について角振動数 $\omega$ と波数(波長の逆数)との関係を描いたのが図5であります。点線及び一点鎖線は連成されるまえの電磁波と分極波をあらわしており、それらが結合して実線で示したようなアッパーとロウワーの二つのポラリトンになります。結晶に入射した光(電磁波)はただちにどちらかのポラリトンとなって結晶中を伝わり、表面に到着するとそこで同じ角振動数を持った光(電磁波)に転換されて結晶外に出ていきます。横波の光学フォノンのスペクトルや自由励起子からの発光スペクトルなど、最近はよくこのモデルを用いて説明されていますので、詳しい内容については Kittel の教科書(固体物理学入門, 6版. 上巻, p.290, 丸善, 1990)を見ていただきたいと思います。

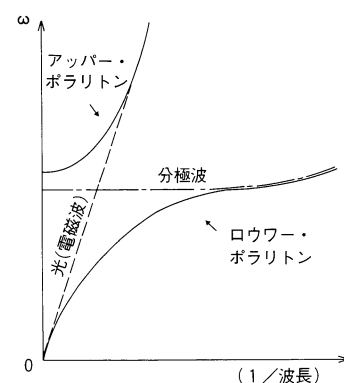


図5 光(電磁波)と分極波からつくられるポラリトンの二つのモード  
Polaritons are produced as a result of coupling between electromagnetic wave and polarization wave

### Interaction of Light with Medium —Origin of Optical Constants—

A brief discussion is made on the interaction of light wave with medium by explaining the physical meaning of various optical constants derived from a classical dispersion theory based on Lorentz model for bound electrons. Features of dielectric dispersion curve are explained in NaCl as an example. Importance of polariton aspects is pointed out as a typical example of the interaction of radiation with polar crystals.



# 粒度分布測定は なぜ難しいか

## Why is Particle-Size Analysis so Difficult ?

### はじめに

原料・最終製品を問わず粉体粒子を扱う工業では、粉体粒子の特性評価は広く行われている。評価項目は分野によって少しずつ異なるが、粒子の大きさとその分布は最も重要な特性であり、必ず要求される評価項目である。そこで粒度分布測定を行うべく、測定装置のカタログを集めてみると、実に様々な装置があってどれがどれだか判らない。検討の末どうにか数機種に絞って、実際にサンプルを測定してみるとその測定結果がかなり違ってしまい、このハイテク時代に粒子の大きさ一つ満足に測れないのか、と嘆かれた方も少なからずおられると思う。

粒度分布測定は、ある大きさの粒子がどれだけあるかを求めることである。従って粒度分布測定には、粒子の大きさを測る技術と、その大きさの粒子の重量なり個数を測る技術が要求される。即ち、測長と秤量もしくは計数技術である。これらの計測機器は基準原器によって厳しく校正され、A社の測定器とB社の測定器で測定結果が大きく違うと言うことはありえない。個々の測定技術の精度は高いのに、なぜ粒度分布の測定結果は測定原理、装置、測定者によって食い違うのか、本稿では、少しく粒度分布測定に携わってきた立場から、粒度分布測定の難しさを解説すると共に、克服の展望についても若干触れてみたい。

### 1. 蟻、米粒から高層ビルまで

重厚長大時代の粉粒体は、数十から数百 $\mu\text{m}$ の鉱石、セメント、穀物等が主体で、粒度分布測定はふるいによって行われ、40~50 $\mu\text{m}$ 以下の粒子はサブシーブ粒子と呼ばれ、微粉として扱われていた。しかしその後、軽小短薄、ハイテク、先端材料の時代になり、ミクロンからサブミクロンの粒子が実際の生産に供せ

られるようになり、さらに現在ではCVD、PVD等の超微粉製造技術も実用に供せられている。このように生産技術の進歩にともなって、測定対象となる粒子は10年で1桁づつ小さい方に広がっていると言える。現在は、数十nmから数百 $\mu\text{m}$ までの4桁の範囲で粒度分布測定が要求されている。数十nmから数百 $\mu\text{m}$ の範囲を、

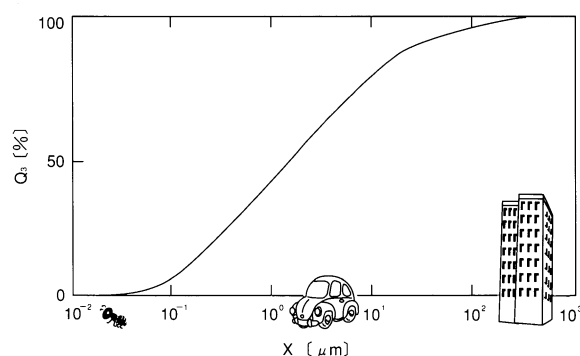


図1 要求される粒度分布測定範囲の感覚的理解  
A sense of size range demanded to particle size analysis



(財)ファインセラミックスセンター  
試験研究所  
プロセス技術部 部長

椿 淳一郎

Junichiro Tsubaki, Dr. Eng.

工学博士

〈略歴〉

1971年 : 名古屋大学大学院工学研究科博士課程終了, 同大学助手  
1984~86年 : 米国シラキュース大学留学  
1986年 : 名古屋大学助教授  
1987年 : (財)ファインセラミックスセンター  
試験研究所

〈研究業績〉

専 門 : 粉体工学, セラミックス工学  
著 書 : 粉碎と粉体物性, 機能性粉体, 他

極微の世界から日常生活の長さに移してみると、数 mm から数十 m の範囲である。即ち蟻や米粒の大きさと高層ビルの高さを同時に測ろうという話である(図 1)。さらに粒度分布測定では、大きさを測るだけでは片手落ちで、その粒子の存在割合まで求めなくてはならない。存在割合を重量基準で求めるとなるとその範囲は12桁になり、mg から始めると kton におよぶ。このように広い範囲では、粒子の大きさはノギスやマイクロメータで測り重さは天秤で秤る、と言った直接的測定は不可能である。必然的にいくつかの測定技術が駆使されることになる。これが様々な原理に基づく粒度分布測定装置が市販されている、主な理由である。

## 2. 「個性」豊かな測定装置

物差しや秤りを使わずにどうやって大きさと重さを測定するのか。粒子の大きさや量(濃度)によって変化する物理量を測定することで、間接的に知ることができる。例えば、最も広く使われているレーザー回折散乱法では、光の散乱回折パターンが粒子の大きさに関係し、散乱光の強さは粒子個数に比例することを利用している。また遠心沈降光透過法では、液中での粒子沈降速度は粒子の大きさの二乗に比例し、光の透過量は懸濁液中の粒子の大きさと個数濃度に関係することを利用している。即ち遠心沈降光透過法では、沈降速度から粒子径を求め、光の透過量からその粒子の存在割合を間接的に求めているし、レーザー回折散乱法では回折散乱光強度分布を粒度分布に換算している。

ここで厄介なのは、利用している物理現象が粒子径や濃度以外の因子によっても変化する点である。例えば遠心沈降光透過の場合は、粒子の沈降速度は粒子密度と粒子形によっても変化する。またレーザー回折散乱法においても、粒子が光の波長より小さくなると、散乱パターンは粒子屈折率によって大きく変わってくるし、粒子の形状も散乱パターンに影響を及ぼす。現在、測定が比較的簡単な粒子の密度は実測され、粒子の形は球として測定して物理現象が解析されている。しかし粒子屈折率のあつかいは容易でなく、各々のメーカーによって対応が異なっている。これが原理の同じ装置でも、機種によって測定結果が異なる大きな原因の一つである。またレーザー回折散乱法の場合には屈折率のあつかいに加えて、回折散乱光強度分布を粒度分布に換算する演算ソフトがメーカーによって異なり、これが測定装置を「個性」豊かなものにし、機種間の違いを大きくしている。

### 3. BWH

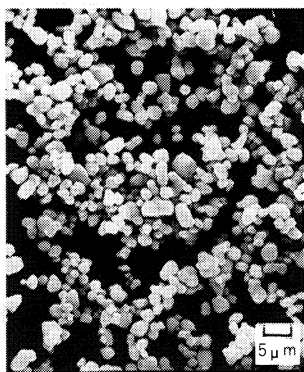
このように粒度分布は、物理現象を介して間接的に測定されるので、同じ粒子でも介在する物理現象が異なると、主に形状の影響を受け違う測定結果を得ることがある。人間の寸法にも、身長、B、W、H等の寸法があるのに似ている。粒子の場合もB、H>Wが好まれるとは限らないが、球に近づくとつれ測定原理(介在物理現象)の影響を受けにくくなるのは、ずんぐりした体型では $B \approx H \approx W$ になるのに似て面白い。これが測定原理によって測定結果が異なる原因である。

### 4. ばらつきの責任は測定者にも

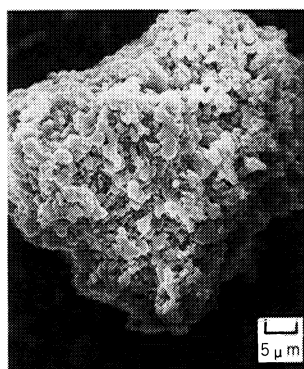
いずれの原理で測定するにせよ、測定時には1個1個に分散された状態でなければならぬ。ミクロン、サブミクロンと粒子が小さくなるにつれて、次第に分散しにくくなり、適切な分散媒、分散剤、分散条件を選ばないと、凝集した粒子を測定してしまうことになる。サブミクロン粒子でも、**図2(A)**に示した様に個々の粒子がはっきり識別できる場合は、分散時間を十分にとれば粒度分布が変化しなくなるので、適正分散条件を決めることはそれほど難しくない。しかしファインセラミックス原料粉体のように仮焼工程を経て製造される粒子は、**図2(B)**に示す様に雷おこしのように1個1個の粒子の識別は難しくなる。このように仮焼された固い凝集体の場合は、外力に応じて粒子は分散され、粉碎機によって初めて1次粒子までの分散が可能となる。このような粒子の場合は、分散条件を明確にすることが必要である。一般に粒子の分散には超音波バスもしくは発振子が用いられるので、分散力の目安として超音波の出力と照射時間が付記されることが多い。しかし超音波照射の効果は、懸濁液の量や使用ビーカーの大きさなどによっても著しく異なるため、出力と照射時間を合わせただけでは、測定結果に大きな違いを生ずる。これが測定者に起因するばらつきである。

しかし現実の粒度測定で最も問題となるのは、初歩的なミスである。それは、使用装置の測定範囲を超えた粒子を測定してしまうことである。測定装置は測定範囲外の粒子でも範囲内の粒子として処理してしまうため、範囲外、特に大きい粒子が多くあると大きな誤差の原因となる。これはかなり初歩的なミスと言えるが、測定結果のばらつきの最も大きな原因となっているようである。

これは測定者だけの責任ではないが、装置の調整も測定結果に大きな影響を及ぼす、特にレーザーを使った装置ではちょっとした光軸の狂いが大きな誤差を生むだけに、装置の調整は大切である。



(A)個々の粒子の識別が容易な粒子(チタン酸バリウム)  
Particles easily identified each particle (barium titanate)



(B)個々の粒子が固まった粒子(アルミナ)  
Hard aggregates (alumina)

**図2** 多様な粒子形態  
Some morphology of particles



## 5. ばらつきのない測定を目指して

同じ試料を同じ原理の装置で測定して、いつも同じ測定結果を得るためには、測定装置の標準化と試料調製法の標準化が不可欠である。そのためには、装置によるばらつきと試料調製によるばらつきを、実際のデータで明らかにする必要がある。ファインセラミックスセンター(JFCC)では、41社の参加を得てマルチクライアント研究「粒度分布測定装置の系統的比較と測定術確立」を組織し、2年間検討を続けてきた。その結果、試料の調製条件を共通にするなら、測定結果のばらつきを半分を抑えられることが明らかとなった。さらに、粒子屈折率の影響の少ないミクロン粒子の測定結果はかなり一致しており、装置標準化の可能性も示唆された。また試料調製条件の標準化に対しても目処を付けることができた。

日本ファインセラミックス協会(JFCA)の標準化委員会においても、ファインセラミックス原料に限定はされているが、粒度分布測定技術標準化の戦略が立てられているし、粉体工学会のサブミクロン粒度測定グループ会が学問的検討を進めているので、産学の協力を得て粒度測定技術が標準化されるのもそう遠くないものと期待している。現在の測定装置は、測定結果を一目見て装置名まで判るほど「個性的」があるが、標準化はこれらの「個性」を奪うことになる。しかしこのような「没個性化」は、ユーザーにとって多いに望むところである。

## 6. 機能をより個性的に

「個性的」な測定結果と言うのは困りものであるが、各々の原理に応じた機能の個性化は大歓迎である。これまではファインセラミックス原料粉体を念頭において、装置上の問題、測定上の問題について言及してきたが、粒度分布測定において考慮しなければならないことはまだある。一つは、測定対象が無機物、有機物から生体まで極めて多様であることである。もう一つは、ユーザーニーズの多様性である。とにかく速く簡便に測りたい、分解能が欲しい、精度よく測りたい、トップサイズを知りたい、できるだけ安く、…と多様である。このような多様性を、1台の装置で満足するのは先ず不可能である。これらの多様化はますます深まって行く傾向にあるので、各メーカーにはユーザーニーズをよく読んで機能の個性化を多いに進めてもらいたいし、各測定原理の個性・特徴を明確にし、各々の守備範囲を整理するのが研究者の課題ではないかと思う。

## おわりに

拙稿より、粒度分布測定は、現代のハイテクをもってしても一筋縄ではいかないこと、しかしまたメーカー、ユーザー、研究者が一致協力するならば、十分解決可能な困難さであることを、お分かりいただけたら幸である。

---

### Why is Particle-Size Analysis so Difficult ?

There are many particle-size analyzers available on the commercial market and these various analyzers are based on a number of diverse principles. The situation tends to confuse potential users of particle-size analyzers : Why are there so many different kinds of equipment and what are the differences between them? It is also problematic that the various types of analyzers show discrepancies in the results of measurements.

One reason there are so many different types of equipment on the market is that the range of particle sizes that must be measured in today's particle-size analysis is simply too extensive to be handled by a single type of device. In addition to this, there are two reasons for discrepancy in results from device to device : (1) differences in the principles of measurement, particularly in the method of treating the optical properties of particles, and (2) differences in how the sample is prepared for measurement.

Of these three problems, one appears unavoidable : discrepancies resulting from different principles of measurement. By making efforts toward greater standardization, however, we should be able to overcome the other two problems, i.e., the various kinds of equipment on the market and the differences in the method of sample preparation.

Standardization is a goal we should be aiming at right now, and also, to ensure that we are responding adequately to the needs of potential users of our equipment, we should make sure that even if a great variety of analyzer equipment is to remain on the market, the principles and purposes of each type of device should be explained clearly.

---

## 微粒子計測関連製品の現状と課題

## Topics on State-of-The-Art Equipment for the Measurement of Minute Particles

岸本 俊彦

Toshihiko Kishimoto

**要 旨**

目ざましい発展を続けている新素材や半導体の分野では、扱う材料の微細化がますます進み、研究開発から生産まで全てにわたり、微粒子の計測・管理が非常に重要な課題になっている。本稿では、微粒子の特徴と計測上の問題点を考察し、当社の粒度分布測定装置、パーティクルカウンター、X線マイクロアナライザなど粒子計測に関連する製品群の現状と技術的課題を述べた。

**Abstract**

The industry is continuing to make stunning technological advances in the fields of both new materials and semiconductors. The materials we now handle are becoming ever more delicate and sensitive; this has come to mean that the measurement and control of the minute particles in these materials is crucial at every step, from research and development to the final production stages. This paper considers the characteristics of minute particles and the problems that arise in attempting to measure them. We discuss the present state of Horiba's product line and related technological topics in the area of minute particle measurement, focusing on particle-size distribution measurement equipment, particle counters, and X-ray micro-analyzers.

**1. はじめに**

化学工業では粉体を扱うことが多く、工場によっては、原料であったり、中間製品であったり、または最終製品であったりする。これらの製造プロセスでは、粉体を適切に管理することが製品の歩留りや品質管理の面から非常に重要な課題で、様々な粒子計測技術が取り入れられている。とくに、先端技術を支えるものとして将来を期待されている新金属、機能性高分子、セラミックスなどの新素材の分野では、各材料の微粒子化が重要な技術となっている。また、半導体デバイスは高集積化が進み、加工対象はますます微細化しており、デバイスの製造プロセスで発生する微小な異物は企業の収益を直接左右するものとして厳しく管理されている。

この様なニーズを反映して、微粒子、粉体の計測はますます重要になっており、新しい発想にもとづく粒子計測技術の報告や応用製品の発表が多く見られる。とくに、最近ではレーザー技術、エレクトロニクス技術、コンピュータ技術な

どの先端技術を活用した各種の微粒子計測技術が出現している。

本稿では、当社で開発・商品化を進めている微粒子計測に関連する製品を中心に、現状と技術的課題について述べる。

## 2. 微粒子の特徴と計測項目

粒度特性	粒度分布, 比表面積, 細孔分布
粒子間相互作用	付着凝集力, セン断力
充填特性	真密度, かさ密度, 摩擦係数
表面特性	吸着, ぬれ触着角
流動特性	流動性, 圧縮性

表1 主な粉体特性と物性  
Characteristics and material properties of the most commonly-used particles

微粒子は固体ではあるが、大きさが非常に小さいためにサイズ効果や表面効果などの影響が現れ、バルク状態の固体とは異なった光学的・電氣的・磁氣的な性質を示す。一方、微粒子の集合体である粉体も、簡単に流動したり反応性に富むなど、固体という概念だけでは把握できない複雑な挙動を示す。粉体の状態は粒子の大きさ(粒度)と粒子間相互に働く力(付着力・凝集力)の2つの基礎的な物理量で左右されており、粒度特性、充填特性、流動特性などの物理的性質は粒度分布、比表面積、真密度、かさ密度などの指標を用いて規定されている(表1)。

一般に微粒子の計測は難しいといわれるが、これは各粒子が非常に小さくかつ形状がバラバラなため、粒子一つ一つの再現性のある情報が得にくい原因となっている。一方、このように不均一な微粒子の集合体である粉体もまた、粒子の集合状態が多様でしかも媒体の影響を強くうけるなど、信頼性の高い計測をすることが難しい。以上をまとめると次のような問題点があげられる。

- ①粒子一つ一つを孤立させた計測が難しい。
- ②各粒子の大きさや形状がバラバラで、再現性のある計測が難しい。
- ③粉体は粒子の集合状態や媒体の影響を受けやすく、安定な計測が難しい。
- ④粒子の生成条件や存在の形態がきわめて多様で、標準的な試料の作成が困難。

これらの問題点を考慮すると、微粒子・粉体には統計的に均一であるとの仮定のもとで評価することがより実際的であるといえよう。

当社は光学技術やX線技術をベースとした各種の微粒子・粉体の分析・計測機器を開発、製品化しているが、その中から本稿では粒度分布測定技術とパーティクル計測技術を中心に述べる。

## 3. 粒度分布測定

すでに述べたように、一口に粒子の大きさの測定といっても、測定対象は数百ミクロンの大きい粒子からサブミクロンの超微粒子まで広範囲にわたっており、多数の粒子の集合体である粉体もまた大きな広がりがある。粒度分布測定は、各種の粉体特性の中でも最も重要な評価項目と考えられ、様々な原理の粒度分布測定装置が市販されている。

粒度分布の測定方法は、図1に示すように、光学顕微鏡や電子顕微鏡で得ら

	粒子径					
	0.01 μm	0.1 μm	1 μm	10 μm	100 μm	
粒度分布測定法	観察計数法	ふるい分け法	マイクロメッシュシーフ	標準ふるい		
	電子顕微鏡	光学顕微鏡		拡大鏡		
	沈降法	自然沈降				
		遠心沈降		エレクトロゾーン法		
		動的光散乱法		フラウンホーファ光回折法		
		ミー散乱法	フラウンホーファ光回折法			
	ハイドロダイナミッククロマトグラフィ					

図1 粒度分布測定法と適用粒子径範囲<sup>1)</sup>  
The major types of measurement of particle-size distribution and the ranges of particle sizes for which each is applicable



れた粒子像を目視あるいは写真に撮って寸法を直接測定する方法と、粒子に何らかの物理量を作用し得られる物理量の変化を測定することにより粒子の大きさを間接的に求める方法の二通りがある。現在、製造や品質管理の現場で最も一般に使われている測定方法は、後者の間接的な方法に属している。ここでは、その中でも代表的な沈降法と光散乱法を詳しくのべる。

### 3.1 沈降法

沈降法は、粒子が空気や水などの媒質の中を沈降する速度が粒子の大きさによって左右されることを基本原理とするもので、沈降速度を実測して粒子の径を算出する方法である。原理が簡単で、古くからよく使われている。

ところで同一体積をもつ粒子でも形状によっては沈降速度が異なる。そこで本測定法では「粒子の径とは、同じ媒質中で、同じ沈降速度を示す同じ密度の球形粒子の径」すなわちストークス径を代表径として用いる。図2に沈降法の測定原理を示す。沈降法には、試料懸濁液面からの深さ  $H$  における粒子濃度を測定する増分型と、 $H$  以上または  $H$  以下の全濃度変化を測定する積分型測定法とがある。検出部には天秤、比重計、光検出器あるいは X 線検出器など各種の原理のものが組み込まれており、測定目的に応じて選択されている。中でも、遠心力を増加することにより、より微細な粒子を短時間に測定できる「遠心力沈降法」は、サブミクロン微粒子の測定という時代のニーズに合致して、この10年の間に著しい発展を遂げている。当社でも、約10年前から本方式の粒度分布測定装置の研究開発に取り組み、自然/遠心沈降式粒度分布測定装置 CAPA シリーズとして製品化している<sup>2)</sup>。

従来、遠心沈降式粒度分布測定装置は、非常に小さい粒子が測定できる長所はあるが、反面、測定可能な粒径範囲が狭いという欠点があった。しかし最近では、試料に与える遠心力を連続的に変化させて測定する、いわゆる等加速遠心法が開発され、粒度分布測定範囲を3桁と飛躍的に増大している。一方、サブミクロン以下の粒径範囲では、粒子と光の散乱の相互作用が複雑で、粒子濃度と透過(濁り)の関係は必ずしも線形でなく、今後の理論的な解析が必要となっている。

### 3.2 光散乱法

この数年間の技術革新や新しい測定原理を取り入れたものに、レーザ散乱法による粒度分布測定装置がある。光散乱理論に基づき、レーザ光源を利用したこの装置は、密度の異なる混合粉体の粒度分布を数分という短時間で測定可能としている点で画期的なものであり、急速に普及し始めている。この測定手法は、粒子の大きさと分布を光の散乱強度と散乱角度分布の関係から求めるもので、コンピュータ技術の急速な進歩により実用化された。

本法の測定原理の詳細は本誌の他稿<sup>3)</sup>で紹介するが、基本的には粒子の大きさにより幾何光学散乱、回折散乱、ミー散乱、レイリー散乱の各光散乱現象を利用している。

レーザ散乱式粒度分布測定装置は、多数の光検出器を用いてこれらの広い散乱領域を利用することによって、4桁以上の広い範囲の粒度分布をリアルタイムで測定できる点が大きな特長となっている。当社では、遠心沈降式に続く粒度分布測定装置としてレーザ回折/散乱式粒度分布測定装置 LA シリーズを開発、製品化している。

レーザ散乱式粒度分布測定装置は、密度の異なる混合粉体の粒度分布を測定

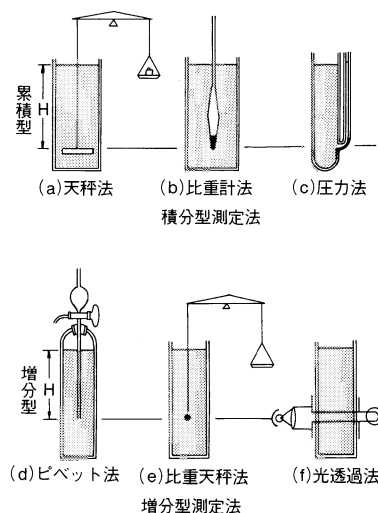


図2 主な沈降法の測定原理<sup>1)</sup>  
Principle of sedimentation-type measurement

できる長所はあるが、遠心沈降式と同様に、非球形粒子に対する計測誤差をどう処理するかが今後の課題となっている。

#### 4. パーティクル計測

微細化技術がめざましく進歩する半導体工業では、16/64M-bitのDRAMに代表されるような次世代デバイスの製品化のかぎを握っている重要な技術の一つとしてウルトラクリーン化技術がある。パターン幅が $1\mu$ 以下にもなる超LSIの製造プロセス(ハーフマイクロプロセスとも呼ばれている)では、それまでは問題とされなかったような微小な異物が製品の歩留まりに直接に影響を及ぼすため、あらゆる角度から異物低減の対策が行われている。なかでも微粒子の正確な計測・管理は重要な課題となっており、各種の液体・気体用のパーティクルカウンターが導入されている。

パーティクルカウンターの測定原理には、レーザ光散乱法、光音響法、超音波散乱法などがあるが、中でも最も一般的な測定法はレーザ光散乱法微粒子計数法である<sup>4)</sup>。この測定法の原理は、レンズで集光したレーザビームを微粒子に照射し、発生する散乱光を光検出器で電圧パルスに変換し、パルスの数から粒子数を、パルスの高さから粒子径を求める方法である。

ところで、この大きさの粒子による散乱はミー散乱の領域であるため、微粒子の径が小さくなればなるほど散乱光の強度は小さくなり、検出が困難になる。そこで散乱光を強くするために、波長の短いアルゴンレーザを使用したり、レーザビームを細く絞ったり、あるいは細く絞ったビームをスキャナーで高速走査する方法がとられている。

##### 4.1 レティクル上の微粒子の検出

半導体製造プロセスにおけるコンタミネーションによる歩留まり低下の最大の原因は、シリコンウェハやフォトマスク(レティクル)に異物が付着するためであるといわれている。現在種々の原理の異物計測装置が開発されているが、レーザ光散乱法を使ったものが最も感度が高くかつ信頼性が高いと評価されている。現在、レティクル上に付着した異物とデバイスのパターンとを弁別する方法として、図3、4に示すように散乱光の角分布特性や偏光特性の違いを巧みに利用する方法が開発されている<sup>5)</sup>。

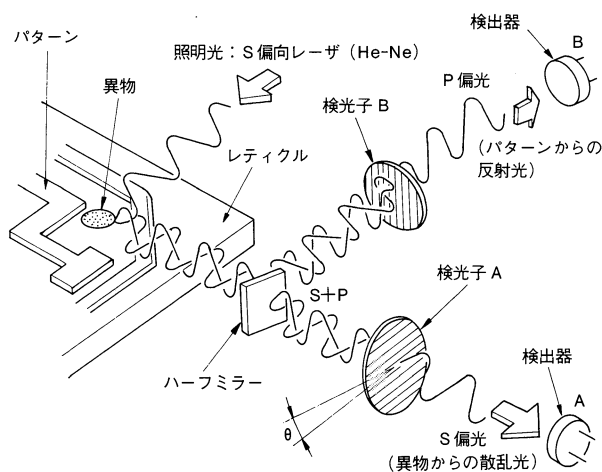


図3 差動法による微粒子検出の原理  
Principle of differential particle detection

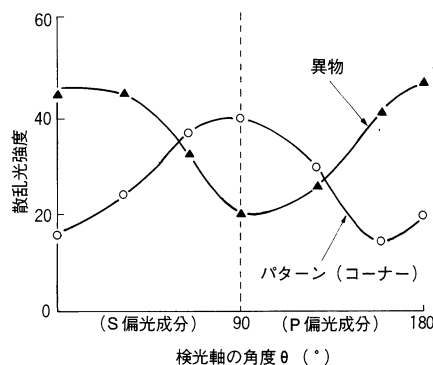


図4 散乱光強度と検出光軸角度の関係  
The angle of the detection axis VS. scattering light intensity

## 4.2 液体用パーティクルカウンター

半導体製造プロセスに欠くことのできない洗浄行程では、超純水や薬品中の微粒子の監視は、今や最重要項目の一つとなっている。

液体中の微粒子検出の基本原理は、レティクル上の微粒子と同様のレーザ光散乱法を使ったものや、電気抵抗式のものが開発されている。当社では、前者の光散乱法を使った液体中パーティクルカウンター PLCA シリーズを製品化している。レーザビームを扁平にして検出効率を高めたり、耐腐食性の材料を採用して各種の薬品中の微粒子の計測・管理ができるようにしている<sup>9)</sup>。

今後は、より微小で少ない数の微粒子を検出するためのハード技術の向上と合わせ、いかに各プロセスの系を乱さずに試料から微粒子の情報を引き出してくるかなど、周辺技術の研究・開発が重要な課題となっている。

## 5. キャラクタリゼーション

最初に述べたように、粉体の特性は固体状態の物性とは異なる様々な挙動を示し、微粒子や粉体の評価には統計的な処理が適していることが多い。

一方、より高機能な粉体を作成したり応用したりするためには、粉体全体の性質の把握と同時に、微粒子個々について性質の解析が必要となる。一般に、微粒子のキャラクタリゼーションとは、粒子の特性と粉体物性との関係を見いだし解析する手法といわれているが、筆者はもう一步進めて、所望の特性をもつ微粒子や粉体の作製から応用まで全てを含めた特性評価の総称と考えている。

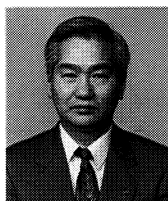
ファインセラミック粉体始め殆どの新素材に求められている微粒子の特性は、より高純度・微細で粒子径がそろっており、均質で、2次粒子を作りにくいなどなど多岐に渡っている。これらのニーズに対応するためには、微粒子の粒度分布測定はもちろんのこと、さらに微粒子個々の組成や形状の分析を行って、多面的・総合的に解析することが重要になっている。当社が開発した画像処理機能付きエネルギー分散形 X 線マイクロアナライザ EMAX-2770<sup>7)</sup>は、微粒子のキャラクタリゼーションの有力な武器になるものと期待している。

## 6. まとめ

レーザを応用した粒子計測技術を中心に、当社が開発、製品化している微粒子計測関連装置の概要と特長を紹介したが、粉体工業や半導体工業の発展に微力ながらも貢献できれば幸いである。一方これらの産業分野における技術の進歩は目ざましく、支える粒子計測技術も常に革新していかねばならない。例えば、より小さい粒子を計りたいというニーズに対しては、従来のように光強度や散乱角度分布を利用する以外に、偏光、位相、ゆらぎなど光の性質を多面的に活用した計測技術の開発も必要と考えている。微粒子・粉体の計測に欠かせない標準試料や校正には、原理や方式を越えた統一的な基準の策定が非常に重要で、計測機器のユーザーの皆様方のご指導、ご教示を願ってやまない。

## 参考文献

- 1) 齊藤進六, 超微粒子ハンドブック (1990).
- 2) 東川喜昭, “自然/遠心沈降式粒度分布測定装置 CAPAシリーズ”, READOUT, No. 4, p. 23 (1992).
- 3) 湯原義公・鈴木哲也, “レーザ回折/散乱式粒度分布測定装置 LA-700”, READOUT, No. 4, p. 30 (1992).
- 4) 沢田嗣朗, 北森武彦, “超音響法による純水計測”, 超音波テクノ, Vol. 1, No. 4, p. 45, (1989).
- 5) 西野 忠・五十嵐正文・西条 豊, “レティクル異物検査装置”, 日立評論, Vol. 73, No. 9, P. 49 (1991).
- 6) 久保良宏, “薬液用微粒子カウンター PLCA-700”, REAOUT, No. 4, p. 37 (1992).
- 7) 坂東 篤・大堀謙一, “エネルギー分散形X線マイクロアナライザー (EMAX) を使った粒子の分析”, READOUT, No. 4, p. 53 (1992).



岸本俊彦

Toshihiko Kishimoto

開発1 部長

1939年12月21日生

神戸大学

教育学部理学科



## 自然/遠心沈降式粒度分布測定装置 CAPA-700

## The CAPA-700 Particle-Size Distribution Analyzer Using Photo-Sedimentation with Gravitational and Centrifugal Acceleration

東川 喜昭

Yoshiaki Togawa

---

**要旨**

沈降式の粒度分布測定は数分から数時間の時間をかけて、非常に低速度の粒子の沈降状態を測定しているため、測定過程で外乱影響を受け易い。測定の安定性に影響する主な外乱としては熱や振動があげられる。本稿では、主に測定中の外乱を防いで安定した信頼性の高い測定結果を得るための機能について、当社の超遠心式粒度分布測定装置 CAPA-700を中心に、測定原理や装置の特長をまじえて紹介する。

**Abstract**

Sedimentation-type particle-size distribution analyzers are highly susceptible to the effects of external disturbance during measurement. This is because the measurement of particle sedimentation is an extremely slow process, taking anywhere from several minutes to several hours. The major sources of external disturbance are heat and vibration. This paper introduces the principles of the CAPA-700, focusing on the features of the CAPA-700 that enable it to prevent the effects of external disturbance during measurement, thus permitting stable, reliable, and highly accurate results.

---

**1. はじめに**

当社では1981年より自然、遠心沈降式の粒度分布測定装置である CAPA シリーズを発売しており、現在本シリーズの主流である CAPA-700は三代目の装置である。

一代目の CAPA-500は、今では常識となっているマイクロコンピュータを内蔵した当時では先進の自動粒度分布測定装置で、操作性の良さ、再現性の良さ等、数多くの特長を有し非常に多くのお客様に受け入れて頂いた。その後発売した普及型の CAPA-300や高機能型の CAPA-700も、CAPA-500からの「操作が簡便」「安定した測定」といった特長をそのまま受け継いでいる。

CAPA のような沈降式の粒度分布測定では、液状媒質中を粒子が自然重力または遠心重力を受けて沈降(粒子の比重が媒質より小さい場合には粒子は浮上する)していく速度を測定するので、重力以外の要因による粒子の移動などがあると再現性が悪くなったり、誤差の原因となる。

CAPAには安定した粒度分布測定をおこなうための種々の工夫が施してある。

## 2. 測定原理

CAPAは2種の方式を組み合わせて粒度分布を測定する。

そのひとつは、粒子の大きさ(粒度)を知るための「沈降法」であり、もうひとつは粒子の存在とその分量(分布)を知るための「光透過法」である。

沈降法は粉体の粒度分布を求めるのに古くから用いられており、非常に簡単な測定装置としてアンドレアゼンピペット(図1)がある。

粒子を水などの媒質(以後、分散媒)中に浮遊させると、徐々に沈んでいく。この沈降する速度  $V$  は、Stokes式で(1)式のように表すことができる。

$$V = \frac{1}{18} \times \frac{(\rho - \rho_0)g}{\eta_0} \times D^2 \quad \dots\dots\dots (1)$$

ここで  $D$  は粒子の直径(以後、粒子径)、 $\rho$ 、 $\rho_0$  は粒子と分散媒の密度、 $\eta_0$  は分散媒の粘度、 $g$  は重力加速度である。

(1)式から、粒子の沈降速度は粒子径の2乗に比例することがわかる。粒子と分散媒の材質が既知であれば、粒子が一定距離を沈降する時間を測定して簡単に粒子径を求めることができる。

粒子の沈降状態を測定するには光透過法を用いる。

CAPAでは、均一に粒子を分散させた分散媒(以後、懸濁液)の上面(沈降面)から一定深さ  $H$  の位置(測定面)の透過光量変化を測定している。

測定面の粒子濃度は透過光量から吸光度として測定される。

吸光度と粒子濃度は比例し、 $i$  番目の粒子径  $D_i$  の沈降時の吸光度  $A_i$  と透過光量  $I_i$  および粒子の量との関係は次式で表わされる。

$$A_i = \log\left(\frac{I_0}{I_i}\right) = K \sum_{i=1}^n k_i N_i D_i^2 \quad \dots\dots\dots (2)$$

ここで  $I_0$  は入射光量、 $K$  は装置定数、 $k_i$  は粒子径  $D_i$  の吸光係数、 $N_i$  は粒子の個数である。吸光度  $A_i$  は光軸上の粒子群の総断面積に比例することが判る。

図2(A)のように、分散している全ての粒子が同じ大きさであれば同じ速度で沈降するため、沈降開始からある時間が経つとそれまで一定であった測定面での濃度がゼロになり透過光強度が急激に増加するが、実際の測定試料はいろいろな大きさの粒子の集合体であり、その場合は図2(B)のように沈降時間の異なる(粒子径の異なる)粒子の濃度変化の合成となる。

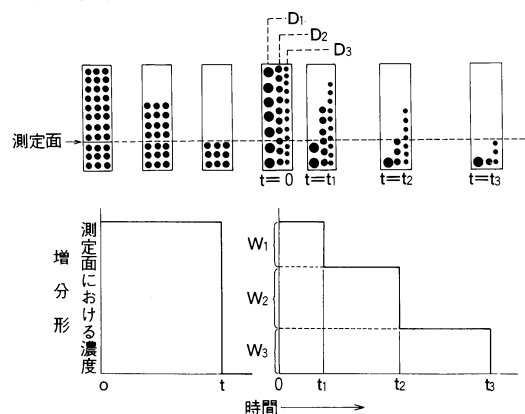


図2 粒子の沈降に伴う測定面での濃度変化  
Particle sedimentation as a factor of fluctuation in concentration at the measurement surface  
(A)粒子径が均一の場合 Particles of uniform diameter  
(B)粒子径にばらつきがある場合 Particles of random diameter

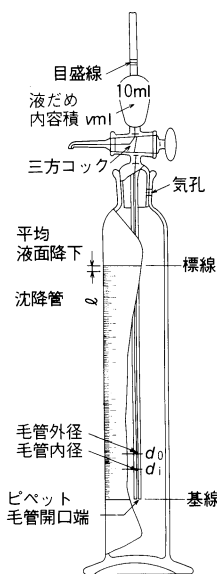


図1 標準形アンドレアゼンピペット)  
Standard Andreasen pipette

(1)式からもわかるように、粒子が小さくなるほど沈降速度が小さくなり測定に時間がかかる。その場合には自然重力に換えて遠心重力を用いることで沈降時間を短縮することができる。粒子径 D の沈降時間 t は次式で求められる。

$$t = \frac{18 \eta_0 \ln(X_2/X_1)}{(\rho - \rho_0) \omega^2 D^2} \dots\dots\dots (3)$$

ここで  $\omega$  は角速度,  $X_1, X_2$  は回転中心から沈降面と測定面までの距離である。

### 3. 装置の概要

#### 3.1 装置構成

CAPA-700の外観を図3に、装置構成を図4に示す。自然重力による自然沈降と、遠心重力による遠心沈降を別々の光学系で測定するようになっており、懸濁液はキュベット型のセルへ入れ自然沈降、遠心沈降各測定用のセルホルダーに挿入する。

遠心沈降測定用として高速直流モーターを内蔵しており、モーター軸に固定した回転ディスク上に遠心沈降用セルホルダーがある。ディスクの回転数は絶えずエンコーダーで読みとり、フィードバック制御で安定した回転数を得ている。

懸濁液の透過光強度測定用光源には緑色 LED を用いている。懸濁液を透過した光をサンプル側、懸濁液を透過しない光をリファレンス側として検出し、増幅器、アナログ-デジタル変換器 (ADC) を介してマイクロコンピュータ (CPU) へ入力する。CPU では透過光の検出強度を吸光度に換算し、その時間変化から粒度分布データを求めて CRT, プリンタなどに出力する。遠心沈降の場合には、サンプル側とリファレンス側の検出器を共用しており、それらの信号が交互に CPU へ入力されるので、区別するための同期信号発生用 LED および検出器を備えている。

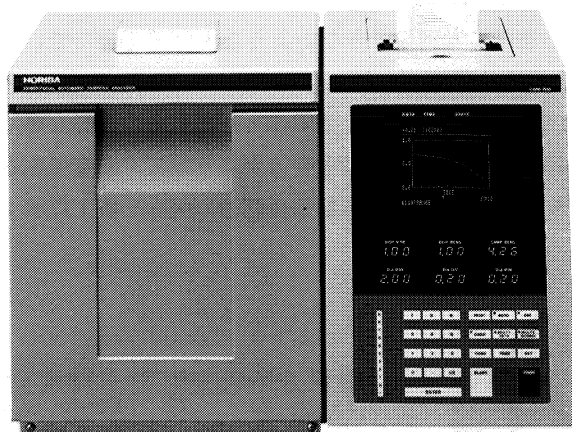


図3 CAPA-700外観  
External view of the CAPA-700

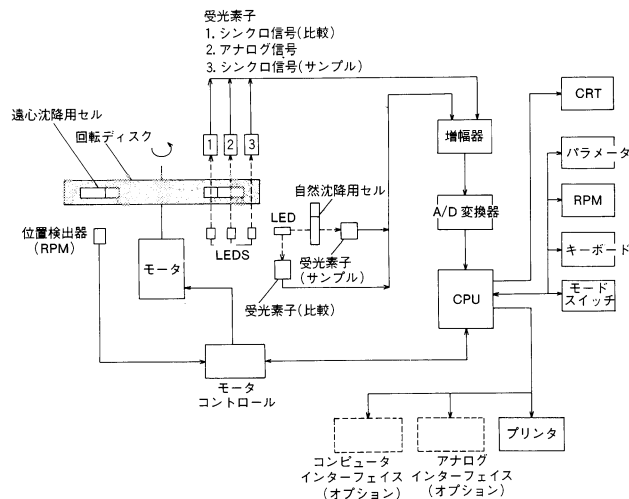


図4 CAPA-700装置構成  
Configuration of the CAPA-700

### 3.2 CAPA-700の特長

#### (1) ディスクの高速回転

CAPA-700は微小粒子測定時間の短縮のため、ディスクを10,000rpm という高速で回転させることができる。10,000rpm で懸濁液を回転させると、自然重力の約9,000倍の加速度が得られ、単純に計算すると自然沈降測定の1/9,000の時間で測定ができることになる。

もちろんディスクの回転数を下げて比較的大きな粒子を測定することもできる。回転数は300rpm から10,000rpm の範囲を10段階で選択できる。

#### (2) 幅広い粒子径の測定

大きな粒子から小さな粒子まで広範囲の分布を持つ測定試料の場合は、自然沈降測定のみ、あるいは単一回転数の遠心沈降測定のみでは測定したい全粒子径範囲をカバーできない場合がある。

自然沈降では数100 $\mu\text{m}$ の大きな粒子を測定できるが、サブミクロンの小さな粒子は測定に時間がかかり過ぎたり、3時間の最大測定時間でも沈降せず測定できないことがある。一方、遠心沈降では10,000rpmの高速回転を用いれば0.01 $\mu\text{m}$ の微粒子を測定できるが、大きな粒子の場合には、ディスクが回転を始めてから設定回転数に達して吸光度測定を開始するまでに沈降して測定できないことがある。とくに高速回転ではその影響が大きい。

その場合には次の方法により、粒子径の測定範囲を広げることができる。

##### a. 等加速遠心沈降測定

この方法は、最低回転数の300rpm から最大回転数の10,000rpm まで徐々に回転数を上昇させながら吸光度を測定する。自然沈降でしか測定できないような100 $\mu\text{m}$ 程度の大きな粒子径には適さないが、幅の広い粒子径範囲を一度の遠心沈降で測定できるため、測定の時間や手間を大幅に削減できる。図5に本方法と等速遠心沈降との測定範囲比較例を示す。

##### b. 自然、遠心沈降測定のデータリンク

300rpmの低速での遠心沈降でも測定できないような大粒子を含んでいる場合には、自然沈降測定と遠心沈降測定を個別におこない、CPUで各測定データをつなぎ合わせてひとつの粒度分布結果とすることができる。遠心沈降には等速回転または等加速回転の選択ができ、後者の方がより幅広く測定できる。

種々の沈降方法(測定モード)と測定できる粒子径範囲の関係を表1に示す。

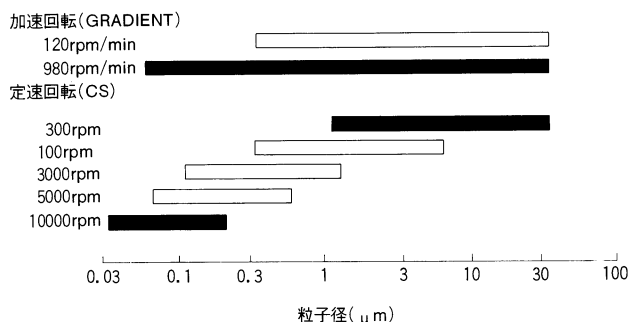


図5 10分間で測定可能な粒子径範囲(酸化チタンを測定した場合)  
Range of particle sizes that can be measured in 10 minutes  
when measuring titanium dioxide

測定モード	CAPA-500	CAPA-300	CAPA-700	測定範囲(μm)
自然沈降	○	○	○	300~10 (X30)
遠心沈降	○	○	○	10~0.01 (X30)
自然+遠心沈降		○	○	300~0.1
加速遠心沈降			○	10~0.01
自然+加速遠心沈降			○	300~0.01(全領域)
未知試料	○	○	○	時間指定

測定範囲は粒子の物性により異なる。  
(X30)は、範囲内で30倍の粒度が測定可能。

表1 CAPAの各種機で可能な沈降方法(測定モード)と測定粒子径範囲概略  
Overview of the CAPA Series : (1) the possible types of sedimentation in the measurement mode ; (2) range of measurable particle sizes



## 4. 信頼性向上のための各機能

CAPA-700には信頼性の高い粒度分布測定結果を得るための工夫が種々施されており、その数例を次に述べる。

### 4.1 リファレンスセルを用いたバランス

図6で示すように遠心沈降用回転ディスクは、軸対象の位置に2個のセルを装着するようになっている。一つは測定する粒子群の浮遊する懸濁液を入れたサンプルセルで、もう一つは分散媒のみを入れたリファレンスセルである。

ディスクは最大10,000rpmの高速で回転するため、わずかな重量のアンバランスにより大きな振動が発生する。リファレンスセルにサンプル側と同じ分散媒を入れることにより、分散媒の比重に関わらずディスクの重量バランスの調整を不要としている。

さらにリファレンスセルには光学的バランスの役割がある。光源(緑色LED)の光量が測定中に変化してサンプル側検出光量の変動しても、リファレンス側の検出光量を基準として補正することにより光源光量変化の影響を除外できる。

しかし単に光源光量変化の補正ならリファレンスセルを介さずに光源の近辺にリファレンス側検出器を置けば良いのだが、遠心沈降では測定セルが光軸を横切るのは一瞬であるために、回転数を300rpmから10,000rpmと大きく変化させると、増幅回路の時定数のために検出器の増幅回路から出力される検出光量波形が異なってくる。粒子群が存在しないこと以外は全てサンプル側と同じ条件のリファレンスセルを用いることで、この回転数変化による影響もなくしている。

### 4.2 懸濁液の温度上昇防止

測定中にディスクからセルへ熱が伝わり懸濁液の温度が上昇すると、分散媒の粘性係数が変化するだけでなく、セル内の温度が均一でないと懸濁液の対流による粒子群の移動が生じ、測定誤差の原因となることがある。

セルへの熱伝達防止のために、CAPA-700は次のような対策をしている。

#### (1) 吸光度測定用の光源に緑色LEDを使用

緑色LEDを光源として赤外光を含まない光をセルに照射しているため、光軸上の懸濁液の温度上昇を無視できる。

#### (2) 回転ディスクの材質として樹脂を使用

従来の回転数の低い機種ではディスクの材質としてアルミニウムを用いて強度を得ていたが、とくに高速回転のCAPA-700ではモーターの発熱量が大きくなる。そこで、ディスクを介してセルに熱が伝わらないよう、強度と断熱を両立させるために工業用プラスチックをディスクに使用し、さらにディスク外周にジュラルミン円冠を取り付けて強度を確保している。

#### (3) ディスクとモーターの冷却風流路の工夫

図7に遠心沈降用ディスクとモーター部を冷却するための風流路を示す。

モーターの回転により生じる熱で暖められた空気がディスクへ流れ込まないように、また強制空冷するためにモーター下部にファンを設けた。

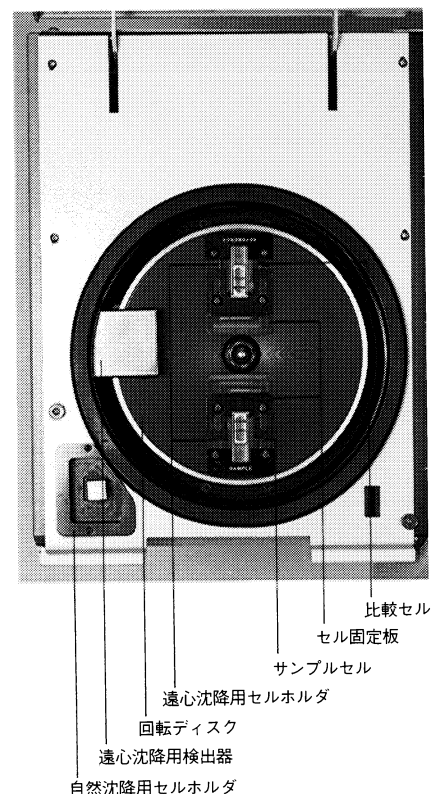


図6 CAPA-700測定試料室  
(試料室蓋を開けて、上から見たところ)  
CAPA-700 sample chamber, seen from above with the cover opened

さらにディスクが回転すると中心から外周へ向けての風流が生じるので、その流れで空冷を効率よく行なうように試料室蓋の回転中心近傍に外気取り込み口を試料室側壁に排気ダクトを設け、さらに回転停止時にも空冷が進むよう排気ダクトにもファンを配した。

#### 4.3 自然/遠心沈降測定のリック

3.2で述べたように幅広い粒子径範囲を自然沈降と遠心沈降の両方で測定し、ひとつの粒度分布測定結果とすることができる。このとき自然、遠心両測定間で測定しない粒子径領域があると両測定間のデータリンクがスムーズにおこなえず、リンク後の粒度分布測定結果が信頼性に問題を生じる場合がある。

このような両測定間での無測定領域が生じないように、遠心沈降では測定できない大粒子径側の測定範囲は必ず全て自然沈降で測定するようにする必要がある。なお、この境界径の選択は本来試行錯誤が必要で手間のかかるものであるが、CAPAでは内蔵のマイクロコンピュータにより自動設定できる。

#### 4.4 遠心沈降時の懸濁液の洩れ出し防止

遠心沈降測定では安定した遠心加速度を得るため遠心沈降用ディスクを水平に回転させており、図6のように懸濁液を入れた測定セルを横に寝かせた状態でホルダにセットする。ところで、ディスクの回転時は円周方向へ力がかかるので懸濁液がセルとセル蓋の隙間から洩れだすことはないが、静止時には重力のため洩れだそうとする。懸濁液がセル外に洩れだすと、測定時に遠心力により測定面方向へ流れて光軸を妨げることになる。

懸濁液の洩れは、セル、セル蓋の隙間とセルホルダが接している部分での毛管現象が原因となっている。そこで、隙間とセルホルダ間が接しないように隙間部のセルホルダに図8に示すような段差を設けている。これにより洩れでできた懸濁液は表面張力のためにこれ以上隙間部から外へ出ることはない。

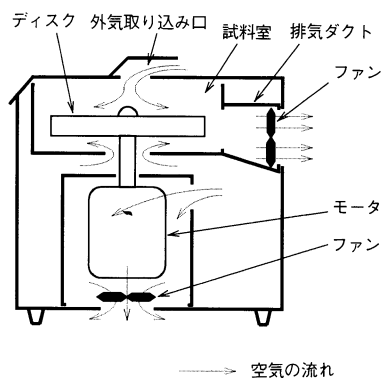


図7 遠心沈降測定部の冷却風路  
Path of cooling air used in the centrifugal acceleration measurement unit

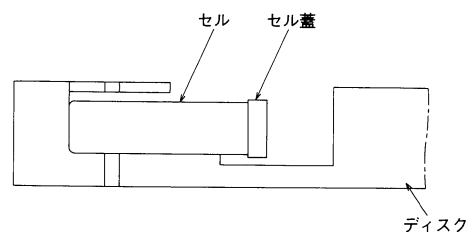


図8 ディスクのセルホルダ部断面図  
Cross-section view of the disk cell holder

## 5. まとめ

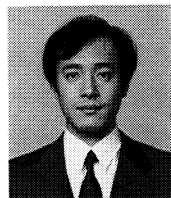
これまで述べてきたように、CAPAでは測定データの信頼性を高めるための種々の機能を有しているが、信頼性の高い測定結果を得るためには分散媒に浮遊している粒子の安定性が重要である。

例えば雲母のような偏平状の粒子では、沈降が不安定であるだけでなく粒子の向きによって透過光量が大きく変わる。また粒子が分散媒に溶解したり測定中に凝集するなど、粒子そのものが変化することもある。そのような場合には、分散媒の種類を検討したり、測定時間が長くはなるが、自然沈降測定や低速回転での遠心沈降測定を選択するなどの工夫が必要となる。

今後は測定装置の性能をさらに高めていくことはもちろん、試料の調整や測定条件の設定などいわゆる分析ノウハウに関してもいっそう力を入れていきたいと考えている。

#### 参考文献

- 1) 日本粉体工業会編，“粉体計測ハンドブック”，日刊工業新聞社(1981)，P.58-60.
- 2) 粉体工学会，日本粉体工業技術協会編，“粉体物性図説”日経図書(1985)，P.96-100.
- 3) 川北公夫他，“粉体工学(基礎編)”，槇書店(1979)P.66-76.



東川喜昭

Yoshiaki Togawa

開発1部 主任  
1961年8月10日生  
京都工芸繊維大学  
工学部機械工学科

## レーザー回折/散乱式粒度分布測定装置 LA-700

## Laser Scattering Particle-Size Distribution Analyzer LA-700

湯原 義公・鈴木 哲也

Yoshihito Yuhara, Tetsuya Suzuki

---

**要 旨**

当社において粒度分布測定装置を開発しだしたのは、約10年ほど前からである。当時の主流は、遠心沈降式によるものであったが、時代の流れと共にレーザー回折/散乱式が中心となってきている。今回新開発したレーザー回折/散乱式粒度分布測定装置 LA-700は、ユーザーのニーズに十分答えられる製品と考えている。本稿では、この装置の測定法について概説し、あわせて特長と若干の応用例などについて述べた。

**Abstract**

Horiba began the development of particle-size distribution analyzers about ten years ago. At that time, the most common type of method used was photo-sedimentation with gravitational and centrifuge acceleration. With developments in technology over the intervening years, however, laser scattering has come to be the primary method used in particle-size distribution analyzers. Horiba's latest commercial development in this area is the Model LA-700, a laser-scattering particle-size distribution analyzer, designed specifically to meet a wide range of users' needs. This paper outlines the method of measurement used on the Model LA-700, looking at some of its special features and using several practical examples of particle-size distribution measurement.

---

**1. はじめに**

セメントや窯業などのほとんどの鉱工業分野、セラミックスなどを中心とする新素材分野において、原材料は、多くの場合、粉粒体として取り扱われている。そこでは、その粉粒体の基本的特性の管理を粒度分布の測定で行っていることが多い。たとえば、セラミックスの場合、原料の粒度分布が焼結後の物理特性を左右する。また触媒を単体として使う場合、その粒径の均一性が、医薬品などの生成反応効率に影響を及ぼす。したがって、品質の良い製品を生産するためには、原材料の正確な粒度分布を把握することが非常に重要であり、研究開発分野、品質管理分野から、簡単で迅速に測定できる装置を望む声が高まっていた。そこで、当社では、1988年に、 $0.1\mu\text{m} \sim 200\mu\text{m}$ の粒子径範囲を簡単に測定できるレーザー回折法を測定原理とした粒度分布測定装置 LA-500を開



発した。

しかし、新素材分野、特にセラミックスや、高分子分野からより微小なサブミクロン領域粒子の測定を要望する動きが活発になってきた。そのため、1991年、LA-500の特徴をそのまま生かし、微小粒子への感度を高めた、レーザ回折/散乱式粒度分布測定装置 LA-700を開発した。本稿では、LA-700の測定原理、特長、測定例について紹介する。

## 2. 測定原理

本装置は、光の回折/散乱現象を利用して粒度分布測定を行う装置である。

### 2.1 光散乱と粒子計測の関係<sup>1,2)</sup>

一般的に光散乱現象は、Maxwell の電磁方程式から厳密に解かれた Mie 散乱理論で説明されることが多い。しかし、その取扱いが複雑なため、入射波長  $\lambda$  と粒子半径  $r$  との関係が以下の場合

- $r < \lambda$  : Rayleigh 散乱理論
- $r \approx \lambda$  : Mie 散乱理論
- $r > \lambda$  : Fraunhofer 回折理論

の各理論式を用いる。

粒子径が波長より大きい領域では、Fraunhofer 回折は Mie 散乱の近似として取り扱える。

Mie 散乱理論によれば、単一球状粒子に光(単色光)が入射した場合、散乱光強度は、球の周長と入射光波長との比で定義される粒径パラメータと、粒子と媒質の屈折率の比、つまり相対屈折率によって決定される(図1)。散乱強度は散乱角によって変化し、その大きさによって以下のように区別される。

- $0^\circ \leq \theta < 90^\circ$                       前方散乱
- $\theta = 90^\circ$                               側方散乱
- $90^\circ < \theta < 180^\circ$                   後方散乱      ( $\theta$ : 散乱角)

粒子径が波長より大きい場合(Fraunhofer 領域)、散乱光はほとんど前方にだけ集中し、粒子径の大きさに依存して散乱光強度が大きく変化する。この粒子の光強度分布(散乱パターン)がわかれば、その粒子径を特定することができる。光強度分布は、図2に示す同心円上に検出区域を分割したシリコンフォトダイオード(リングデテクター)によって検出される。

### 2.2 高感度化<sup>2,3,4)</sup>

一方、粒子径が波長より小さい場合(Mie 領域)、散乱光は散乱角に依存して側方・後方散乱の割合が増加し、やがて全方向に広がるようになる。0.1  $\mu\text{m}$  以下の粒子では、前方散乱光の強度分布に明確な差がなくなるため、前方散乱の情報だけでは微小粒子径を判断することはできなくなる。したがって、散乱強度を近似式で表せず、厳密な Mie 散乱理論による検討が必要になる。

図3を見ると、1.8  $\mu\text{m}$  の粒子の散乱光強度は、散乱角の小さい範囲(前方散乱)で非常に大きく変化しているのがわかる。この場合は前方散乱光だけの検出で粒子径を判別できる。

一方、粒子径が0.4、0.2  $\mu\text{m}$  と小さくなると同じ散乱角範囲では光強度の変化が小さい。しかし、広い散乱角範囲(側方・後方散乱領域)では、わずかながら光強度が変化しているのがわかる。したがって、微小粒子径を測定するため

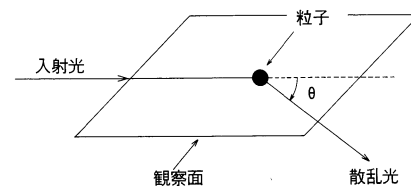


図1 ミー散乱：粒子からの散乱光の様子  
Mie scattering: Behavior of light scattered from a particle

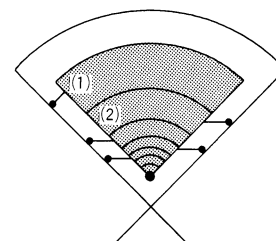
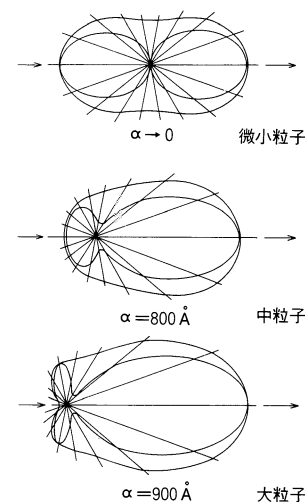
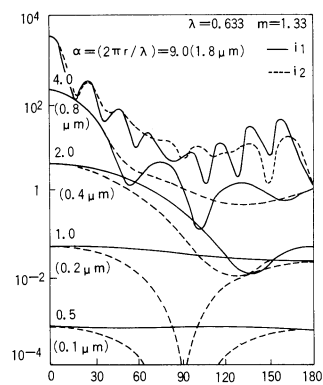


図2 リングデテクター：独自開発した同心円上に18分割されているリング状のデテクター  
Ring detector: Horiba's new detector using 18 divisions ring shaped silicon photodiode



(A) 粒子からの散乱光の広がり様子  
Diffusion behavior of light scattered from a particle



(B) 散乱光強度の角度分布  
Angular distribution of scattering intensity

図3 微小粒子による光散乱<sup>4)</sup>  
Light scattering from a particle

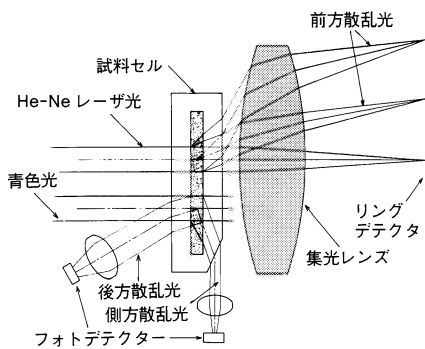


図4 LA-700光学系の構造  
Configuration of the LA-700 optical system

には、側方・後方散乱光の強度分布の検出が不可欠となる。

LA-700で採用した新しい光学系は、図4に示したように、前方散乱用のリングデテクターの他に、側方と後方用の検出器を一つずつ追加した。さらに側方と後方の散乱光検出用の光源に関しては、タングステンランプを用い、He-Ne レーザ光より短波長の光よりわずかな散乱光の強度分布を検出することとした。つまり、前方散乱光は、従来どおり He-Ne レーザ光を用いリングデテクタで検出し、側方、後方散乱光は、より短波長の光を用いフォトダイオードで検出する。この光学系を開発することにより、一度に幅広い範囲の粒子径の測定を可能とした。

### 2.3 粒度分布の演算方法

現実のサンプルは単一粒子ではなく、大きさ、形の異なる多数の粒子が混在している。そのため粒子群から生じる散乱光強度の分布パターンは、それぞれの粒子からの散乱光の重ね合わせとなっている。各検出器の粒子径に対する感度(応答関数)は、先に述べた Mie 散乱理論からあらかじめ求めることができるので、n 個の検出器で検出されるとすると、測定値は次式で表される。

$$g(N) = \sum_{i=1}^n K(N, D_i) f(D_i) \Delta D \quad \dots\dots\dots (1)$$

- g(N) : N 番目の検出器の出力
- K(N, D<sub>i</sub>) : N 番目の検出量の応答関数
- f(D<sub>i</sub>) : 粒度分布(体積基準)
- D<sub>i</sub> : i 番目の代表粒径
- ΔD : 粒径間隔

検出器の測定値がわかると粒度分布は、数学的逆変換によって求められる。すなわち(1)式で表される検出器の出力とその応答関数の関係から粒度分布を逆算するのである。この逆算方法としては、数種類の方法があり、代表的なものは、線形行列方程式や統計による解法、最小自乗法、反復演算法などがある。

行列式から求める方法は、演算時間が短い反面、分布結果が発散したり、負の解が求められることがある。粒度分布には負の解はありえず、このため行列式による解法を使うためには多くの束縛条件を必要とし、また粒子径分割数を極端に多くすることも困難である。

一方、反復演算法は、応答関数を実測の散乱パターンと比較しその差がゼロになるように修正を加えながら正しい分布に近づける方法である。この方法は、ノイズに強いうえに解が発散せず、分布の形態によらず正確に求められさらに複数ピークを持つ分布に対しても忠実に求められる長所がある。反面、行列法と比べると演算時間がかかるのが欠点となる。

LA-700ではこの反復演算法を用いており、演算時間短縮のためアルゴリズムを改良し、また16ビット演算チップを用いて高速化を実現した。

## 3. 装置の概要

### 3.1 LA-700の特長

- 本装置は下記の特長を持っている。
- ①0.04～262 μm の粒子径範囲を一度に通常20秒の高速で測定ができる
- ②測定粒子径範囲を64分割ヒストグラム表示する高分解能を実現
- ③CRT との対話方式により操作性が高い

- ④装置本体でデータ保存・演算処理が可能，また RS-232C 出力を装備しておりパソコンでの処理ができる
- ⑤オートサンプラと自動希釈ユニットによる連続フルオート測定ができる

### 3.2 装置の構成

図5に装置の外観を，図6にシステムフローを示す。

サンプル粒子は，超音波バスで分散・攪拌されながら，循環ポンプで試料セルとの間を循環させる。He-Ne レーザ光およびタングステンランプ光をセル内の粒子に照射し，生じた散乱光は合計20個の検出器で検出，電気信号に変換され，装置制御・演算部のCPUで粒度分布に演算，表示される。

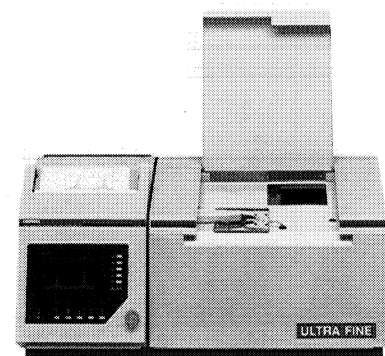


図5 レーザ回折/散乱式粒度分布測定装置 LA-700  
Laser-scattering particle-size distribution analyzer LA-700

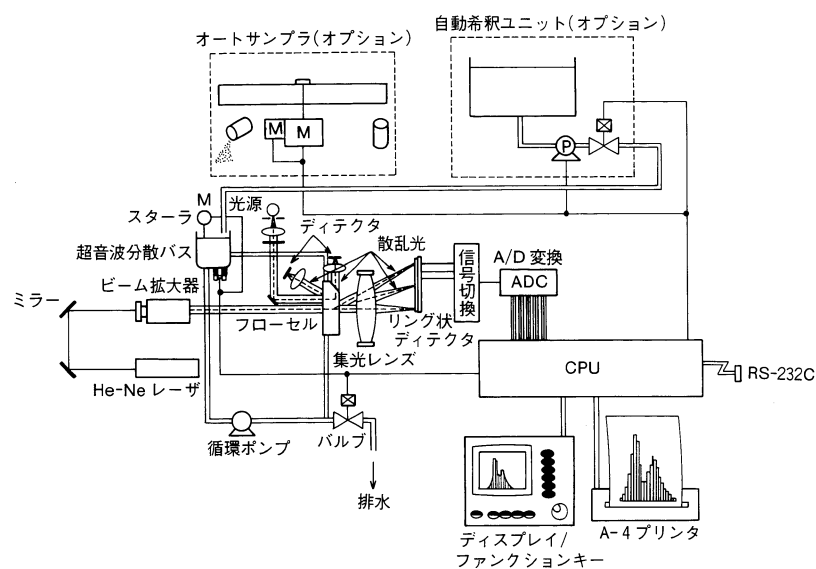


図6 LA-700システムフロー  
LA-700 system flow diagram

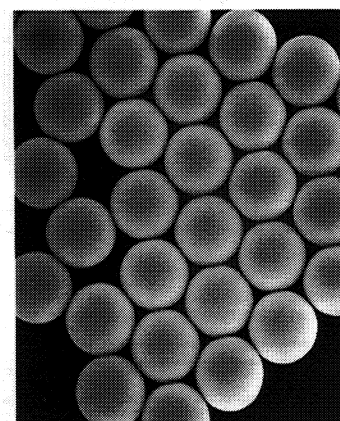


図7 標準粒子PSL拡大写真  
Blowup of standard PSL particles

## 4. 測定例<sup>9)</sup>

### 4.1 ポリスチレンラテックスによる測定例

市販されている標準粒子であるポリスチレンラテックス (Polystyrene latex : PSL) の電子顕微鏡写真を図7に示す。この粒子はほぼ球形で単分散に近い粒子であることがわかる。また種々の粒子径のPSLが市販されており，これを用いた測定結果を以下に示す。

図8は，種々の粒子径のPSLを測定し，粒子径公称値とLA-700測定値の相関をみたものである。広い粒子径範囲において良く一致しているのがわかる。

図9は，これまでレーザ回折/散乱式では不可能であると言われてきた0.1  $\mu\text{m}$  以下，公称値0.082  $\mu\text{m}$  のPSL粒子の測定結果である。このような微小粒子を精度良く，しかも分布の広がりにも忠実に測定することができる。

図10に示すように共存物質がある場合もピーク値は公称値と一致している。

また図11は，2種のPSLを，重量比で1対1および1対4に混合した場合の測定結果である。これより定量性のある測定が確認できた。

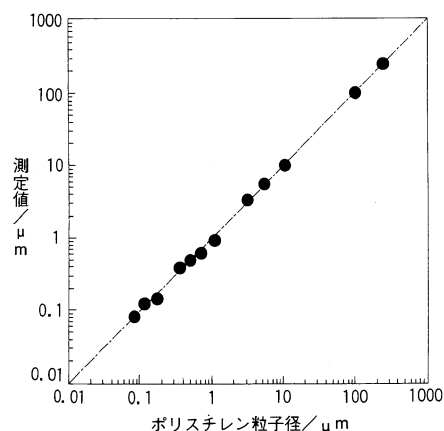


図8 PSL公称値とLA-700実測値との相関関係  
PSL particle diameters : Correlation between standard official values and results of measurement by the LA-700

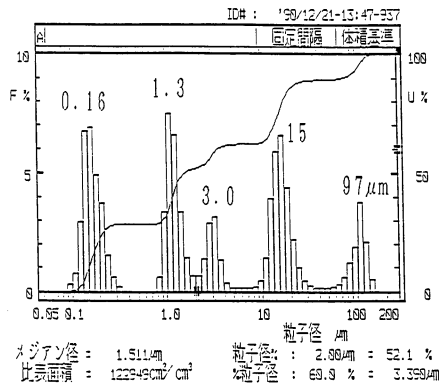
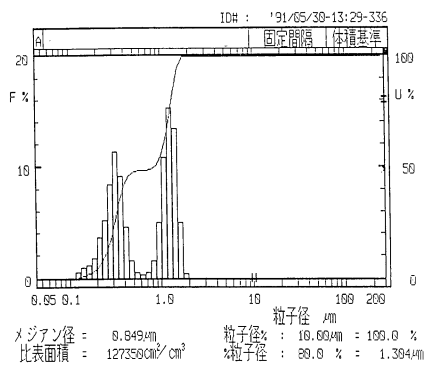
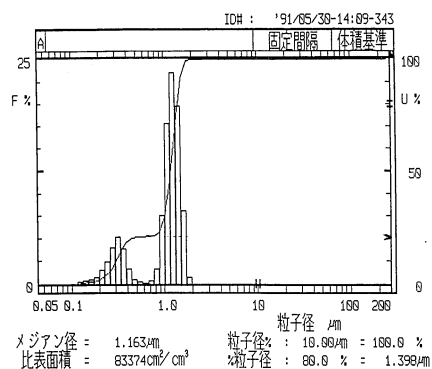


図10 PSL 5種混合した場合の測定結果  
Results of measuring a sample containing 5 types of PSL particles



(A) 1 : 1 に混合したもの  
1 : 1 weight ratio



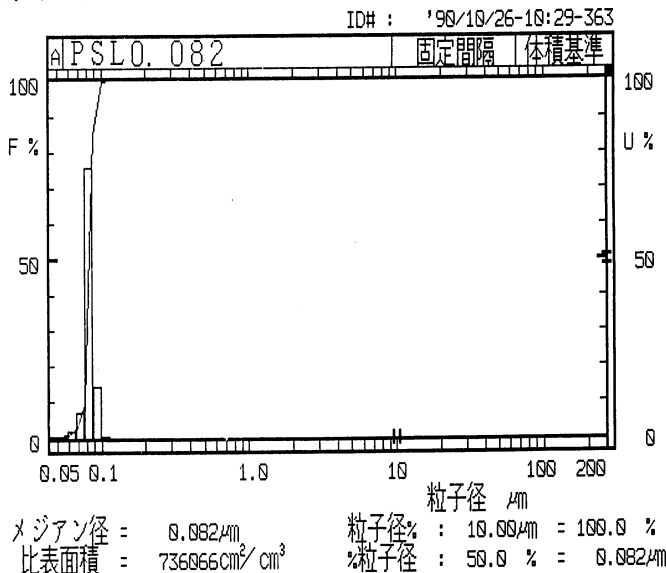
(B) 1 : 4 に混合したもの  
1 : 4 weight ratio

図11 PSL 重量比 1 : 1 と 1 : 4 に混合した場合の測定例  
Samples with PSL-particle differential-weight ratios of 1 : 1 and 1 : 4

## HORIBA LA-700 PARTICLE SIZE ANALYZER '90/10/26

試料名 : PSL0.082  
 ID# : '90/10/26-10:29-363  
 測定モード : 分布形態 屈折率設定 透過率  
 1 3 1.2 98.0%

### 粒度分布グラフ



### 粒度分布表

分割#	粒子径 (μm)	頻度%	ふるい下%	分割#	粒子径 (μm)	頻度%	ふるい下%
(01)	262.4	0.0	100.0	(33)	3.41	0.0	100.0
(02)	229.1	0.0	100.0	(34)	2.98	0.0	100.0
(03)	200.0	0.0	100.0	(35)	2.60	0.0	100.0
(04)	174.6	0.0	100.0	(36)	2.27	0.0	100.0
(05)	152.4	0.0	100.0	(37)	1.98	0.0	100.0
(06)	133.1	0.0	100.0	(38)	1.73	0.0	100.0
(07)	116.2	0.0	100.0	(39)	1.51	0.0	100.0
(08)	101.4	0.0	100.0	(40)	1.32	0.0	100.0
(09)	88.58	0.0	100.0	(41)	1.15	0.0	100.0
(10)	77.34	0.0	100.0	(42)	1.00	0.0	100.0
(11)	67.52	0.0	100.0	(43)	0.88	0.0	100.0
(12)	58.95	0.0	100.0	(44)	0.77	0.0	100.0
(13)	51.47	0.0	100.0	(45)	0.67	0.0	100.0
(14)	44.94	0.0	100.0	(46)	0.58	0.0	100.0
(15)	39.23	0.0	100.0	(47)	0.51	0.0	100.0
(16)	34.25	0.0	100.0	(48)	0.45	0.0	100.0
(17)	29.91	0.0	100.0	(49)	0.39	0.0	100.0
(18)	26.11	0.0	100.0	(50)	0.34	0.0	100.0
(19)	22.80	0.0	100.0	(51)	0.30	0.0	100.0
(20)	19.90	0.0	100.0	(52)	0.26	0.0	100.0
(21)	17.38	0.0	100.0	(53)	0.23	0.0	100.0
(22)	15.17	0.0	100.0	(54)	0.20	0.0	100.0
(23)	13.25	0.0	100.0	(55)	0.17	0.0	100.0
(24)	11.56	0.0	100.0	(56)	0.15	0.0	100.0
(25)	10.10	0.0	100.0	(57)	0.13	0.0	100.0
(26)	8.82	0.0	100.0	(58)	0.11	0.2	100.0
(27)	7.70	0.0	100.0	(59)	0.10	14.5	99.8
(28)	6.72	0.0	100.0	(60)	0.09	75.7	85.2
(29)	5.87	0.0	100.0	(61)	0.08	7.1	9.6
(30)	5.12	0.0	100.0	(62)	0.07	1.8	2.5
(31)	4.47	0.0	100.0	(63)	0.06	0.5	0.7
(32)	3.90	0.0	100.0	(64)	0.05	0.2	0.2

図9 PSL 0.082 μm 測定結果  
Results of measuring 0.082 μm PSL particles

## 4.2 アルミナ粒子による測定結果

図12は粒径の異なる研磨剤(アルミナ粒子)を3種混合した場合の測定結果である。このようにPSLとは異なる多分散試料で、しかも混合した場合でもきれいな累積分布が得られた。

図13は2種類の粒度分布データの比較グラフおよび差分グラフを示している。超音波照射時間による粒度分布の推移や、サンプルのロット間の比較など、本体のCRT上にて簡単に操作が行えるようになっている。

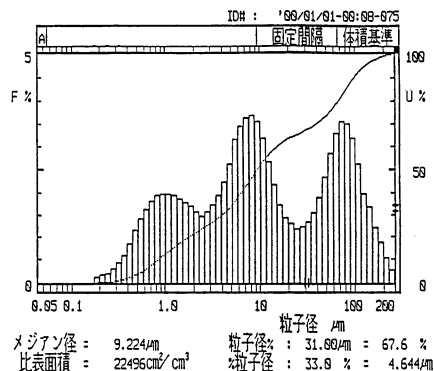
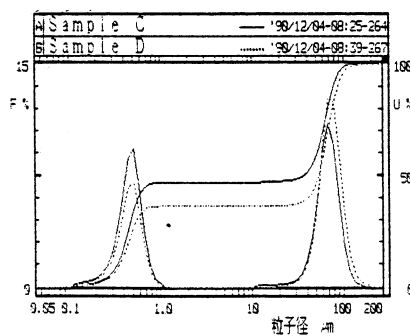
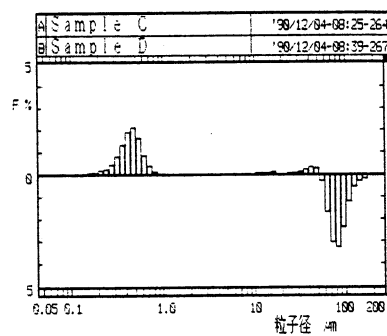


図12 アルミナ3種混合した場合の測定例  
Example of measuring a sample containing 3 types aluminum oxide particles



(A)比較データ  
Comparison data



(B)差分データ  
Difference data

図13 2種類の測定結果の比較、差分データ  
Comparison data and difference data on the results of 2 types of measurement

### 4.3 バッチセルによる測定例

分散媒に有機溶媒を用いる場合や、サンプルを回収したい場合には、図14に示すオプションのバッチセルによる測定を行う。

図15にバッチセルを用いた応用例を示す。2種類のエマルジョンサンプルを混合することにより生成する凝集体の経時変化を追ったものである。

このように流通式の測定系を用いることができずに静置を必要とする場合でも、バッチセルによって粒度分布を測定することができる。

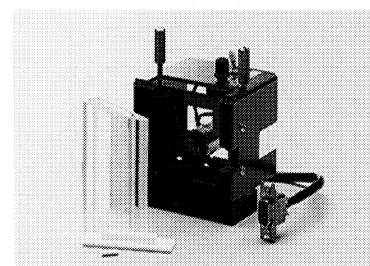


図14 バッチセルおよびバッチセルホルダー(オプション)  
Fraction cell and Fraction cell holder (option)

## 5. 自動化

本体にオプションの自動希釈ユニットとオートサンプラを組み合わせたシステムの外観図を図16に示す。本システムでは、24試料をフルオートで測定し、同時にデータ管理も行える。自動測定の流れを図17に示した。オペレータは試料を適量セットして自動測定キーを押すだけでよく、測定の合理化・省力化など、時間の有効利用に大きく寄与する。

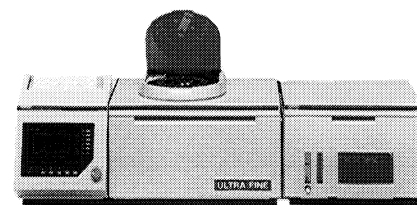


図16 オプションユニットを全て装備したLA-700  
The Model LA-700 laser scattering particle-size distribution analyzer with all optional units

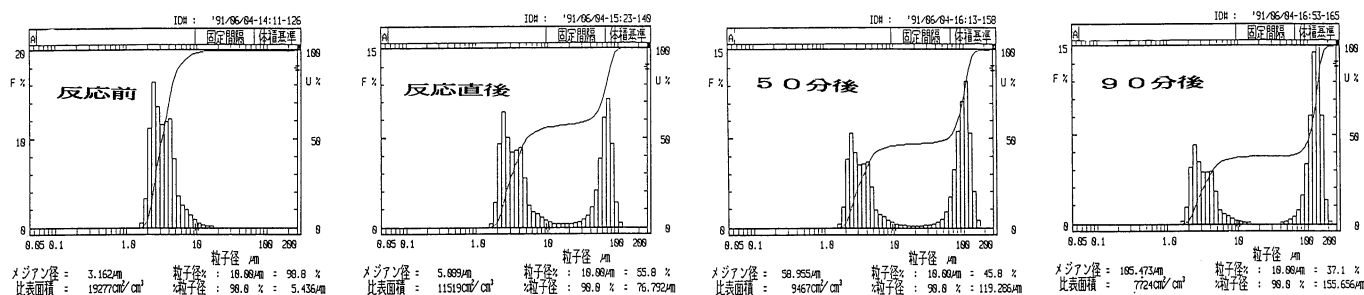


図15 バッチセルを用いた場合の測定例 2種類のエマルジョンサンプルを混合した場合の粒度分布の経時変化  
Example using a fraction cell time-dependence of particle-size distribution in 2 types of emulsion samples

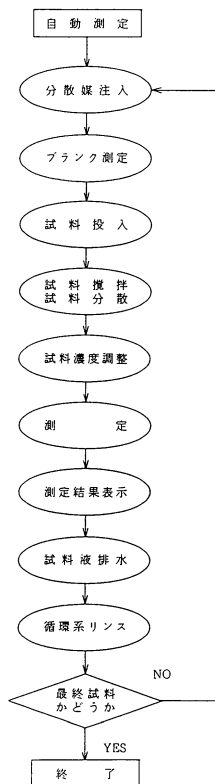


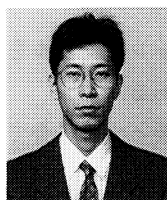
図17 オートサンプラ(オプション)使用時の測定フローダイアグラム  
Measurement flow-chart using optional auto-sampler

## 6. おわりに

粒度分布測定は、昔から研究者の時間と手間を奪ってきたが、各種自動化装置、とりわけレーザ回折/散乱式装置の開発により、研究開発・品質管理など広い分野へ普及してきている。今後も、市場から求められる要望にお答えし、幅広く用いられる製品の開発を行っていきたいと考えている。

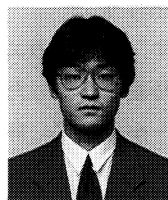
### 参考文献

- 1) M.Kerker "The Scattering of Light and Other Electromagnetic Radiation" Academic Press (1969).
- 2) H.G.Barth "Modern Methods of Particle Size Analysis" John Wiley & Sons (1984).
- 3) 高橋幹二著 改訂 基礎エアゾル工学 (養賢堂発行).
- 4) G.Mie: Ann.d.Physik (4) 25.429 (1908).
- 5) 粉体工学研究会編「粒度測定技術」日刊工業新聞社(1975).



湯原義公

Yoshihito Yuhara  
開発1部  
1962年6月18日生  
京都工芸繊維大学大学院  
工学研究科工業化学専攻



鈴木哲也

Tetsuya Suzuki  
製品開発部  
1965年11月7日生  
京都工芸繊維大学  
工学部工業化学科



## 薬液用微粒子カウンター PLCA-700

## The Model PLCA-700 Liquid-Particle Counter

久保 良宏

Yoshihiro Kubo

**要 旨**

産業技術の高度化にともない、半導体工場など先端技術の現場では、さまざまな液体の中の微粒子の大きさと濃度の管理が必要となっている。これらの現場で使用される薬液は酸、アルカリ、有機液体など種類が多く、物性もそれぞれ異なり、これが薬液中の微粒子計測を困難なものにしている。一方、管理濃度が低くかつ大量の試料の迅速処理が必要となってきた今日、ろ過を基本とする従来の測定方法では多くの問題があった。当社では、レーザ側方散乱法を測定原理とした薬液用微粒子カウンター PLCA-700シリーズを開発・製品化した。本稿では、本装置の概要と測定原理を述べ、あわせて校正方法についても紹介する。

**Abstract**

With the rapid advances in technology in the manufacturing world, at state-of-the-art production plants for semiconductors and other high-tech products, it has become necessary to control both the size and the concentration of particles in numerous types of chemical solutions. The types of solutions actually used in the production process frequently include acids, strong alkaline substances, and various organic solutions. The physical properties of these substances especially the refractive index, vary greatly, making it difficult to measure the particles in these solutions. Today we are faced with the problem of measuring extremely large volumes of solution that contain a relatively low concentration of particles that need to be checked. The traditional method of filtering the solutions to measure particles has a number of inherent problems that make it inadequate for today's needs. To meet these needs, Horiba has developed and begun to produce the PLCA-700 of liquid-particle counters. The PLCA-700 Series measures particles using a laser side-scattering principle. This paper gives an overview of the PLCA-700 liquid-particle counter and discusses the underlying measurement principle, with an introduction to the calibration method of the unit.

**1. はじめに**

集積度が16メガビットを越すような超 LSI 製造工場では厳しく微粒子を管理する必要がある。ここで使われる超純水は、直径 $0.05\ \mu\text{m}$ の粒子が $1\ \text{cm}^3$ あた

(個/ml, 95%信頼限界上限値)

	$\geq 0.2 \mu\text{m}$	$\geq 0.5 \mu\text{m}$
HCl	4.7-10.0	1.2-5.0
HF	0.59-2.0	1-2
HNO <sub>3</sub>	3,300-7,800	600-700
H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	37-107	8-29
H <sub>3</sub> PO <sub>4</sub>	632-1123	78-221
H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	950-1,200	17-860
NH <sub>4</sub> OH	390-1,800	64-67

表1 種々の薬液中の微粒子濃度<sup>2)</sup>  
Particle concentrations in various  
chemical solutions

り10~20個以下にするような厳しい管理が必要である<sup>1)</sup>。一方、薬品についても、その製造工程の最終フィルターの孔径が $0.2 \mu\text{m}$ から $0.1 \mu\text{m}$ 、 $0.05 \mu\text{m}$ と小さくなっており、現在では、薬品によっては $0.2 \mu\text{m}$ の粒子が $1 \text{cm}^3$ あたり10個を下回るものも出ている表1<sup>2)</sup>。これにともない $0.1 \mu\text{m}$ 以下の微粒子の測定が可能な微粒子カウンターの開発が望まれている。また、光ファイバーや液晶(Liquid-Crystal Device : LCD)などの光デバイスの製造工程でも微粒子の管理を必要としている。

当社では、工場の現場管理に適した薬液用微粒子カウンター PLCA-520を製造・販売しているが、このような背景のもとに、新たに3機種のセンサーユニットをラインナップするとともに、従来のカウンターユニットに双方向通信機能を付加し、パーソナルコンピュータから操作できるPLCA-700シリーズを開発した。本稿では、3機種のセンサーユニットの紹介を行い、とくに、オフライン測定(バッチ測定)を目的として開発したPLCA-700 SNS-20の装置の構成、測定原理、校正方法などを解説する。

## 2. 装置の概要

従来、液体用微粒子カウンターは、注射液中に存在する $10 \mu\text{m}$ 程度の大粒径の微粒子を測定したり、機械工業分野では、作動油や潤滑油中の $1 \mu\text{m}$ の微粒子を測定することなどに使われてきた。一方、半導体産業の発展とともに、今日では $0.1 \mu\text{m}$ の微粒子を測定できるものが必要となっている。このような中、微粒子カウンターのセルは種々の構造のものが考案・製品化されている。どのようなセル構造であれ、測定方式はセルに流入した試料を全部測定する「全量測定タイプ」か、セルに流入した試料の一部を測定する「部分測定タイプ」に分かれる。現在実用化されている $0.1 \mu\text{m}$ 以下の微粒子カウンターは、セル部で発生する迷光を除去するために、後者の部分測定タイプのセルを採用している例が多い。当社のPLCAシリーズも、後者の部分測定タイプを採用している。

セル部の窓材は、従来は石英( $\text{SiO}_2$ )またはサファイア( $\text{Al}_2\text{O}_3$ )が使用されているが、PLCAシリーズの薬液体用微粒子カウンターにはサファイアを使用している。

サンプリング方法には、吸引と圧送の二つの方式がある。吸引方式は、気泡を発生するという欠点が一時指摘されたが、差圧を小さくして小流量で吸引することにより気泡の発生を少なくし、サンプリングも簡便にできるために、現在では圧送方式とともに使用されている(図1)。

微粒子の小粒径化とともに、吸引・圧送方式と並んで現場用として使われているのがオンライン式である。特に粒径が $0.1 \mu\text{m}$ 以下の測定では、センサーユニットと一緒に配管系の洗浄を行うために大量の試料が必要となり、現在製造現場で使われているほとんどのパーティクルカウンターはオンライン式を採用している。PLCAシリーズでは、オンライン式のものもラインナップしており、目的に応じてセンサーユニットを選択できるようにしている。

## 3. 開発上の留意点

薬液用微粒子カウンターを開発するにあたっては、とくに次の点に留意した。

- ①薬品に対して長期の耐久性を有すること
- ②操作を行う上で、基本的に安全であること

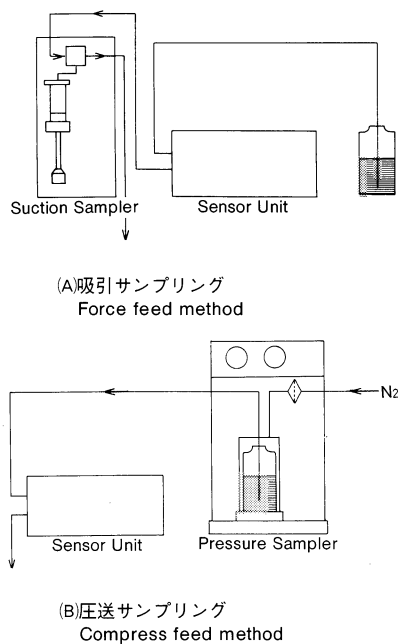


図1 サンプリング方法  
Sampling method

③メンテナンスは極力簡単であること

製品の耐久性を考慮して、セル窓にはサファイアを、シールにはカルレッツ Oリング (Kalrez type O-ring) を、他の接液部には四フッ化エチレン樹脂 (polytetrafluoroethylene : PTFE)、四フッ化エチレン-パーフロアルキルビニルエーテル共重合樹脂 (polytetrafluoroethylene-perfluoro(alkyl vinyl ethel) 通称 PFA) を採用した。また、メンテナンスがしやすいように、レーザーヘッドがカウンターの設置現場で交換でき、セルも極力分解せずにクリーニング出来るような構造とした。

PLCA-700シリーズのセンサーユニットの仕様を表2に示す。SNS-20は0.2 μm オフライン用、SNS-21は0.2 μm オンライン用、SNS-22は0.1 μm オンライン用である。図2にPLCA-700シリーズの外観を示す。

項目	SNS-20	SNS-21	SNS-22
測定範囲	0.2~10 μm	0.2~5 μm	0.1~1 μm
計測体積	5ml/min	10ml/min	0.5ml/min
サンプル流量	20ml/min	100ml/min	150ml/min
最大濃度	1×10 <sup>3</sup> /ml	1×10 <sup>3</sup> /ml	2×10 <sup>4</sup> /ml
粒径分解能	単峰性(有り)	単峰性(有り)	フラット(無し)
ビーム位置検出器	2個	2個	1個
測定原理	レーザー散乱法(半導体レーザー)		
サンプル条件	気泡を含まない粘性30×10 <sup>-3</sup> Ps・S以下の透明液体		
サンプル圧力	3 kgf/cm <sup>2</sup> 以下		
光源	半導体レーザー(約800nm)		
光検出器	PIN-ホトダイオード		

表2 PLCA-700シリーズの3種類のセンサーユニットの仕様  
Specification of PLCA-700 Series

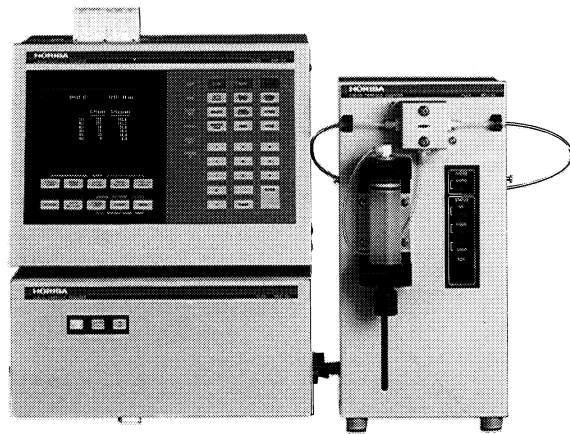


図2 薬液用パーティクルカウンター(PLCA-700)  
The PLCA-700 liquid-particle counter

## 4. SNS-20の測定原理

### 4.1 微粒子検出系の概要

PLCA シリーズの測定原理はレーザー光側方散乱法(90°)である。図3にPLCA-700 SNS-20の測定原理を示す。

半導体レーザー素子から発光したレーザービーム(波長約800nm)は、コリメートレンズにより平行ビームとなり、レーザーヘッドから出射する。次に、スリットによりガウス状に光強度が分布するレーザービームの両端を切り取り、さらに、ビーム径を細くするためのビームコンパクターを通り、シリンドリカルレンズにより測定セル中の試料噴出ノズル上端部の検出領域に集光される。レーザー光の強度は、スリットに入射する前の段階で約30mWである。

検出領域の試料中の微粒子により散乱された光は、広角の受光系で集光され、シリコン光検出器の上に結像される。光検出器に生じたパルス状の光電流は、プリアンプで電圧信号に変換され、バンドパスフィルターを通った後、しきい値電圧を設定した計数回路により粒径に応じたパルス数として計数される。

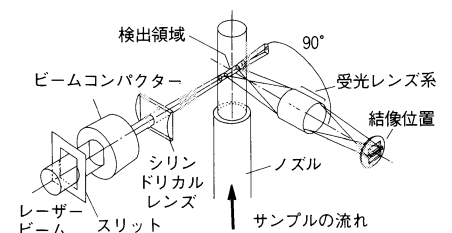


図3 SNS-20の測定原理  
The Model SNS-20 SENSOR UNIT :  
principle of measurement

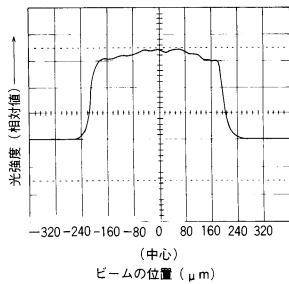


図5 SNS-20の検出領域の中心部における光ビームの強度分布  
The Model SNS-20 SENSOR UNIT : strength of the beam in the horizontal direction in the center of the detection area

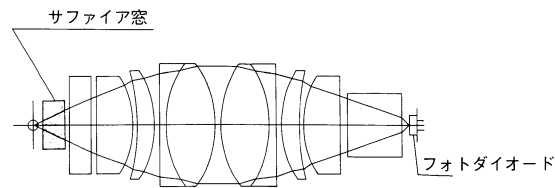


図6 受光窓と集光光学系の配置  
Arrangement of the input window and the light-gathering optical system

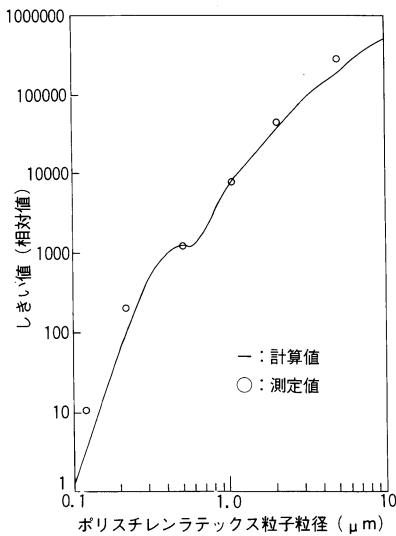


図7 純粋中のポリスチレン粒子の粒子径に対する波高特性  
Pulse-height characteristics vs. particle diameter of polystyrene particles in pure water

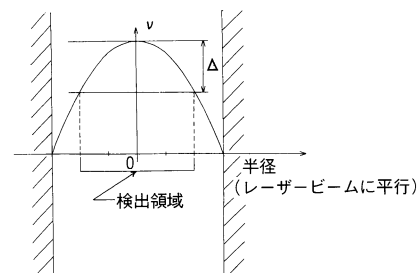


図9 ノズル中の速度分布  
Velocity distribution inside the nozzle

## 4.2 入射光学系

入射光学系の上面と正面を図4に示す。微粒子カウンターでは、高い粒径分解能が必要となるため、何らかの方法でレーザービームの弱い部分を取り除く処理(据切り)を行う。SNS-20では、リレーレンズ系を使用することにより据切りを行っている。スリットの位置は、検出領域の中心でスリット像が結像するように設定されている。リレーレンズ系が理想結像系の場合には、検出領域の中心で理想的な据切りが可能となる。検出領域中心部の光の強度分布を図5に示す。

シリンダリカルレンズによる集光は、検出領域の体積を小さくするために必要である。検出領域の体積が大きいと、微粒子の濃度が高くなったときに検出部分の中に2個以上の粒子が同時に存在するようになり、これを1個と計数してしまい実際の濃度より低い値を示す結果になるからである。

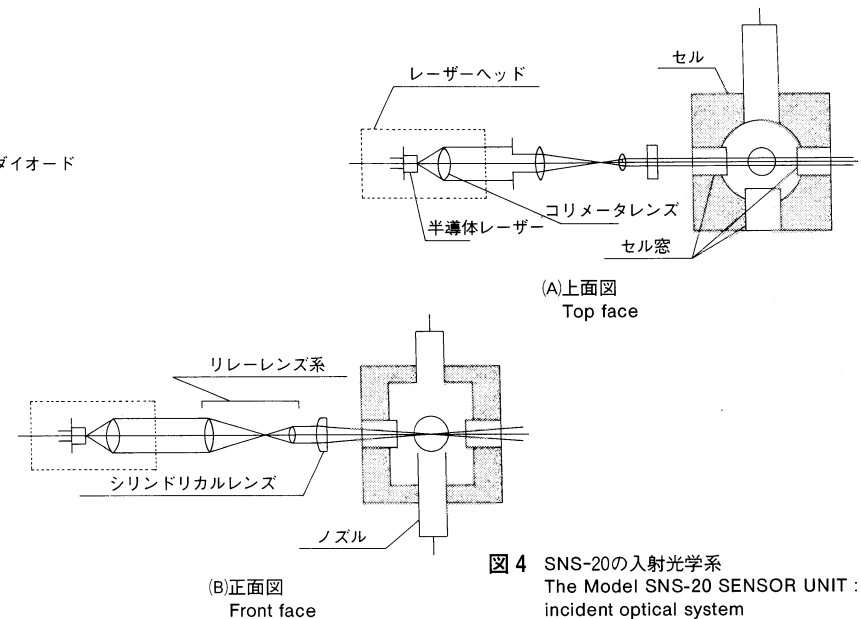


図4 SNS-20の入射光学系  
The Model SNS-20 SENSOR UNIT : incident optical system

## 4.3 受光レンズ系

受光レンズ系の概略構成を図6に示す。セル内での受光角は半角で $30^\circ$ である。Mie散乱の理論により標準粒子(ポリスチレンラテックス粒子  $n=1.59$ )に対する粒径-波高特性曲線は、図7に示す実験値と良い一致を示している。

## 4.4 フローシートと流速分布

試料の流れと検出領域の配置関係を図8に示す。センサーユニットに入った試料は、洗浄時にはノズル側と、背景散乱光のセル壁面からの反射を防止するための光トラップを兼ねた洗浄ライン側の両方に流れ、測定時には電磁弁(SV-3)が閉じられノズル側のみ流れる。

ノズル内に入った試料は、層流を形成するのに十分な長さの円柱の管路を通った後、図9に示すように $Y=1/X^2$ 型の速度分布を持った形でセル内に噴出する。ノズルの出口では、前記のような速度分布が大体保存されており、かつセル内試料と混合を起こしていないコーンの部分(ポテンシャルコア)が形成され、検出領域はこのコーンの内部に設定される。このようにすることによりセル内の多少の汚れに関係なく測定を行うことが出来る。SNS-20の検出断面は $2\text{mm} \times 0.4\text{mm}$ 、ノズル内径は $\phi 3\text{mm}$ とし、これにより計測体積 $5\text{ml/min}$ を実現した。

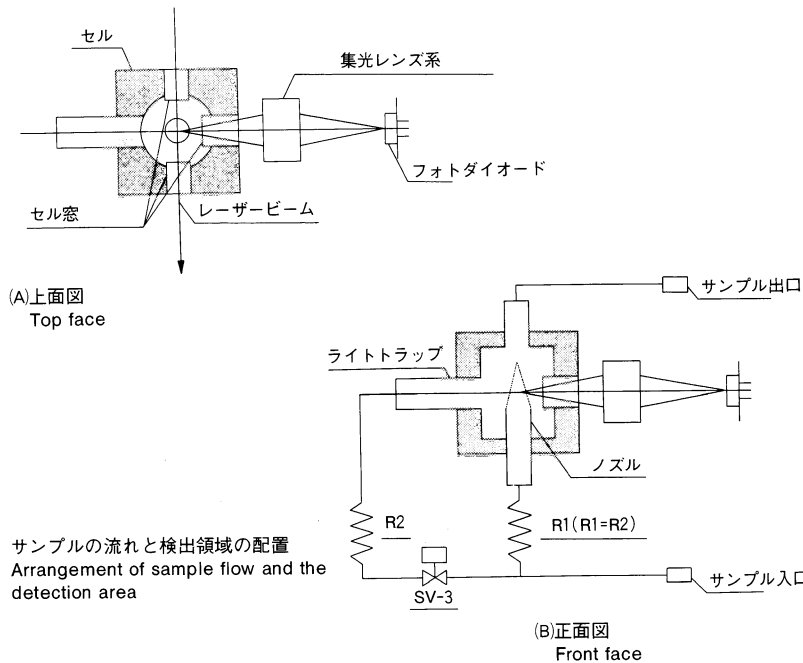


図8 サンプルの流れと検出領域の配置  
Arrangement of sample flow and the detection area

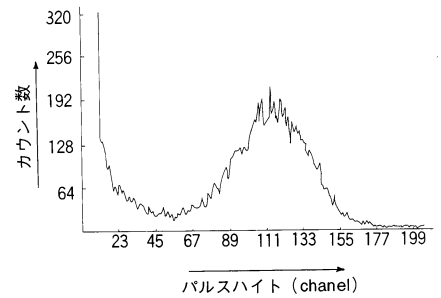


図10 標準粒子(PSL 1.04 μm)を測定したときのSNS-20の波高分布  
Puls-height response distribution for standard particles (PSL 1.04 μm)

#### 4.5 標準粒子による波高分布

単分散粒子によるパルス波高分布は、粒径分解能の目安を与える。粒径 1.04 μm の PSL を SNS-20 で実測した結果を図10に示す。

### 5. 装置の校正方法

薬液用微粒子カウンターの校正は、空气中パーティクルカウンターと同様に標準粒子として PSL を溶媒は純水を用いて行う。標準液は、通常、高濃度で保存しておき、濃度はあらかじめ走査電子顕微鏡 (SEM) などを用いて検定しておく。1 μm 以下の校正は、図11に示すように、JIS K 0554 に準拠した方法で行う。2 μm 以上の校正は、JIS B 9930 に準拠し、圧送サンプラーにより行っている。部分測定タイプのセルでは、調整にばらつきがあるため、校正は計測体積の校正から行う必要がある。

#### 5.1 計測体積の校正

既知濃度の標準液(たとえば粒径 1 μm、濃度 C 個/ml)を、上述のフローに従ってセンサーユニットに流す。センサー出力を波高分析器 (Multi Channel Analyzer : MCA) を用いて、4.5 で述べた波高分布のデータを取る。山の部分の計数の 1 分間あたりの積算値 N を求め、(1) 式によって計測体積 M を算出する。

$$M = \frac{N}{C} \text{ (ml/min)} \quad \dots\dots\dots (1)$$

#### 5.2 粒径に対応するしきい値(電圧)の校正

まず、粒径の組み合わせを決めるが、SNS-20 の場合は 0.2, 0.5, 1.0, 2.0, 5.0, 10 μm の 6 種類としている。次に、市販の標準粒子からこれらに近い粒径のものを選び高濃度の一次標準液を作る。次にこの一次標準液を希釈して、既知濃度の二次標準液(濃度 C' 個/ml)をセンサーユニットに流す。

$$N' = C' \times M \times \frac{1}{2} \quad \dots\dots\dots (2)$$

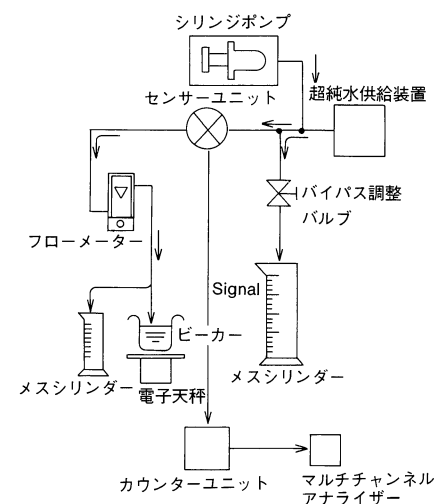


図11 校正フロー  
Calibration flow

\*ハーフカウント法

一般にパルス波高が何らかの物理量(たとえば粒子エネルギー、粒子粒径など)と対応し、物理量とパルス波高に近似的に比例関係がある場合、一定の物理量には、一定のパルス波高が対応するが、実際には、何らかの要因で波高分布が分散を持ち、軸対称の分布が得られることが多い。分布が対称であれば、全積算値の半分の所でのしきい値は、分布のピークでのしきい値と一致する。これを逆に応用して、全積算値の半分の所でのしきい値を分布のピークのしきい値とするのが、ハーフカウント法である。

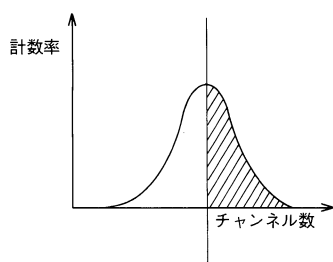


図12 ハーフカウント法  
Half count method

ただし、 $N'$ は1分間あたりのカウント数とする。

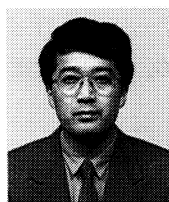
(2)式により求めた $N'$ になるようなしきい値を、カウンター・ユニットの設定電圧値を変えて求め、その電圧値を粒径に対応する校正されたしきい値とする。ここで1/2の定数が入っているのは、ハーフカウント法\*(図12)を使用しているためである。

## 6. まとめ

薬液用微粒子カウンターの概要、測定原理、装置の校正方法などについて紹介した。産業技術の高度化は、さらに進展し、半導体産業だけでなく、精密機械産業、光技術産業など、ますます発展していくであろう。これらの高度技術を支える薬液用微粒子カウンターは、より高い信頼性のものであることが必要である。本稿で紹介した技術がお役に立てば幸いである。

## 参考文献

- 1) Nobuko Hashimoto, Hitoshi Satou, Takeshi Shinoda and Kazuhiko Takino, "Manufacturing equipment for ultrapure water for 16M devices", Semiconductor Pure Water Conference (1990) P 2 ~ 25.
- 2) Reed W. Rosenberg, Mitsuishi Itano, Ichiro Kawanabe, Frederick W. Kern, Jr., Masayuki Miyashita and Tadahiro Ohmi, "Particles in ULSI grade chemicals and their adhesion to silicon surfaces" 12th International Contamination Controll Conference (1990).
- 3) JIS B 9930-1977 作動油中の微粒子測定方法.
- 4) JIS K 0554-1989 超純水中の微粒子測定方法.
- 5) J.T. Hunt, J.A. Glaze, W.W. Simmons, and P.A. Renard "Suppression of self-focusing through low-pass spatial filtering and relay imaging", Applied Optics, Vol.17, No.13, p.2053-2057 (1978).
- 6) N.Rajaratnam, "Developments in Water Science : Turbulent Jets" Elsevier (1976).



久保良宏

Yoshihiro Kubo

開発2部 主任  
1957年1月14日生  
京都大学  
理学部化学科



## 粒度分布測定における分散媒の効果

## Effects of the Dispersing Medium on the Measurement of Particle-Size Distribution

千代 光彦

Mitsuhiko Chishiro

---

**要 旨**

Fraunhofer 回折および Mie 散乱理論を利用したレーザ回折／散乱式粒度分布測定装置は、簡単な操作で、再現性よく、通常数分以内という極めて短時間で粒度分布の測定ができるので、広く用いられている。しかし、試料粉体を適切な状態に分散できなければ、目的とする粒度分布の測定ができない。本稿では、レーザ回折式粒度分布測定装置 LA-500 およびレーザ回折／散乱式粒度分布測定装置 LA-700 を用いて、日本粉体工業技術協会の標準粉体など数種の粉体の粒度分布を測定する際の、適切な分散媒の選択例を紹介する。

**Abstract**

Laser scattering particle-size distribution analyzers based on the Fraunhofer diffraction and Mie scattering principles are widely used in the measurement of particle-size distribution. The reasons for their popularity include ease of use, good repeat accuracy, and speed (usually they can produce results in just a few minutes). However, these types of analyzers cannot be used to measure particle-size distribution in samples where it is not possible to disperse the sample powder adequately. This paper introduces some selected examples of dispersants that can be effectively used in the measurement of various types of powdered samples. We have used both the Model LA-500 and LA-700 laser scattering particle-size distribution analyzers to measure the particle-size distribution of several types of powdered samples, including a number of standard powders by The Association of Powder Process Industry & Engineering, Japan.

---

**1. はじめに**

粉体の持つ重要な特性の1つである粒度分布については公定法として、JIS Z 8901『試験用ダスト』がある。ここでは、エアフィルタ、集じん装置、分級機などの装置の試験に用いる試験用ダストについて規定されており、併せてダストの品質管理のためのふるい法、沈降法、顕微鏡法および光散乱法の4つの測定法が記載されている。

近年、セラミックスやファインケミカルなどの業界において、サブミクロン領域の粒度分布測定のニーズが高まっている。これらの需要家の要望に応える

形で、Fraunhofer 回折や Mie 散乱理論を利用したレーザ回折／散乱式粒度分布測定が最近の主流となっている。当社の、レーザを用いた LA-500 および LA-700 はコンピューターソフトの充実により、簡単な操作で、再現性よく、粒度分布を高精度かつ極めて短時間で測定できると、ユーザーから非常に高い評価を受けている。

しかし、粒度分布測定に当たっては、試料粉体の粒子が凝集しないよう分散媒中に分散しなければ正確な粒度分布は得られない。本稿では、主として日本粉体工業協会の標準粉体数例についてどのような分散媒が良いかを紹介する。

## 2. 測定装置および測定方法

LA-500 および LA-700 の主な仕様を表 1 に示す。測定は、まず装置に内蔵している超音波バスに 150～200ml の分散媒を注入して、内蔵メカニカルスターラーで攪拌しながら粉体試料を少しずつ投入し、レーザ光の透過率を 65～90% に調整する。その後、40w の内蔵超音波を数分間照射することにより、粉体を十分に分散させて粒度分布を測定する。

なお、凝集の強い粉体試料では、測定の前に試料粉体を適量の分散媒に投入後、外部の強力な超音波 (600w 程度まで) を照射して十分に分散させてから、内蔵超音波バスに注入して測定する。なお、測定中は透過率が一定に保持されていることを確認する必要がある。試料粉体が分散媒に溶解する場合には、測定中に透過率が次第に大きくなる。また、測定中に粒子が凝集するなど状態が変化する場合も透過率の変化が起こるので、安定な分散状態を先ず探索することが必要である。

		LA-500	LA-700
測定方式		Fraunhofer 回折及び Mie 散乱	
測定範囲		0.1～200 $\mu\text{m}$	0.04～262 $\mu\text{m}$
測定時間		通常15秒	通常20秒
光源(光学系)		He-Ne レーザ632.8nm 2 mW	He-Ne レーザ632.8nm 2 mW タングステンランプ50W
分散法	攪拌機	内蔵メカニカル・スターラー	
	超音波バス	内蔵超音波、周波数39KHz、出力40W	
	循環ポンプ	最大吐出量600ml/min	最大吐出量1000ml/min
測定セル		フロー式 バッチ式 (オプション)	

表 1 LA-500/LA700の主な仕様  
Main specifications of the Model LA-500 and LA-700

## 3. 分散について

### 3.1 一次粒子と凝集粒子について

粉体を分散媒に分散させた場合、測定者が希望する状態に粉体が分散されないケースが多い。一般に、粉体はこれ以上細かくできない最小の粒子(一次粒子)と、これらの一次粒子が幾つか集まって凝集した粒子(二次粒子)の何れか、あるいは両者の混合したものである。粉体の求めたい粒度分布が凝集粒子径である場合には、その凝集粒子をこわさないように分散媒に分散させて測定すればよいが、一次粒子の粒度分布を測定したい場合には、凝集粒子に物理的な力を加えて、凝集状態を破壊し、かつ一旦ばらばらに分離した一次粒子が測定中に再凝集しないように保持しなければならない。

凝集粒子の破壊には通常、超音波が用いられる。凝集力の強い凝集粒子の場合には、高い出力の超音波を長時間照射する必要があるが、一方、余り高い出力の超音波を長時間用いると、再凝集を起こすことがあるので注意が必要である。実際の測定に際しては、超音波の出力および照射時間を種々変化させて、最小の粒度分布が得られる条件で測定する。

なお、粒子の凝集について疑念がある時には、面倒でも電子顕微鏡の結果と照合するのがよい。

### 3.2 分散媒について

粉体粒子を分散させる分散媒の選択においては、まず第一に粉体粒子が溶解しない分散媒を選ばなければならない。通常、水に溶けないとされている物質の中でも、僅かに水に溶けるいわゆる難溶性の物質であることがある。このような場合、細かい粒子ほど影響が大きく、ひどい場合には微粒子部分が消失して、粒度分布が粗粒子側にシフトする結果が得られることがあるから注意を要する。一般に、水に溶解する可能性のある無機塩の場合には有機溶媒が、また、有機物系の粉体の場合には水系の分散媒が適していることが多い。

また、粉体粒子が分散媒とぬれが悪くて良く分散しなかったり、あるいは一旦分散した粒子が再凝集を起こす場合があるので、安定した分散状態を保持するためには分散媒にヘキサメタリン酸ナトリウムや中性界面活性剤を少量溶解して用いるのがよい。

## 4. 測定例

粉体の代表例として、日本粉体工業技術協会の標準粉体の中から白色溶融アルミナ No.1および No.3、ならびに極微粒タルク、JIS 試験用ダストのタルク 9種および重質炭酸カルシウム17種について、また、磁力によって特に凝集の強い特殊な粉体試料として、日本鉄鋼協会の酸化鉄 JSS 009-1の計 6 試料を選んだ。

一方、代表的な分散媒としてイオン交換水、0.2%ヘキサメタリン酸ナトリウム水溶液、0.05%中性界面活性剤(主成分はアルキルエーテル硫酸エステルナトリウム、脂肪酸アルカノールアミド)水溶液、エタノールを選び、上記の粉体との適合性について検討した。

### (1) 白色溶融アルミナ

検討例を表 2 に示す。いづれの分散媒でも、測定粒度分布のメジアン径(D50)

	分散時間(分) (超音波照射時間) 内蔵超音波40W	白色溶融アルミナNo.1 (メジアン径,透過率)	白色溶融アルミナNo.3 (メジアン径,透過率)
イオン交換水	2	1.81(85.5)	10.57(74.2)
	4	1.80(85.6)	10.57(74.4)
ヘキサメタリン酸 ナトリウム水溶液(0.2%)	2	1.78(85.3)	10.53(73.6)
	4	1.79(85.2)	10.45(73.6)
中性界面活性剤 水溶液(0.05%)	2	1.84(85.9)	10.62(74.8)
	4	1.84(85.9)	10.61(75.4)
エタノール	2	1.87(82.6)	10.80(86.8)
	4	1.87(82.5)	10.73(87.1)

(メジアン径(D<sub>50</sub>);単位 μm, (透過率);単位%)

表 2 白色溶融アルミナの分散媒の検討結果  
Effect of dispersion medium on White Fused Querty

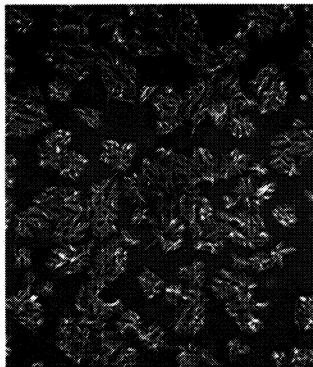
	分散時間(分) (超音波照射時間) 内蔵超音波40W	極微粒タルク (メジアン径,透過率)	ダストNo.9タルク (メジアン径,透過率)
ヘキサメタリン酸 ナトリウム水溶液(0.2%)	2	3.13(95.7)	9.26(82.6)
	4	3.64(90.3)	9.36(78.1)
中性界面活性剤 水溶液(0.05%)	2	4.32(87.3)	9.83(84.5)
	4	4.31(87.5)	9.83(84.6)
エタノール	2	4.82(76.6)	10.13(81.9)
	4	4.76(77.3)	10.04(82.1)

(メジアン径(D<sub>50</sub>);単位 μm, (透過率);単位%)

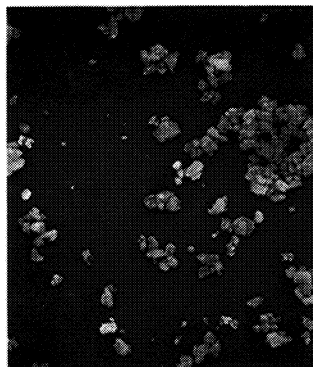
表 3 タルクの分散媒の検討結果  
Effect of dispersion medium on Talc

	分散時間(分) (超音波照射時間) 内蔵超音波40W	ダストNo.17 炭酸カルシウム (メジアン径,透過率)
イオン交換水	1	2.36(74.6)
	2	2.35(75.1)
	4	2.32(75.5)
	10	2.20(76.5)
ヘキサメタリン酸 ナトリウム 水溶液(0.2%)	1	3.52(79.9)
	2	4.03(87.2)
	4	4.18(91.2)
	10	4.21(95.4)
中性界面活性剤 水溶液(0.05%)	1	2.13(75.9)
	2	2.13(76.7)
	4	2.10(76.9)
	10	2.08(77.6)
エタノール	1	2.59(72.1)
	2	2.56(72.1)
	4	2.54(72.0)
	10	2.48(72.3)

表4 炭酸カルシウムの分散媒の検討結果  
Effect of dispersion medium on  
apparent particle diameter of Calcium  
Carbonate



(A)分散媒：0.2%ヘキサメタリン酸ナトリウム水溶液  
dispersion medium : 0.2% sodium hexametaphosphate water solution



(B)分散媒：エタノール  
dispersion medium : ethanol

図2 炭酸カルシウムの電子顕微鏡写真  
Calcium Carbonate photograph by SEM

は大差ないが、とくに0.2%ヘキサメタリン酸ナトリウム水溶液の場合には、メジアン径が最小となり、最良の分散状態になっていると判断される。

## (2) タルク

検討例を表3に示す。タルクはイオン交換水または0.2%ヘキサメタリン酸ナトリウム水溶液では、ぬれが悪く、水表面に浮いて測定できない。0.05%中性界面活性剤水溶液では、試料粉体は完全に分散し、一次粒子への分散が一番進んでいると判断される。

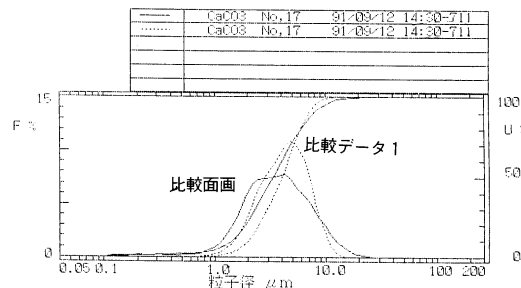
## (3) 炭酸カルシウム

検討例を表4に示す。炭酸カルシウムは純水中では、1.5mg/100g(25℃)H<sub>2</sub>Oの溶解度があり、従って水系の分散媒(イオン交換水、ヘキサメタリン酸ナトリウム水溶液、あるいは中性界面活性剤水溶液)では、測定中に粒子が溶解され、分散時間と共に粒度分布が変化する。ヘキサメタリン酸ナトリウム水溶液の例を図1に示す。これは、測定中に透過率が次第に大きくなっていくこととも関係がある。

一方、エタノールでは、測定中のレーザ光の透過率も一定で安定した粒度分布が測定されている。なお、図2に電子顕微鏡写真を示したが、水系(A)の場合、エタノール(B)に比べ微粒子が少なく、水に対する溶解現象を裏付けている。

H O R I B A L A - 7 0 0 ' 1			
PARTICLE SIZE ANALYZER '91/11/7			
【固定問題 / 体積基準】	試料名	ID #	メジアン径 比表面積 (μm) (cm <sup>2</sup> /cm <sup>3</sup> )
比較画面	CaCO <sub>3</sub> No.17	'91/09/12-14:30-711	3.517 24694
比較データ1	CaCO <sub>3</sub> No.17	'91/09/12-14:30-711	4.212 16702

比較グラフ



比較画面 { 分散媒：0.2%ヘキサメタリン酸ナトリウム水溶液  
分散条件：内蔵超音波40W 1分照射

比較データ1 { 分散媒：0.2%ヘキサメタリン酸ナトリウム水溶液  
分散条件：内蔵超音波40W 10分照射

図1 炭酸カルシウムの粒度分布測定例(比較データ：0.2%ヘキサメタリン酸ナトリウム水溶液、エタノール)  
Particle-size distribution, Calcium Carbonate (Compared with change ultrasonic agitation time)

## (4) 酸化鉄

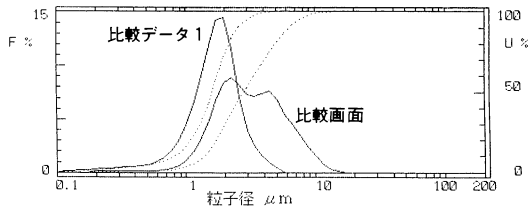
酸化鉄は、磁性を帯びているものが多いため、通常の分散方法では一次粒子への分散ができず、従来、一次粒子の粒度分布測定が不可能であった。加熱処理による消磁法も試みたが、成功しなかった。

しかし、その後、磁性を帯びた粉末を極めて高粘度な分散媒、たとえば高粘度なシリコンオイル中に加えて、乳鉢の中で練り上げると、凝集が次第にほぐ

【固定間隔 / 体積基準】

	試料名	I D #	メジアン径 ( $\mu\text{m}$ )	比表面積 ( $\text{cm}^2/\text{cm}^3$ )
比較画面	Fe203	'91/09/19-12:07-282	2.82	25923
比較データ1	Fe203	'91/09/29-14:27-502	1.61	49809

比較グラフ



— 比較画面 { 分散媒: 0.2%ヘキサメタリン酸ナトリウム水溶液  
分散条件: 超音波ホモジナイザー600W 30分照射

---- 比較データ1 { 分散媒: シリコンオイル  
分散条件: 手動攪拌 30分

図3 酸化鉄の粒度分布測定例(比較データ:  
0.2%ヘキサメタリン酸ナトリウム水溶液,  
シリコンオイル)  
Particle-size distribution Iron(III) Oxide  
(Compared with 0.2% sodium  
hexametaphosphate water solution and  
silicone oil)

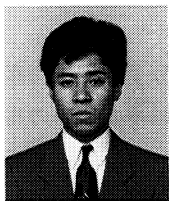
れ一次粒子に分散される。また、シリコンオイルの高粘度のために再凝集が防止され、一次粒子径の分布が測定できることがわかった。検討例を表5に示す。シリコンオイルを用いたものが最良の分散状態と判断される。

図3に水系分散媒とシリコンオイルの粒度分布の比較データを示す。

## 5. まとめ

粉体の粒度分布の測定に当たって、粉体の持っている粒子の凝集状態、濡れ性、溶解度などの特性を考慮しながら、それに相応した分散媒の選択の仕方について述べた。

本稿の例が今後、いろいろな粉体の粒度分布を測定される方々の参考になれば幸いである。



千代光彦

Mitsuhiro Chishiro  
分析センター  
1964年1月17日生  
近畿大学  
理工学部金属工学科

	分散時間(分) (超音波照射時間) 超音波600W	JSS 009-1 酸化鉄 (メジアン径, 透過率)
ヘキサメタリン酸 ナトリウム 水溶液(0.2%)	10	3.80
	20	3.14
	30	2.82
グリセリン水溶液 (50%)	10	4.50
	20	3.85
	30	2.91
	分散時間(分) (手動攪拌)	
シリコンオイル	10	2.80
	20	2.36
	30	1.61

(メジアン径( $D_{50}$ ); 単位  $\mu\text{m}$ )

表5 酸化鉄の分散媒の検討結果  
Effect of dispersion medium on  
apparent particle diameter of Iron (III)  
Oxide

# 時間分解蛍光分光光度計を用いた 蛍光偏光解消による分子の大きさの測定

## Determination of Molecular Size by Fluorescence Depolarization Using A Time-Resolved Fluorescence Spectrometer

南 孝明

Takaaki Minami

### 要 旨

発光現象を測定する際、発光スペクトルだけではなくその時間変化もとらえることにより、スペクトルのみからは得られない情報を得ることができる。当社の発売する時間分解フォトルミネッセンス・蛍光分光光度計 NAES-700は、発光現象の時間変化を測定する装置である。本稿では、この NAES を用いた測定の応用例として時間分解蛍光偏光解消法を用い溶液中での生体内蛋白質分子の大きさーアポミオグロビン分子の実効体積ーの測定について紹介する。

### Abstract

During observation of emission phenomena, by making a time-resolved measurement in addition to looking at the emission spectrum, we can obtain information not otherwise accessible if we observe only the spectrum. The Model NAES-700 time-resolved photoluminescence and fluorescence spectrometer, distributed by Horiba, is an instrument for measuring the time-resolved emission phenomena. This paper discusses an example of measurement using the NAES. In this example we use the time-resolved fluorescence depolarization method to determine the size of protein molecules in an aqueous solution, i.e., the determination of the effective volume of apomyoglobin molecules.

### 1. はじめに

分子を構成している電子が一番エネルギーの低い状態の時、分子は安定に存在している。分子が光などのエネルギーを吸収すると、電子はエネルギーの高い状態になり、不安定になる。すると分子は安定になるために、しだいに電子のエネルギーを放出してもとの状態に戻ろうとする。このとき、分子はエネルギーを光や熱として外部に放出する。

一般にこの光は、半導体の場合にはフォトルミネッセンスと呼ばれ、有機物の場合には蛍光と呼ばれる。当社の販売している NAES-700は、半導体のフォトルミネッセンスから有機、無機物質の蛍光過渡現象を測定できる装置として時間分解フォトルミネッセンス・蛍光分光光度計と命名された<sup>1)</sup>。

本稿では、有機物質を用いた場合に限定し、以下この発光を蛍光と呼ぶ。蛍光を出す過程で、エネルギーを失う速さの目安となるものが蛍光寿命で、蛍光



減衰の速度の逆数で表される。

蛍光寿命は、分子の電子緩和の程度を表し、分子の電子構造、エネルギーのやりとりの速度、分子の回りの局所的な流動性、などの物性定数と関係づけられる。その実例を以下に示していく。

蛍光偏光解消には、定常法によるものもあるが、本稿では時間変化(時間分解蛍光偏光解消法)のみを対象とする。

## 2. 蛍光寿命<sup>2,3)</sup>

蛍光の減衰は、単純な場合、以下のような指数関数で表される。

$$I(t) = I_0 \cdot \exp(-t/\tau) \quad \dots\dots\dots (1)$$

$I(t)$ は蛍光強度の時間変化、 $I_0$ は発光の開始時点での蛍光強度、 $t$ は経過時間、 $\tau$ は蛍光寿命を表している。この蛍光強度の時間変化は、横軸に時間、縦軸に蛍光強度の対数をとると図1に示したような直線関係のグラフになる。この直線の傾きが $(-1/\tau)$ である。

試料にパルス光をあて、蛍光寿命を測定する場合を考える。図2に示すように、試料の蛍光減衰の程度が速いつまり蛍光寿命が短いと、パルス光の持続時間が問題となる。持続時間が長いパルスAで、試料の真の蛍光減衰曲線Bを測定するとAとBが畳み込まれ(コンボリュート)て、観測可能な蛍光減衰曲線Cを測定することになる。測定できるのはAとCで、知りたいのはBである。AとCから、Bを求める演算をデコンボリューションという。

当社の販売しているNAESシリーズでは、蛍光減衰曲線が3つの指数関数の和で表されるような減衰曲線までデコンボリューション演算が可能である。

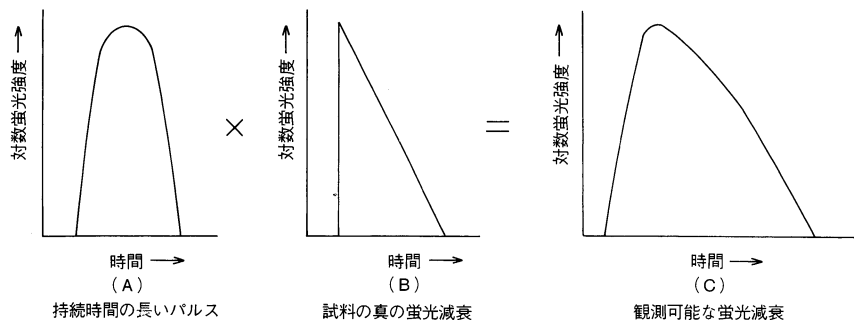


図2 蛍光減衰曲線とコンボリューション  
Fluorescence decay curves and convolution operation

## 3. 蛍光偏光解消法の理論<sup>3,4)</sup>

偏光した光で分子を励起すると、偏光に応じた遷移モーメントを持つ分子しか励起できない(図3)。また、励起された分子からの発光も偏光する。この偏光の変化を測定することで、分子の挙動を知ることができる。この発光の偏光の度合いは注目している分子によって異なる現象に基づいて減少するので、一般に偏光解消と呼ばれている。

偏光解消を引き起こす原因となるものに分子の回転拡散がある。拡散は溶媒の粘度と、拡散する分子の大きさや形に依存している。そこで、偏光解消を測定することで、分子の大きさを見積ることができる。その手順を以下に示す。まず異方性  $r(t)$  を求め、次に回転相関時間  $\phi$ 、そして実効体積  $V$  を求める。

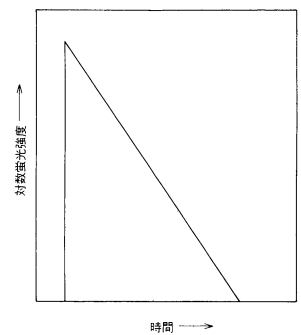


図1 蛍光減衰曲線の時間変化(単一指数関数の場合)  
Time dependence of a fluorescence decay curve

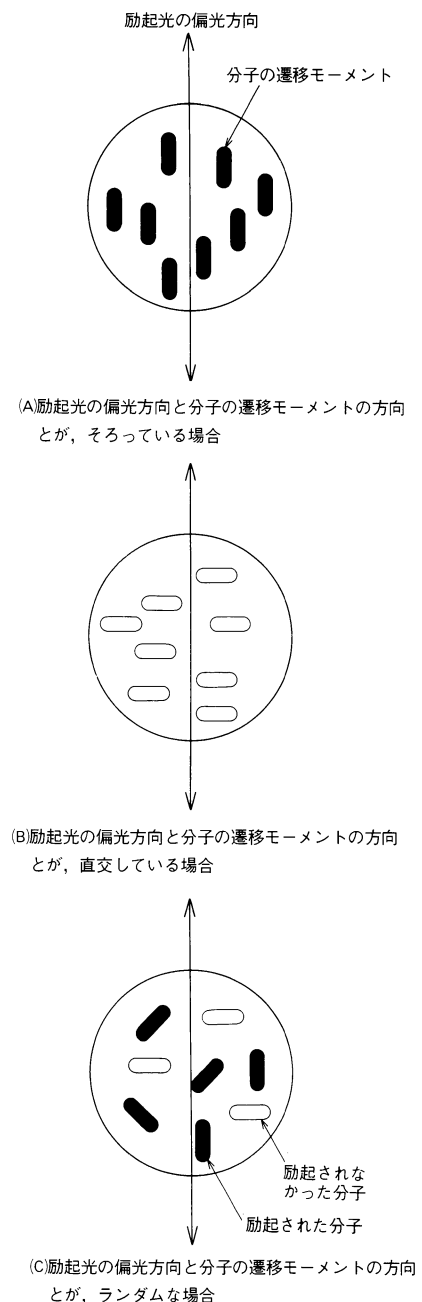
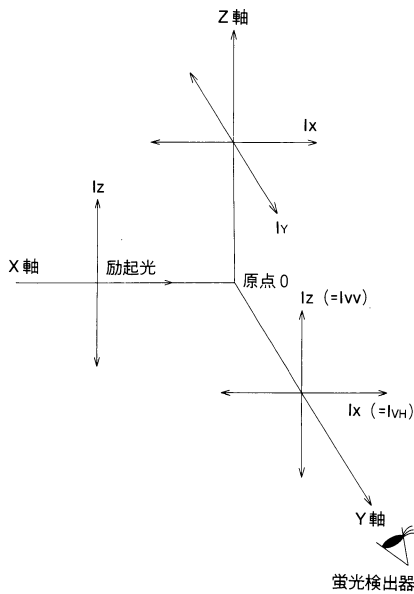


図3 偏光による励起と分子の遷移モーメント模式図  
Polarized excitation and transition moment



lx, ly, lz は、それぞれ XYZ 軸に沿った座標を表す。  
X 軸から、鉛直偏光の励起光を用い、観測側での鉛直偏光 (I<sub>vv</sub>)、水平偏光 (I<sub>vh</sub>) を表す。

図 4 蛍光偏光測定—原理図  
Fluorescence depolarization measurement—principle—

### 3.1 異方性

異方性  $r(t)$  は、全強度と偏光成分の比で定義される。

$$r(t) = \text{偏光成分} / \text{全強度} \quad \dots\dots\dots (2)$$

図 4 のように記号を決める。原点にある試料を X 軸方向に沿って励起し、Y 軸方向に沿って観測することとする。

鉛直偏光の光 (X 軸方向に沿った Z 軸方向の光  $I_z$ ) で励起するときの観測側の鉛直偏光 (Y 軸に沿った Z 軸方向の光  $I_z$ )、観測側の水平偏光 (Y 軸に沿った X 軸方向の光  $I_x$ ) の蛍光強度をそれぞれ  $I_{vv}(t)$ 、 $I_{vh}(t)$  とする。

式 (2) 右辺の分子は、

$$\begin{aligned} \text{偏光成分} &= \text{Z 軸方向の光} - \text{X 軸方向の光} \\ &= I_{vv}(t) - I_{vh}(t) \end{aligned} \quad \dots\dots\dots (3)$$

式 (2) 右辺の分母は、

$$\text{全強度} = \text{Z 軸方向の光} + \text{X 軸方向の光} + \text{Y 軸方向の光} \quad \dots\dots\dots (4)$$

このとき、全方向に同じように発光していると仮定すると、X 軸方向の光と Y 軸方向の光の強度は同じなので、Y 軸からの観測だけで全強度が求まる。

$$\text{全強度} = \text{Z 軸方向の光} + 2 \cdot \text{X 軸方向の光} \quad \dots\dots\dots (5)$$

となり、Z 軸方向の光は  $I_{vv}(t)$ 、X 軸方向の光は  $I_{vh}(t)$  なので

$$\text{全強度} = I_{vv}(t) + 2 \cdot I_{vh}(t) \quad \dots\dots\dots (6)$$

したがって異方性  $r(t)$  は式 (2) に上記の関係を代入し次式で定義される。

$$r(t) = \frac{I_{vv}(t) - I_{vh}(t) \cdot g}{I_{vv}(t) + 2I_{vh}(t) \cdot g} \quad \dots\dots\dots (7)$$

$$g = \int_0^t I_{hv}(t) dt / \int_0^t I_{hh}(t) dt \quad \dots\dots\dots (8)$$

$I_{hv}(t)$ 、 $I_{hh}(t)$  は、それぞれ水平偏光で励起するときの鉛直偏光、水平偏光の蛍光強度である。 $g$  は、鉛直偏光と水平偏光に対する測定系の感度の差に基づく補正因子である。

### 3.2 回転相関時間

回転ブラウン運動において堅い球が運動するという剛体球近似をとると異方性比  $r(t)$  は次式のように回転相関時間  $\phi$  を時定数とする指数関数で減衰する。 $t$  は時間、 $r_0$  は発光の開始時点での異方性を表す。

$$r(t) = r_0 \cdot \exp(-t/\phi) \quad \dots\dots\dots (9)$$

実際の実験で得られる  $I_{vv}(t)$ 、 $I_{vh}(t)$  は、光源の波形  $P(t)$  の時間的な広がりの影響を受けるため、得られる  $r(t)$  や  $\phi$  も光源の波形の影響を含んでいる。

光源の影響を取り除くためには式 (7) の分子と分母のコンボリュートされた波形を求めなければならない、それぞれ  $I_D(t)$ 、 $I_T(t)$  とすると、下の式で表される。

$$I_{vv}(t) - I_{vh}(t) \cdot g = \int_0^t P(t') I_D(t-t') dt' \quad \dots\dots\dots (10)$$

$$I_{vv}(t) + 2I_{vh}(t) \cdot g = \int_0^t P(t') I_T(t-t') dt' \quad \dots\dots\dots (11)$$

$$I_D(t) = A_D \cdot \exp(-t/\tau_D) \quad \dots\dots\dots (12)$$

$$I_T(t) = A_T \cdot \exp(-t/\tau_T) \quad \dots\dots\dots (13)$$

従って、 $I_{hv}(t)$ 、 $I_{hh}(t)$  を測定し、式 (8) で  $g$  を求め、 $I_{vv}(t)$ 、 $I_{vh}(t)$  の測定をおこない、式 (10)、(11) の左辺の演算を行い、その合成された減衰曲線をデコンボリューションすることで、 $A_D$ 、 $\tau_D$ 、 $A_T$ 、 $\tau_T$  を求めることができる。

光源の波形の時間的な広がり（時間的広がり）の影響を取り除いた異方性と回転相関関数をそれぞれ  $r(t)$ ,  $\phi$  とする。式(7)に式(10), (11)を代入すると

$$r(t) = I_D(t)/I_T(t) \quad \dots\dots\dots(14)$$

となる。式(14)に式(12), (13)を代入し,  $t=0$  とすると  $r_0$  が求まる。

$$r_0 = A_D/A_T \quad \dots\dots\dots(15)$$

式(9)に式(12), (13), (15)を代入すると,  $\phi$  が求まる。

$$\phi = (\tau_T \cdot \tau_D) / (\tau_T - \tau_D) \quad \dots\dots\dots(16)$$

### 3.3 実効体積

回転相関時間  $\phi$ (s) は, 絶対温度  $T$ (K), 溶媒の粘性係数  $\eta$  (Pa·s), 分子の実効体積  $V$ (m<sup>3</sup>) およびボルツマン定数  $k_B$ (1.38×10<sup>-23</sup>J·K<sup>-1</sup>) を使うと次のように表せる。

$$\phi = V \eta / k_B T \quad \dots\dots\dots(17)$$

式(16)によって回転相関時間  $\phi$  を求めることができるので, 溶媒の粘性係数  $\eta$  がわかれば, 分子の実効体積  $V$  が求まり, 逆に分子の実効体積  $V$  がわかっている場合は, 溶媒の粘性係数  $\eta$  が求まる。

## 4. 偏光解消法の実験例 “アポミオグロビンの実効体積<sup>5)</sup>”

ANS (1-aminonaphthalene-8-sulfonate, 図5) という蛍光色素を吸着させたアポミオグロビン (生体内で酸素を貯蔵をする役割を持つ蛋白質, 球状) をリン酸緩衝液 (pH7.2, 10<sup>-3</sup>M) に溶かし, 偏光解消を測定したデータを図6に示す。(測定条件: 液温20℃, 励起波長350nm, 観測波長>420nm)

NAES により  $\tau_T$  と  $\tau_D$  を求めるとそれぞれ14.5ns, 5.67nsとなる。式(16)に代入すると  $\phi$  は9.3nsとなる。(nsは10億分の1秒)

粘性係数  $\eta$  を  $1.06 \times 10^{-3}$  Pa·s とし, 式(17)に代入すると, 実効体積  $V$  は  $3.55 \times 10^{-26}$  m<sup>3</sup> と求まる。球状なので  $d$  を直径とすると,  $V = 4/3 \cdot \pi (d/2)^3$  より  $d = 4.08$  nm となる。このようにアポミオグロビン粒子は直径4.08nm と求められた。

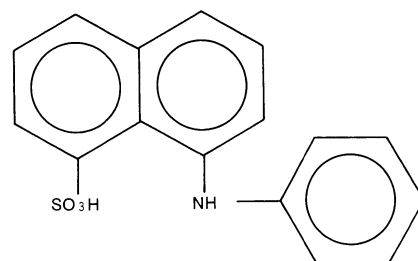


図5 ANSの化学構造  
1-aminonaphthalene-8-sulfonate

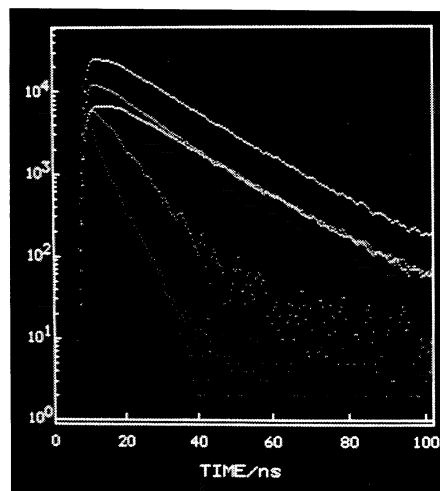


図6 アポミオグロビン-ANSの蛍光偏光測定による減衰曲線  
Apomyoglobin-ANS time-resolved fluorescence depolarization measurement

## 5. まとめ

以上述べたように、蛍光偏光を用いることで分子の大きさを見積もることができる。蛍光法には、いろいろな応用があり、さらに時間分解法を用いることで、その応用範囲を広げることができる。本稿で述べた方法も定常法を用いて行くと、変数が増え、多数の実験が必要となる。

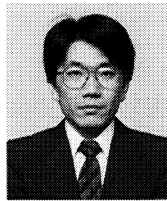
時間分解蛍光法の応用を広げる上で、NAESシリーズが活用されることを期待している。

〈謝辞〉

北海道大学応用電気研究所助教授荒磯恒久先生に試料の提供と実験を行っていただきました。ここに紙面をかり御礼申し上げます。

## 参考文献

- 1) 横山一成 “時間分解フォトルミネッセンス法による半導体デバイスの評価” READOUT.NO.2, (1991)p.27-36.
- 2) D.V.O'Connor, D.Phillips “ナノ・ピコ秒の蛍光測定と解析法：時間相関単一光子計数法” 学会出版センター。(1988), p.40-48, p.153-205.
- 3) 木下一彦, 御橋広真編 “蛍光測定：生物科学への応用” 学会出版センター。(1983) p.2-43, p.99-160.
- 4) J.R.Lackowicz “Principles of Fluorescence Spectroscopy” Plenum, (1983) p.112-181.
- 5) 堀場カタログ “NAES-700” (1990).



南 孝明

Takaaki Minami

開発1部  
1958年4月7日生  
京都工芸繊維大学大学院  
繊維学研究科繊維化学専攻

# エネルギー分散形 X 線マイクロアナライザ を使った粒子の分析

## Particle Analysis Using the Energy-Dispersive X-ray Microanalyzer

坂東 篤・大堀 謙一

Atsushi Bando, Kenichi Ohbori

### 要 旨

電子顕微鏡の普及にともないエネルギー分散形 X 線マイクロアナライザは、金属、セラミックス、半導体などの材料分野だけではなく、品質管理の分野などにおいても広く利用されてきている。最新のエネルギー分散形 X 線マイクロアナライザ EMAX-2770 Type-P は、従来の定性、定量、X 線マッピングに加えて、X 線画像処理、粒子解析の機能をそなえている。本稿では、粒子の分析に EMAX を用いた時の特長について述べ、元素分析および粒子解析の分析例を紹介する。

### Abstract

With the increasing widespread use of electron microscopes, energy-dispersive x-ray microanalyzers have also become widely used, both in materials analysis (e.g., metals, ceramics, and semiconductors) and in quality control. Horiba's latest energy-dispersive x-ray microanalyzer, the Model EMAX-2770 has added new features to the conventional microanalyzer's ability to do qualitative analysis, quantitative analysis, and x-ray mapping ; these new of the EMAX-2770 Type-P features include x-ray image processing and particle analysis. This paper discusses the use of the EMAX-2770 Type-P in particle analysis, giving examples of both elementary analysis and particle analysis.

### 1. はじめに

エネルギー分散形 X 線マイクロアナライザ EMAX-2770 Type-P は、電子顕微鏡に半導体 X 線検出器を取り付け、微小領域(数  $\mu\text{m}$ )の元素分析を行うシステムである。この装置の特長は、電子顕微鏡で形状を観察しながら、元素分析を容易に行うことができる点である。さらに、X 線像や電子顕微鏡像 (SEM 像) の画像処理により、粒子解析(粒子径、面積、周囲長など、特徴値の計測)が可能である。

また、X 線マイクロアナライザは、原料としての粒子の分析だけではなく、成形後の粒子の状態(分散状態、結合状態など)や、異物として混入した粒子の分析(フィルターに付着した粒子など)にも有効である。

図 1 に EMAX-2770 Type-P と走査型電子顕微鏡 S-2400(日立製作所製)を組

み合わせたシステムの外観を示す。



図1 エネルギー分散形 X線マイクロアナライザ EMAX-2770 Type-P (走査電子顕微鏡S-2400(日立製作所製との組合せ)  
The Model EMAX-2770 Type-P, energy-dispersive x-ray microanalyzer

## 2. 粒子の元素分析

図2は、CuとSiO<sub>2</sub>の粒子を混合した試料のSEM像である。試料は、粒子を純水中で分散させ、試料台上に載せ乾燥し、導電性を持たせるためにカーボン蒸着して作製した。

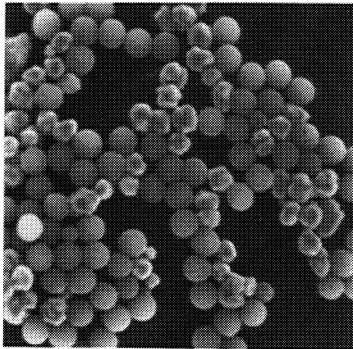


図2 SiO<sub>2</sub>, Cu粒子のSEM像  
SEM image of SiO<sub>2</sub> and Cu particles

### 2.1 定性分析

SEM像を観察すると、粒径がほぼ同じで形状の異なることがわかる。そこで、それぞれの粒子のX線スペクトルを測定した。

図3に球形の粒子(A点)のスペクトル、図4にもう一方の粒子(B点)のスペクトルを示す。図3のスペクトルにはO(酸素)およびSi(シリコン)の特性X線ピークがみとめられ、球形の粒子はSiO<sub>2</sub>の粒子であることがわかる。図4のスペクトルからは、もう一方の粒子がCu(銅)の粒子であることがわかる。

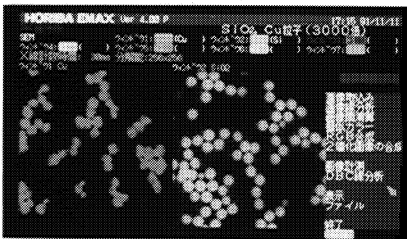


図5 SiO<sub>2</sub>, Cu粒子のX線像  
X-ray image of SiO<sub>2</sub> and Cu particles

### 2.2 X線マッピング

図5は、SEM像(図2)と同じ視野のSiとCuのX線像である。X線像は、X線の強度を輝度とするデジタル画像で、輝度の高い所ほど元素濃度が高いことを示している。SiのX線像はSiO<sub>2</sub>の粒子に、CuのX線像はCuの粒子に対応している。

### 2.3 X線像の合成

図6は、SiのX線像をR(赤)、CuのX線像をB(青)、SEM像をG(緑)に対応させ一枚に合成した画像である。画像を一枚に合成することにより各位置での組成の対応がさらにわかりやすくなる。

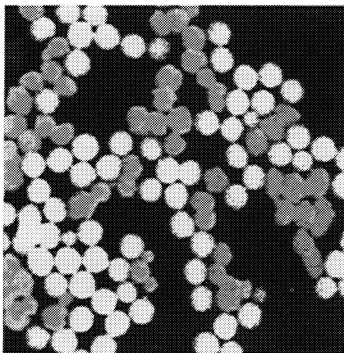


図6 SiO<sub>2</sub>, Cu粒子X線像の合成像  
False color image of SiO<sub>2</sub> and Cu particles

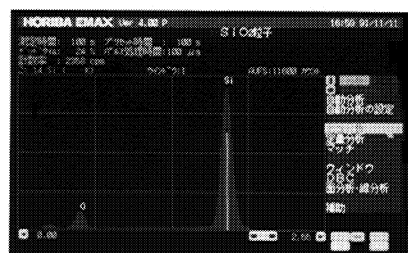


図3 SiO<sub>2</sub>粒子のスペクトル  
SiO<sub>2</sub> particle spectrum



図4 Cu粒子のスペクトル  
Cu particle spectrum



### 3. 画像を用いた粒子解析

以上のように、EMAXの元素分析機能を使うことにより、粒子を組成によって識別することができる。さらに、粒子解析機能を使いX線像やSEM像を画像処理し、画像の中から粒子の部分抽出することにより粒子のさまざまな特徴値を計測できる。EMAXで計測できる主な項目を表1に示す。

#### 3.1 X線像を用いた粒子解析

前項「粒子の元素分析」で元素分析を行ったSiO<sub>2</sub>粒子、Cu粒子のX線像を用いて各々の粒子の粒子径、円形度を計測した。計測結果を表2に示す。図7および図8は、粒子が正しく分離されていることを確認するためにSEM像の上に抽出した粒子の輪郭を重ね合わせた画像である。

このようにX線像を用いると異なる粒子が混在している場合でも、あらかじめ粒子を分離することなく各々の粒子の特徴値を計測することができる。

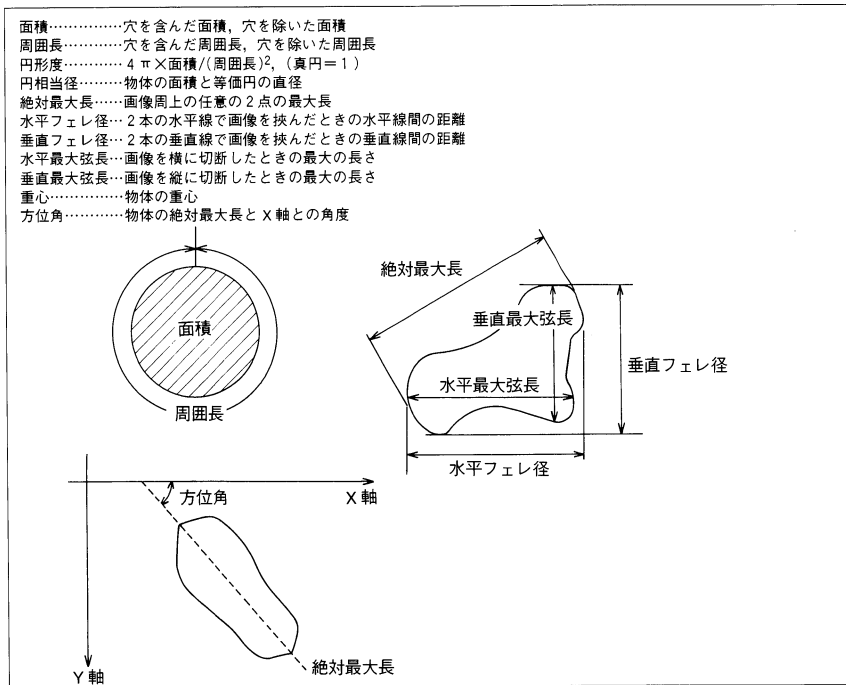


表1 EMAXで計測できる主な特徴値  
 Characteristic values of the main parameters measurable with the EMAX

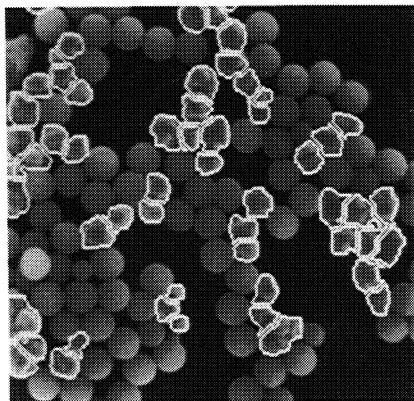


図7 SEM像とCu粒子の輪郭重ね合せ  
 SEM image superimposed on Cu particle contour

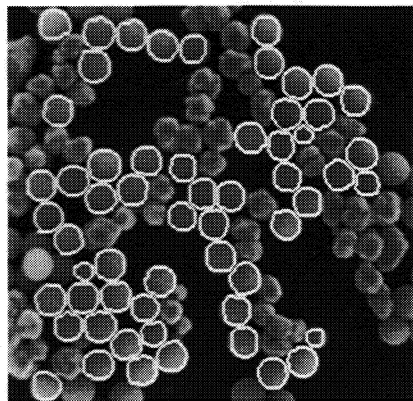


図8 SEM像とSiO<sub>2</sub>粒子の輪郭重ね合せ  
 SEM image superimposed on SiO<sub>2</sub> particle contour

	個数 (個)	円相当径 ( $\mu\text{m}$ )	円形度
SiO <sub>2</sub> 粒子	58	2.50	0.87
Cu 粒子	55	2.29	0.60

表2 SiO<sub>2</sub>、Cu粒子の粒子径、円形度測定結果  
 Results of measuring SiO<sub>2</sub> and Cu particle

### 3.2 SEM像を用いた粒子解析

図9は、粉体物性測定の基本粒子として使用される白色溶融アルミナ(No.3 : 粒子径10 $\mu\text{m}$ , 粒径範囲2~30 $\mu\text{m}$ )のSEM像である。図10に当社のレーザ回折/散乱式粒度分布測定装置 LA-700で測定した粒度分布を示す。LA-700は、球形粒子でのレーザ回折/散乱モデルにより粒度分布を求めているが、SEM像を見ると不定形の粒子であることがわかる。そこで、白色溶融アルミナの特徴値(円相当径, 面積, 水平フェレ径, 垂直フェレ径, 絶対最大長)を計測した。表3に計測結果, 図11に円相当径のヒストグラムを示す。

#### HORIBA LA-700 PARTICLE SIZE ANALYZER '91/09/26

試料名 : 3  
 ID# : '91/09/26-15:49-868  
 測定モード : 分布形態 屈折率設定 1.3 透過率 78.2%

#### 粒度分布グラフ

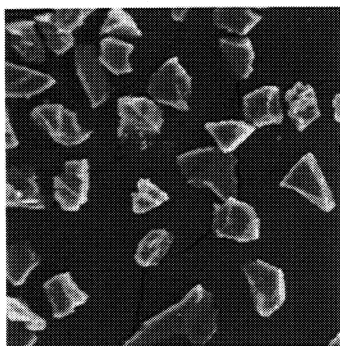
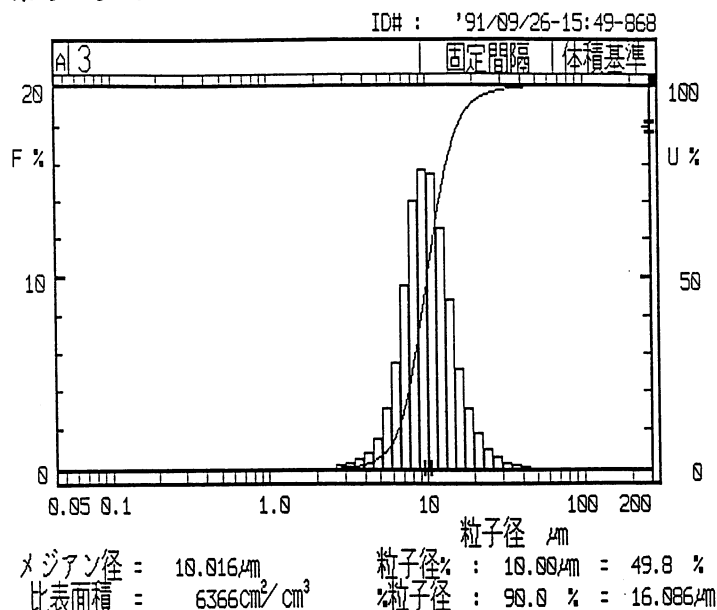


図9 白色溶融アルミナのSEM像  
SEM image of molten white aluminum oxide

図10 レーザ回折/散乱式粒度分布測定装置(LA-700)による白色溶融アルミナの粒度分布測定結果  
Particle size distribution of molten white aluminum oxide measurement by LA-700

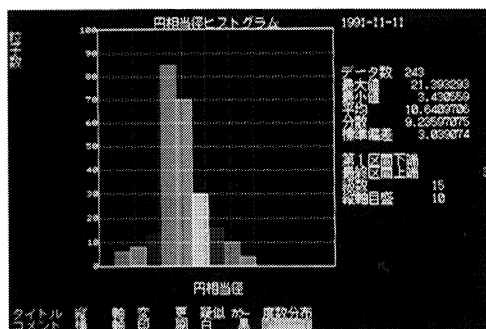


図11 円相当径のヒストグラム  
Histogram of heywood diameter

	水平フェレ径 ( $\mu\text{m}$ )	垂直フェレ径 ( $\mu\text{m}$ )	面積 ( $\mu\text{m}^2$ )	円相当径 ( $\mu\text{m}$ )	絶対最大長 ( $\mu\text{m}$ )
平均値	11.28	11.64	96.15	10.64	14.78
最小値	3.04	3.04	9.24	3.43	6.92
最大値	28.38	35.47	359.45	21.39	37.23
標準偏差	4.32	4.71	56.22	3.04	5.06

表3 白色溶融アルミナの特徴値計測結果  
Results of measuring molten white aluminum oxide

### 4. まとめ

EMAXは、直接目で粒子の形状を観察しながら微小部の定性分析やX線マッピングなどの元素分析が行え、さまざまな特徴値を計測できるという点において粒子の分析には欠かせない装置の一つであり、ますます普及すると考える。

また、最近普及してきている低真空 SEM と組み合わせることにより、生の試料(生物、食品など)の分析に応用できる期待がある。

なお、エネルギー分散形 X 線マイクロアナライザーの原理については、すでに本紙において紹介しているので興味のある方は参照していただければ幸いです。

#### 参考文献

- 1) 高木幹雄, 下田陽久監修 “画像解析ハンドブック” 東京大学出版(1991).
- 2) (社)日本粉体工業技術協会, 粉体工学会編 “粉体物性図説” 日経技術図書(1985) p.602.
- 3) 坂東 篤, “エネルギー分散形 X 線マイクロアナライザ(EMAX-2700シリーズ)” Readout, 1, p.66-74(1990).



坂東 篤  
Atushi Bando

開発 3 部  
1961年 2 月13日生  
京都工芸繊維大学  
工学学部無機材料工学科



大堀謙一  
Kenichi Ohbori

開発 3 部 係長  
1955年 6 月 7 日生  
京都大学大学院  
工学研究科原子核工学専攻

# 「計測科学」のすすめ

Recommendation of Measurement Science

—orientates The Development of Human Society—

人間が本質的に自ずともっている『見る、聞く、知る、伝える』という行為は『計測の基本行為』であり、人類の歴史と共に培われ、人間の生活の向上や社会の発展に寄与してきた。『計測科学(Measurement Science)』という学問領域を考える思想はここにあり、社会を築き上げて行くのは社会を構成する人々すべてであることを認識することによって、この科学を考えていく意義が深まっていく。 これからの科学・技術に担われた社会のさらなる発展は、すべての人々の科学・技術の知識やセンスの堅持にかかっている。『計測の行為』は人間と技術の関係、社会の発展と人々の科学的意識との関係を語るのに最も適しており、「情報科学(Information Science)」をも包含するセンシングからアナリシス、場合によっては相手(計測対象)の制御までを、しかも広い領域にわたって扱っているのである。

『計測科学の思想』は、ヨーロッパでは比較的よく定着している。これは学問の発達が古代ギリシャ時代に端を発し、現在まで延々と培われていることを思えば当然のことであるが、日本が科学・技術大国として大成するには、もっと学問の思想に力を入れるべきだと考える。

## <計測科学の意義>

人間がこの世に誕生したのは第3紀新世までさかのぼるといわれる。人間の生活するところには人間集落ができ社会が構成され、「人間の知恵」によってその社会は発展を遂げて行く。現代の社会は「情報に担われた社会(Information orientated society)」とも「技術に担われた社会(Technical orientated society)」ともいわれるが、実はいつの時代もそうなのであって、古代エジプト時代やギリシャ時代には、計算盤、日時計、水時計、天秤が発明され、それらを駆使した情報や技術に担われた社会が進展し、紀元前8,000年頃からの農耕文化の時代には種蒔きや収穫に関する情報や技術に支えられた農耕文化が芽生えた社会が発展したのである。また、産業革命以後1960年代までには動力と機械化を中心とした工業社会が進展し、そして、今はコンピュータのソフトウェアとハードウェアの調和を大切に個人のリズムに合わせた生活ができる多様化と分散化の社会が進行中なのである。図1はこのよう

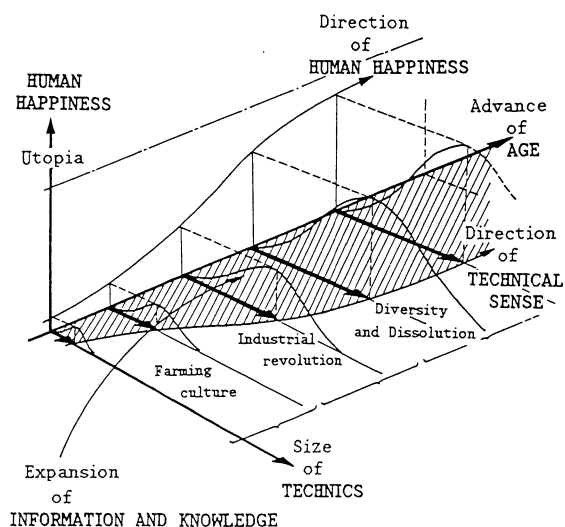


図1 技術サイズの広がりや人間の幸福さ  
Expansion of techniques and Humann happiness



立命館大学教授  
**苺屋 公明**  
 Komyo Kariya, Dr. Eng.  
 工学博士 (京都大学)  
 計測自動制御学会 IMEKO 委員

〈略歴〉  
 1957年 : 立命館大学理工学部 卒業  
 1957~64年 : 理学電機(株) 研究部, 技術部主任  
 1964年 : 立命館大学理工学部 講師  
 1967年 : 同学部助教授  
 1970年 : 同学部教授 現在に至る。

〈研究業績〉  
 1957年-1964年の間 X線分析装置の開発に従事するかたわら日立原子炉計装の開発, 解析機器のメモリーの開発に従事。1965年以後しばらく計算機 (現在の電卓) の研究を行う。1978年から国際計測連合 (IMEKO) に参加, 計測の体系化の仕事と取り組む。この間, ジャダプーア大学 (インド), ソ連科学アカデミー (ソ連), チューリッヒ工科大学 (スイス), フリードリヒ・シラー大学 (ドイツ), フンボルト大学 (ドイツ), ザ・シテイ大学 (イギリス), スタンホード大学 (アメリカ) などを訪問, 計測の体系化を提唱する学者と討論を重ねる。1983年フリードリヒ・シラー大学客員教授, 1988年同大学アベイ財団客員教授, 1989年-1991年国際計測連合シンポジウム AIMaC '91 実行委員長。

〈論文・著書〉  
 論文: 計測に関する論文 -150編。  
 著書: 「体系的に考えた計測工学」ほか 4編。

な社会の発展を技術のサイズ, 情報と知識の広がり, 人間の幸福さ, および時代の進展との関係で示した図である。

私たち人間が体(目, 耳, 鼻, 舌, 皮膚, など)や対話によって得るものは, すべて「情報(Information)」であり, その情報から役に立つものを頭脳によって取り出したものは「知識(Intelligence)」である(図2)。ここで, 情報を得る手段は →センシング(Sensing)であり, 知識を選別する方法は →アナリシス(Analysis)である。すなわち人間は, 人類がこの世に出現して以来現在まで, 常にセンシングとア

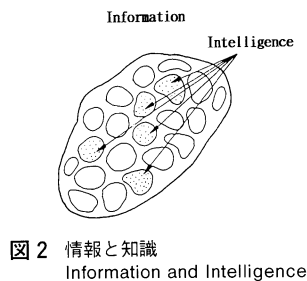


図2 情報と知識  
 Information and Intelligence

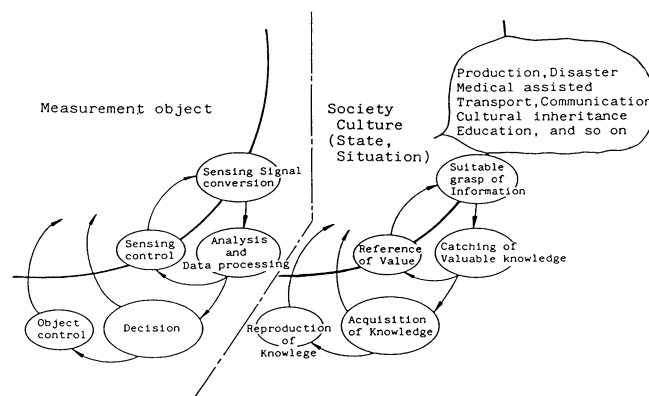


図3 計測の工学的システムと社会的システム  
 Engineering system and Social system of Measurement

ナリシスの行為を繰り返しながら, その結果を個人の生活や社会生活に反映させて人類の繁栄を築いてきたのである。

センシングとアナリシスは『計測の基本行為』であって, その工学的手段に用いるものものがセンサ(Sensor)であり, アナライザ(Analyzer)であることは周知のとおりである。したがって, 計測の工学的システムはそのまま社会的システムに対比させられるのである(図3)。この図は, まさに社会における「知識の再生産(Re-production of knowledge)」が『計測の行為』によって行われていることを示すもので, ここに『計測科学(Measurement Science)』という学問の体系を作り上げていく所以がある。そして計測科学は, 人々が物事を計る行為の歴史を, 人類の生い立ちと人間社会の構成および発展過程との関連においてひもときながら, 新たな時代に対処する技術を志向しつつ体系化されていく。『計測の行為』は, それをひもとけばひもとくほど, 人間および人間社会との係わりにおいて興味深いものである。多くの人々が, この事実を学び, 情報社会, 技術社会に対処できる心を養うことを期待したい。

ところが, 一方で計測の行為が科学・技術の発展に必要な不可欠のものであること

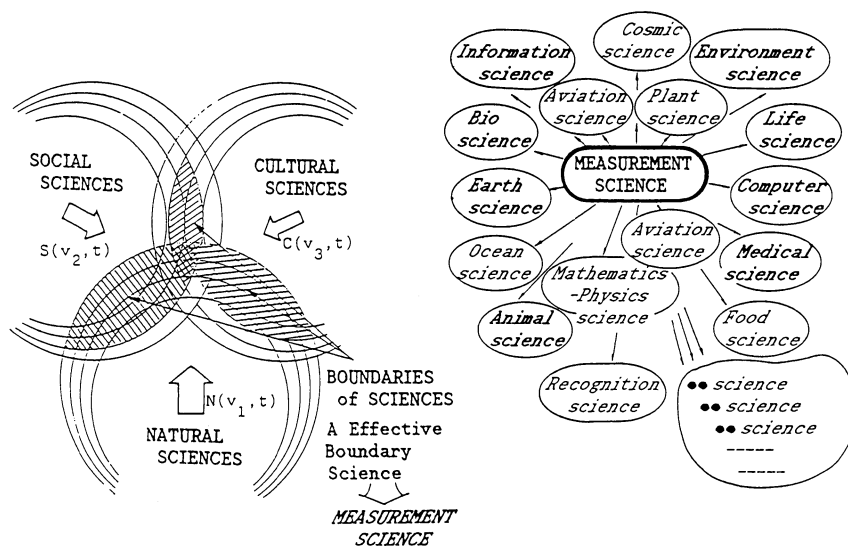


図4 境界科学と計測科学  
Boundary science and Measurement science

が明瞭でありながらも軽んじられる向きもあり、例えば計測工学科が設置されている大学は、わが国には3大学しかない。また大学の計測工学 (Measurement Engineering) の講義内容は、メーター、オシロスコープ、レコーダー、カウンターなどの原理、および若干の解析機器の説明とそれに必要な信号の扱い方に止まっているのが実状であって、物事を計ることと人間との関係、社会の生い立ちとの関係、社会にはたす役割に立ち入っているところはまず見当たらない。

学問には、本来、その学問が果たす人類への貢献と役割を常に考える哲学的側面がなければならない。最近になって、意識ある人々によって、「境界科学 (Boundary Science)」としての地球科学、環境科学、生命科学などが構築されており、人間との関係が論じられていることは好ましいことであるが、その背景に『計測の行為』を置くことによって、さらに強固な科学となる(図4)。私たちをとり巻く問題は山積している。石油資源問題、資源の有効利用およびリサイクル問題、生活および工業廃棄物の処理問題、土地開発による災害発生問題、動物保護問題など、数えあげれば限りがないが、とくに、これからの社会が人間性の回復を必要としていることを正しく見つめなければならない(図5)。さらに、電話、ファクシミリ、コンピュータなどによる情報伝達やデータベースの構築にともなう色々な問題がある。これらの問題に正しく対処する科学的な知識は、無いよりも有る方が、生活の合理化によって、ゆとりをつくり、精神的に豊かな生活を送ることができるようになる。そして個人や家族単位的生活は地域、集団の社会生活に拡張され、国全体の社会問題、政治問題となってくる。

冒頭に記述したように、情報社会や技術社会は理学や工学に携わる人々が作るのではなく、庶民(国民)の科学的、技術的知識が原動力となって進展していく。

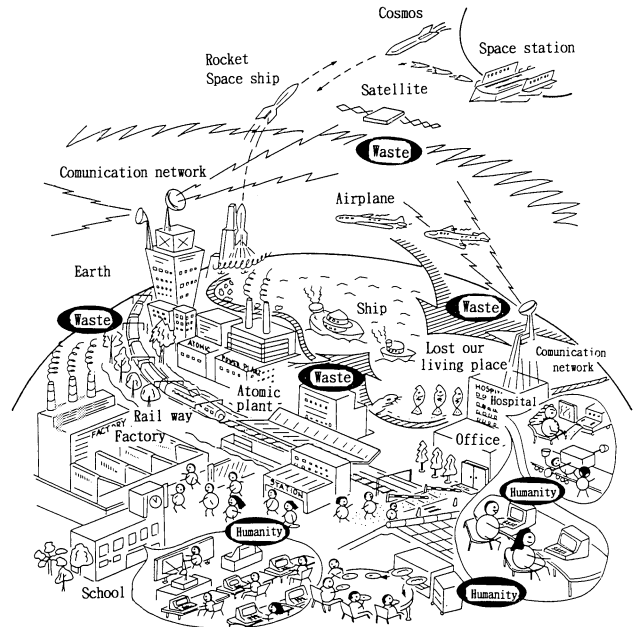


図5 人間性の回復を必要としている社会  
The society have need of the recovery of humanity

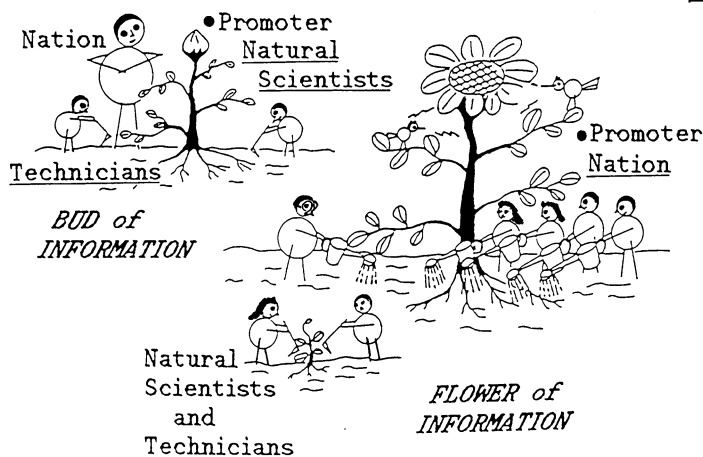


図6 「情報に担われた社会」および「技術に担われた社会」における国民の役割と理学や工学に携わる人々の役割（「情報の開花」による説明）  
Role of nation and Role of natural scientists and technicians at "Information orientated society" and "Technical orientated society"(Explanation by "Information Flower")

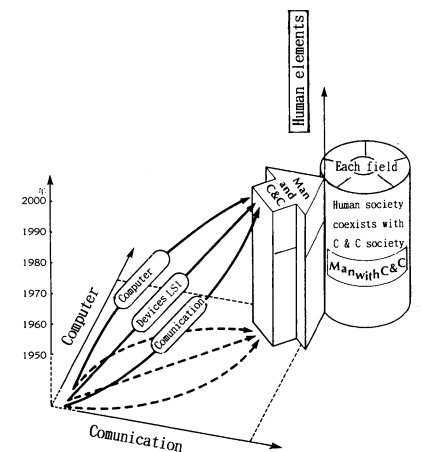


図7 Man and C & C 社会の発展 —小林宏治氏による  
Development of Man and C & C Society —Dr. Koji Kobayashi

図6は、かつて著者が現在のコンピュータに担われた情報社会が始まる頃に、事務系の人々に「情報社会とは何ぞや！」を説明するのに使った「情報の開花 (Information flower)」の絵<sup>1)</sup>である。ちょうどこの時期に現在の日本電気(株)の会長である小林宏治氏は「C & C (Computer and Communication)」という言葉の提唱して、コンピュータと通信との共存は情報の量を拡大し、伝達の高速度を可能にし、経済の流れを促進して、すばらしいバランスの保たれた経済・情報社会を誕生させることを示唆した(図7)<sup>2)</sup>。現在はまさにそのような社会なのである。



『計測の行為』が、元來人間の争いを回避すること(狩獵時代の獲物の分配)、人間の規則正しい生活の欲求(農耕文化時代の種蒔きや収穫時期を知る)から出発したことを思い起こすならば、計測の発展過程は人類の発展過程そのものである。

## <計測科学のフレーム>

『計測科学の意義』のもとに『誰もが理解しやすい計測科学(Familiar Measurement Science)』の論点(フレーム)を次のように設定することができる。

1. 人類の誕生と共に始まる計測の行為
2. 人間社会の発達と計測の発展
3. 技術と社会を結ぶブリッジとしての計測の役割
4. 計測の社会的使命
  - 計量の基準を作る仕事, 正しい基準を求める仕事, そして基準を社会に普及する仕事(トレーサビリティ)
  - 情報の把握と知識を獲得をする方法を考える仕事(センシング)
  - 知識をあらゆる人間の社会生活に役立たせる仕事(文化的生活, 社会保全, 医療と福祉, 環境維持, 災害の予告と回避, …など)
5. センシングによる信号の出現, 信号に担われてくる情報, 情報に埋もれている知識, およびその取得の方法(アナリシス)
6. 知識の伝達と経済・情報社会の発展
7. 計測によって可能になる様々な予測(予測への挑戦)
8. 品質(物質に関する品質, 情報に関する品質)のはたす社会へのインパクト, および品質計測, 品質管理, 品質保証
9. 主観的判断と客観的判断を結ぶ計測の必要性
10. 計測の妙味
  - 釣り合わせと秤
  - 比較と標準
  - 物の配置と運動および時間
  - 電磁気現象と検出(電磁気作用, 電磁誘導, 電気量, 磁気量, 電磁波)
  - 放射線の上手な利用
  - 機械量と歪みゲージ
  - 光の面白い性質の利用
  - アナログからデジタルへ, またデジタルからアナログへ
  - 数の扱いから頭脳に対応する記憶……など

## 11. 計測の起源と未来の計測

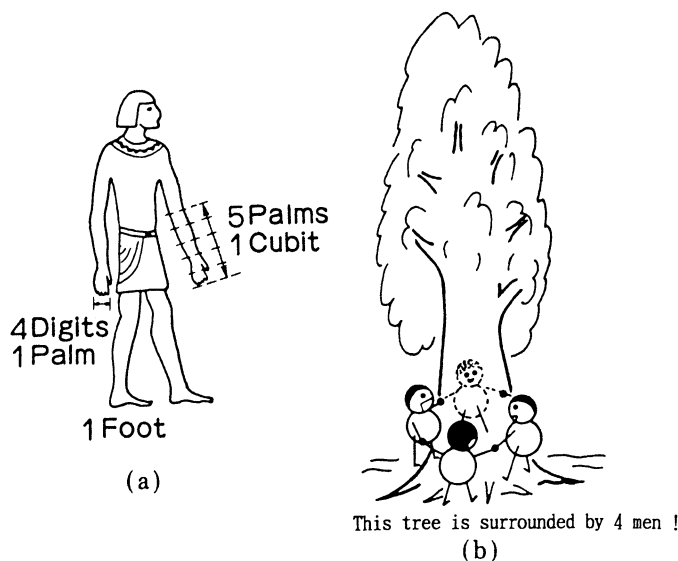


図8 計測の行為と人間の知恵 (A-D変換の思想)  
Act of measurement and Wisdom of man  
(Philosophy of A-D Conversion)

ここでは、わかりやすく、しかも計測の行為が常に人間の知恵から出発している思想が説明されなければならない。とくに社会にインパクトを与える品質計測および主観性と客観性を結ぶ計測の行為は重要である。図8は古代の人々が長さや距離を計るのに、基準を人間の体に求めたことを説明する図であり、この図からA-D変換の思想が説明できるのである。また、図9は主観性を計る例として試みている講義教育における学生の直観的理解度の客観性である。ここでは教室内音声信号(教員の講義の声と学生の囁きによるざわめき)の振幅確率密度分布の微分最大値(学生のざわめきの指標)が講義の進行にしたがって上昇傾向にあるときには学生の理解度が高まって行くことを示している<sup>7)</sup>。

[物事を計り → 情報を得て → 知識を獲得し → それを利用して → 人間の争いや危険を回避し → 社会に貢献する → そして人々の生活を快適にする] このような役割をもつ科学を『計測科学』として体系的にひもといていくことを提案した。<sup>3), 4), 5), 6)</sup>賛同する人々が集い、これからの科学を論じていきたいと願うものである。

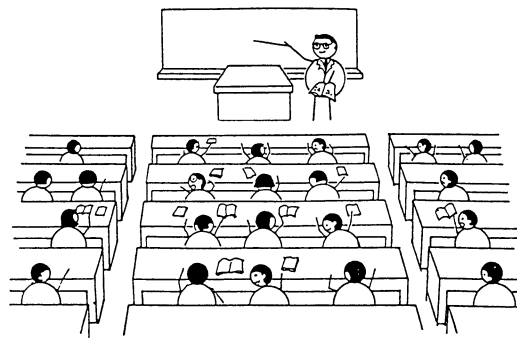
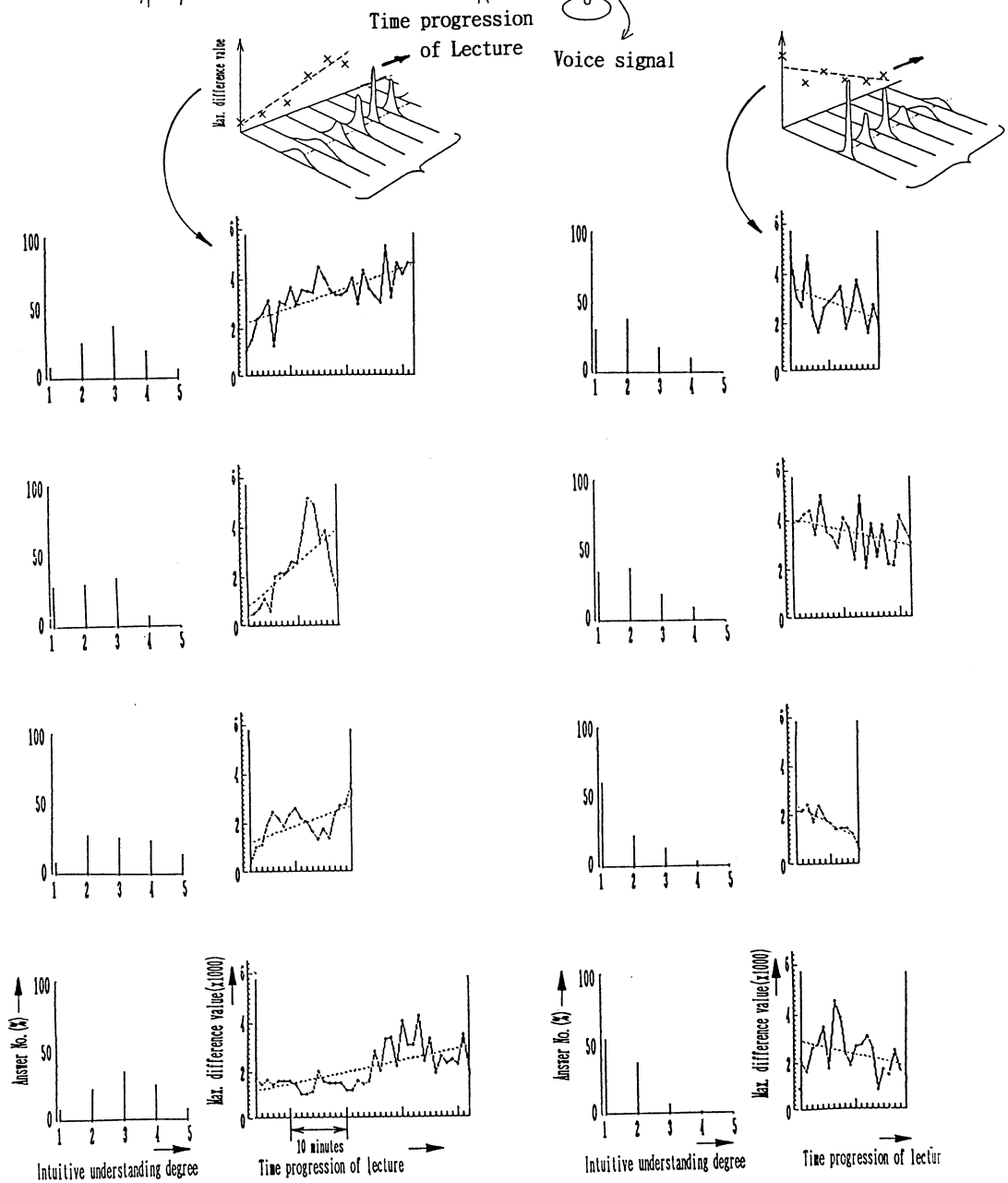


図9 講義教育における学生の直感的理解度の客観性  
Objectivity of Intuitive understanding degree of students in Lecture style education



## 参考文献

- 1) 苅屋公明：立命館学園広報, 第161号, p.178-179 (1985) .
- 2) 小林宏治：モダン・コミュニケーション, サイマル出版会, p.137-140 (1985) .
- 3) D. Hofmann and K. Kariya : Task of Measurement Science in an Information Oriented Society, Memoirs of the Research Institute of Science and Engineering, Ritsumeikan Univ., No.43, p.103-118 (1989) .
- 4) K. Kariya : Measurement Engineering, Quality Control and The Construction of Measurement Science, Proceedings of International Fair Symposium (Leipzig), p.299-314 (1988) .
- 5) 苅屋公明：連載講座—計測科学 1—36, OHM, オーム社, Vol.75, No.5-Vol.78, No.4 (1988-1991) .
- 6) K. Kariya : Measurement Engineering, Quality Control and The Contribution to Technical Culture of A Nation, Digest (Preprint) II of 12th IMEKO World Congress, p.58-60 (1991) .
- 7) K. Kariya : Measurement to connect with Subjectivity and Objectivity Using Measurement of Education Effect and Fitness For Use of Production Goods, IMEKO TC7 8th International Symposium AIMaC'91 (Kyoto), Proceedings Vol.11 p.11-20 (1991) .

---

## Recomendation of Measurement Science —orients The Development of Human Society—

It is said that nowadays is "Information orientated Society" and "Technical orientated Society". But the saying is not correctly, because the techniques and the information exist on our human society in every age. There is a technical and information society to support the age in each age, for example, in the farming culture age, and also in the industrial revolution age. And people are efforting to construct good society in every age using information and knowledge.

"Act of Measurement" is a technique to detect the information (Sensing) and to extract the knowledge (Analysis), and people go to grade up human living and human society by using the knowledge. The "Act" had started with the origin of man like shown in measure of weight and length of game in ancient hunting age. This act is a measurement operation to avoid the quarrel of people in the age. This fact means the keeping of peace in human society and this thought is quite similar in nowadays. Other side the development of the transmission of knowledge enables the flow of economy and keeps the balance of the human society.

"Act of measurement" relates with all social and cultural field in scientifically and needs for all information acquisition and extraction of knowledge, so that the construction and the distribution of "Measurement Science" which rise up technical level and sense of all people become strong need.

汎用水質計の変換器と検出器  $\alpha$ -900シリーズTransmitter and Probes for the  $\alpha$ -900 Series All-Purpose Water Quality Meter

山内 進・鈴木 理一郎

Susumu Yamauchi, Riichiro Suzuki

## 要 旨

水質の指標 pH/酸化還元電位, 比抵抗/電気伝導率, 溶存酸素を測定する汎用水質計( $\alpha$ -900シリーズ)変換器と検出器を開発した。変換器にはマイコンを搭載して操作性を向上させ, また温度補償演算などを高精度に処理することができ, さらに伝送出力や警報接点が備わっており, 現場での制御にも適するものとなっている。また検出器は $\alpha$ -900シリーズ用に pH, 酸化還元電位, 電気伝導率電極を新たに開発した。pH 電極は外套にポリサルフォンを採用して取扱を容易にし, またダブルジャンクション型の液絡にすることで安定性を高めている。電気伝導率電極の材質には腐食に強いチタンを採用して安定性を高め, 絶縁材質にはテフロン系のものを採用して, 耐熱性および信頼性を高めている。

## Abstract

We have developed the  $\alpha$ -900 Series of transmitter and probes for measuring the various indicators of water purity, i.e., (1) pH and oxygen reduction potential (ORP), (2) specific resistance and electrical conductivity (COND), and (3) dissolved oxygen (DO). The  $\alpha$ -900 Series transmitter unit is coupled to a microcomputer; this gives the unit increased utility and flexibility, including the ability to do such high-precision processing as measurements done with temperature compensation; the unit also has output ports for the transmission of data to an external device and for warning signals. These features make the  $\alpha$ -900 Series transmitter ideal for on-site control applications. The  $\alpha$ -900 Series probes use specially designed sensors for pH, ORP, and COND. The pH sensor uses a polysarufon cover for easier handling; a double liquid junction improves stability. The COND sensor is made of titanium, which is highly resistant to corrosion, also improving stability; the insulation portion of the COND sensor is made of Teflon materials, greatly increasing its heat-resistance and reliability.

## 1. はじめに

水質計測の中で pH, 電気伝導率, 溶存酸素濃度は最も基本的な項目である。

これらの項目を測定したり, 現場でローカルな制御を行いたいとき, また現場のデータを中央に送るとき手軽に実装できる変換器およびそれらに用いる検出器を開発した。現在までに pH, 酸化還元電位 (Oxidation Reduction Power :

ORP), 溶存酸素 (Dissolved Oxygen : DO) および比抵抗 / 電気伝導率 (Resistivity/Conductivity : R/C) の各検出器と 4 機種の変換器を  $\alpha$ -900 シリーズとして製品化した。本稿ではこれらの変換器の構造, 検出器の特長, ならびにソフトウェアなどについて述べる。

## 2. 変換器の概要と特長

$\alpha$ -900 シリーズの変換器には, 各検出器からの信号を校正して測定値を表示, 伝送するとともに設定値に対する警報接点を出力する機能がある。pH および ORP 計の変換器としては TD-950 と TD-960 が, 溶存酸素計の変換器としては TD-980 が, 比抵抗/電気伝導率の変換器として TD-920 がそれぞれ用意されている。表 1 に 4 機種の一覧を示す。

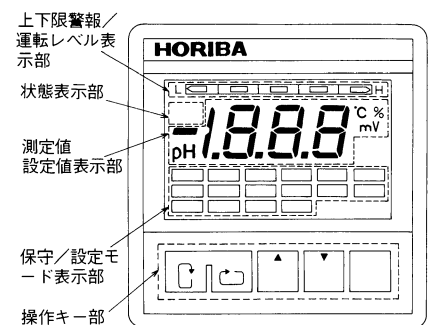
これらの変換器の特長はワンチップマイコンが搭載され, 機能の拡大と測定精度の向上を実現させていることにある。また DIN96 サイズに統一して計装盤への取付を容易にし, 見やすい液晶画面でデータの読み取りおよび各種モードの設定などを行なうことができる。一方マイコンを搭載したことにより機能は充実しても操作が難しくなるようでは実用的でない。この点を考慮して液晶画面に操作手順をカーソルで案内する方式を採用している。またモードキー, アップダウンキー, エンターキーの 3 種類 (5 個) のキーで全ての操作が可能なソフトを搭載して操作性を高めている。図 1 に TD-960 の外観とフロントパネルを示す。検出器の校正データ, 各種モード設定のメモリーには, 不揮発性メモリー (Electrically Erasable and Programmable ROM ; EEPROM) を採用しており, 電源投入時には前回の測定条件が保持されているので改めて再設定する必要はない。また誤計測の防止および異常箇所の早期発見のためにエラーを知らせる表示および接点が備わっている。



(A) 外観  
Over view

形式名	測定対象	測定範囲	特長
TD-950	pH/ORP	0-14pH ±1400mV	ワンタッチ自動校正 電極診断機能
TD-960	pH/ORP	0-14pH ±1400mV	上記機能に加え 時間比例制御出力
TD-920	比抵抗/導電率	0-20M $\Omega$ cm 0-10mS/cm	超純水の温度補償機能 2 測定チャンネル
TD-980	溶存酸素	0-25mgO/l	時間比例制御出力 ワイドレンジ

表 1  $\alpha$ -900 変換器仕様  
Specifications :  $\alpha$ -900 Series transmitter



(B) フロントパネル  
Front Panel

図 1 pH/ORP 変換器 TD-960  
Model TD-960 pH/ORP transmitter

## 3. 変換器の内部構成について

### 3.1 ハード構成

$\alpha$ -900 には 8 bit のワンチップマイコンが搭載されているが, その周辺のインターフェイスを含めた回路を図 2 に示す。A/D 変換器は, 2 重積分-コンパレータ出力型の A/D 変換チップと, ワンチップマイコン内の 16bit カウンターによって構成される。D/A 変換器はマイコンからの周期信号を充放電する積分器とサンプルホールド回路で構成されている。周期伝達にフォトカプラを用いて入出力信号を絶縁している。この種の変換器は電氣的に試料水と接続され

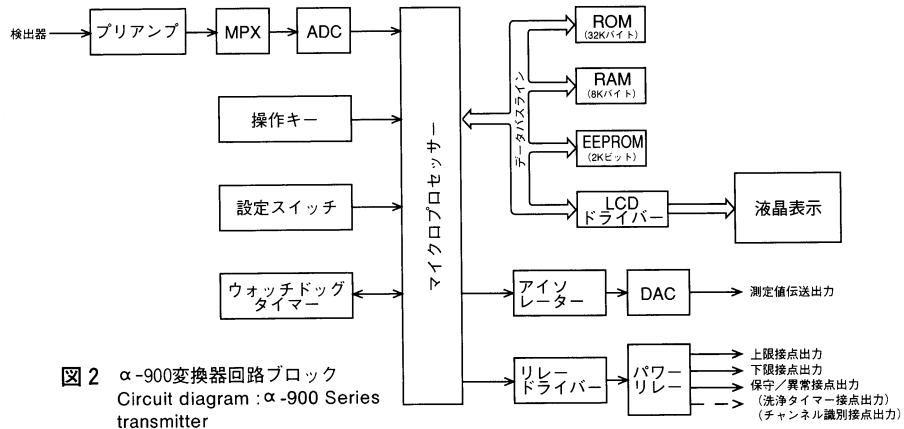


図2 α-900変換器回路ブロック  
Circuit diagram : α-900 Series transmitter

るため、変換器の信号絶縁機能は重要である。伝送出力は DC 4-20mA のほかに DC 0-16mA が内部のスイッチで選択できる。伝送出力のレンジ(出力範囲)は TD-950と TD-960は内部設定スイッチにより、また TD-980と TD-920はキー操作により現場で簡単に変更できる。4個の出力接点全てに容量 625VA、最大電圧 AC 250V、最大電流 5 A のパワーリレーを搭載しており、小規模な制御機器なら直接駆動することができる。4個の接点は上限、下限、保守中、洗浄器制御、チャンネル切り替え案内信号などに用いている。表示器には大型の液晶ディスプレイを装備しており測定値、各種設定値、操作モード、エラー情報などを表示することができる。マイコンの正常動作はウォッチドッグタイマーで監視しているので万一の異常発生時にもマイコンを自動復帰させる機能がある。メモリーにはプログラムと演算用の ROM, RAM のほかに校正データ、設定条件などを記憶するための EEPROM があり、電源を切っても設定内容は失われず、また電池の消耗でデータが消える心配もない。プリアンプ部は pH/ORP 計, R/C 計, DO計 それぞれに専用の回路が搭載されているが、温度測定回路は全ての機種に共通となっている。

内部のプリント基板は表面実装技術によりコンパクト化され基板間の接続は全てコネクタを使用して保守を容易にしている。ケースは DIN96サイズのパネルマウントタイプで、計装システムへの組み込みが容易である。

### 3.2 ソフトウェア

ソフトウェアは、操作性を良くするためにカーソルの案内でモードを選択する方法を採用している。各モードではアップキー、ダウンキーで数値入力およびメニュー選択を行いエンターキーで完了させることが基本的な操作であるが、さらに pH 計, DO 計では校正をワンタッチ化させて数値の入力などの手間を省いている。pH の電極には不斉電位差、液間電位差などの誤差要因が考えられる。そのため定期的な標準液校正が不可欠である。一方標準液の pH は温度によって若干変化する。この変化量(温度と pH の関係)を記憶させているので、校正液の温度が基準温度以外であっても正確な校正ができる。校正方法は、電極を所定の校正液に漬け、校正モードに合わせエンターキーを押すだけで済み、校正動作が開始された後は自動的に電位の安定を判断して校正を完了する。

pH 測定におけるトラブルや誤差の発生原因は、ガラス電極応答膜の汚れ、比較電極の液絡部の詰まり、比較電極内部液の汚染希薄化などが考えられる。これらは電極感度の劣化、不斉電位の増大、ドリフト、応答速度の劣化となっ



て現れるが校正のときに得られる電位から電極の良否を判断することもできるようにしている。

DO 計はゼロとスパンの 2 点で校正するが、ゼロは検出器を外してエンターキーを押す、スパンは大気へ検出器を曝すか、曝気処理をした飽和溶存酸素の液に漬けてエンターキーを押すと完了する。スパン校正のときには検出器からの信号量で検出器の良否(寿命)を判定している。

高精度な温度補償が可能なのはマイコンを搭載した場合の特長である。pH 計では検出器の温度特性と校正液の温度特性を、R/C 計では純水の電気伝導率の温度特性と不純物の温度特性を、DO 計では飽和溶存酸素の温度特性と検出器の温度特性をあらかじめ記憶させておくことで、従来アナログ回路による補償方式では成し得なかった理想的な温度補償が可能となった。

時間比例制御は、pH 計(TD-960)と DO 計に採用されており、上下限接点の動作を単純な ON/OFF 動作のほかに比例帯を設けて、より安定な制御を目指すものである。また、ON/OFF 動作、時間比例制御動作ともに不感帯を設定できるので多様な制御が可能になる。図 3 に比例制御の動作を示す。

R/C 計にはこのほか、2 個の検出器を扱う機能、電気伝導率と比抵抗の 2 モードを扱う機能、2 個の測定値から塩分除去率を計算する機能がある。2 個の検出器は固定モードと交互測定モードがあり、交互測定モードでは切り換え時間を設定できる。また、上下限設定、セル定数などは 2 個の検出器に対して別々に設定できる。

いずれの変換器も保守中および異常発生時には、伝送出力を次の 3 種類に設定できるようにしている。

- ①ダイレクト出力：校正時のデータを残したいとき信号をそのまま出力する。
- ②プリセット出力：保守/異常時に制御系を乱したくないとき、あらかじめ任意に設定した値を出力する。
- ③ホールド出力：保守/異常時に制御系を乱したくないとき、直前の測定値をホールドして出力する。

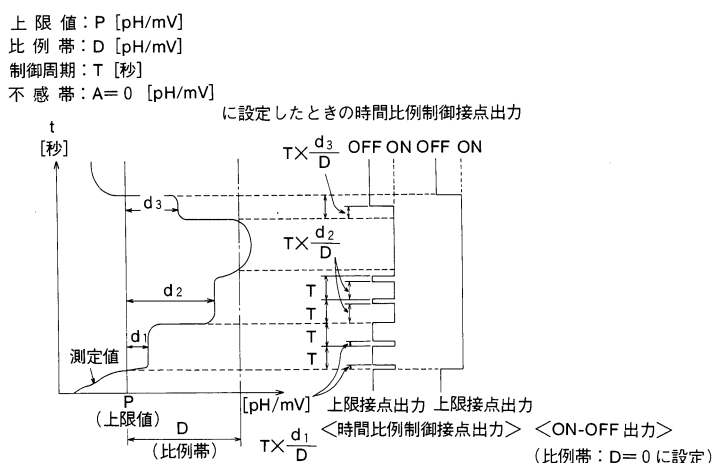


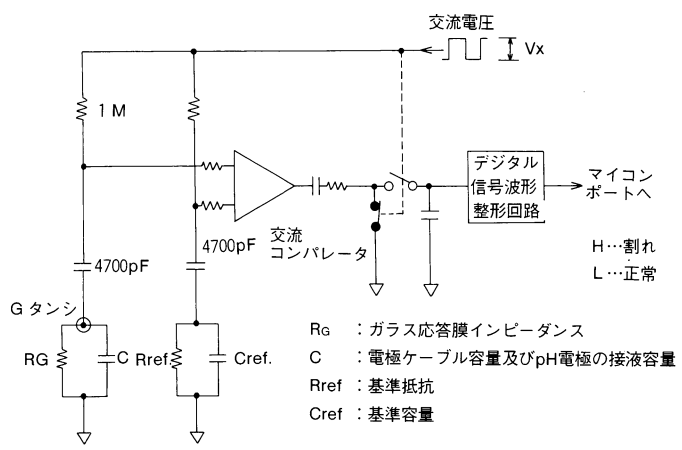
図 3 時間比例制御出力の動作  
 Operation of the proportional control output

### 3.3 プリアンプ

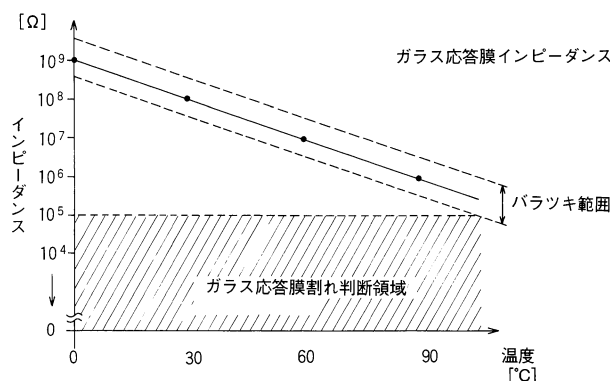
pH 計のプリアンプには、電極の破損およびケーブルの絶縁低下の検出機能を備えている。pH 電極のガラス応答膜の異常検知は、ガラス電極と比較電極間のインピーダンスが正常範囲からはずれることによって判断している。

図4に電極の異常を検出する回路のブロック図を示す。ガラス電極と比較電極に常時交流を印加し、両端の抵抗を測定する。この方法は、pH測定中でも異常を検出できる利点がある。抵抗値はケーブルの長さにより変化するので、最大100mまで延長しても抵抗を精度良く検出する補正スイッチを設けている。

R/C計のプリアンプには定電圧交流発生回路と基準抵抗の両端の電圧を検出する回路が備わっている。検出器と基準抵抗を直列に置きその両端に交流電圧を印加すると、検出器の抵抗は基準抵抗の両端の電圧から計算で求めることができる。この方式は、電気伝導率と比抵抗を同時に測定することができる利点がある。DO計のプリアンプの初段にはオフセット電圧の温度ドリフトが小さい高入力インピーダンスのオペアンプを備えており、フルスケール0.04μAの微小電流を安定に検出することができる。

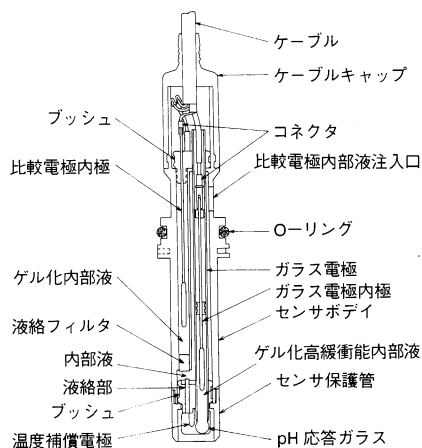


(A)回路図  
Circuit



(B)ガラス応答膜の温度特性  
Temperature characteristics of glass membrane

図4 pH電極割れ検出の原理  
Principle of ratio detection in the pH electrode



pH 測定範囲	pH 0~14
使用温度範囲	-5~80°C
内部基準電極	銀/塩化銀
比較電極内部液	3.33mol/l -KCl
液絡部 内側	多孔質プラスチック
液絡部 外側	多孔質セラミック
接液部材質	PSF, バイトン、ガラス、セラミック

図5 #6150形 pH電極の構造と仕様  
Model #6150 pH electrode :  
configuration and specifications

## 4. 検出器の構造と特長

### 4.1 pH電極

pH および ORP 電極は取扱いが容易で経済性に優れたプラスチック(ポリサルフォン)を採用した。内部液をゲル化したダブルジャンクション型の液絡部により電極の汚れの影響を少なくし測定の安定性を向上させている。またガラス電極と比較電極の内極の熱伝導をバランスさせることにより、電極に温度変化を与えたときの電位のヒステリシスを減少させている。図5に新しく開発された pH 電極(当社の型式#6150)の構造と仕様を、図6に当社の従来の電極と比較した#6150の温度応答特性を示す。グラフは中性リン酸塩緩衝液の25°Cの液から50°Cの液に電極を入れ換えたときおよびその逆の操作を行ったときの起電力の時間変化を記録したものである。温度応答にうねりとヒステリシスがなく、最終安定点に達する時間も短縮されている。

### 4.2 DO電極

DO電極はガルバニセル方式である。従来からの隔膜の張り替えタイプの電極では作業に熟練が必要であったり、膜のゆるみが発生するなどの欠点があっ

た。これらの欠点を解消するために、電極を定期的に交換する方式を採用している。電極は大気中に曝した場合には1年以上の寿命がある。曝気槽など固形物が多く隔膜の表面が傷みやすい場所には隔膜の厚みを増して耐久性を向上させたタイプも開発している。図7にDO電極とプローブの写真を示す。温度電極はプローブに内蔵されている。

### 4.3 COND 電極

電気伝導率の測定用にはセル定数の異なる電極(セル定数:0.01, 0.1, 1.0, 10)を用意している。また取付方法に応じて長さを2種類用意している。金属電極の材質は錆や腐食が起こりにくいチタンを、絶縁部には耐熱性の高いテフロン系の材料を用いて信頼性を高めている。標準はテーパネジ(PT3/4)により取付けるが、フランジによる取付けも可能である。図8にCOND電極を示す。

## 5. アプリケーション

α-900シリーズは、汎用水質計として幅広い分野で使われている。次にいくつかの応用例を示す。

#### (1) 環境用水質モニター(WARA-25)

河川、湖沼などの水質監視用として、pH、ORP、電気伝導率、溶存酸素、温度、濁度を連続測定する環境用水質モニターWARA-25には本α-900シリーズを用いている。図9にWARA-25の外観を示す。

#### (2) 廃液処理施設のpH制御

中小規模の廃液の中和処理にTD-950/TD-960を用いた例を図10に示す。上限接点と下限接点とを用いて2台のポンプを操作し、pHを制御する。比例制御を用いるとより脈動の少ない制御が可能である。

#### (3) 印刷湿し液の濃度管理

最近では印刷機械の湿し液の濃度制御にTD-920(電気伝導率モードセル定数10)が用いられている。

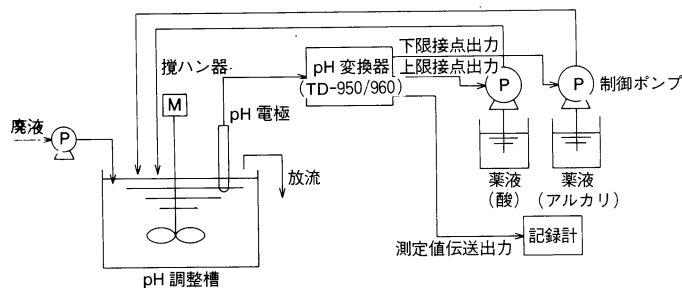


図10 pHコントロールシステム  
pH control system

#### (4) 超純水の水質管理

超純水に近い水の比抵抗の25℃の値を測定するためには純水の温度補償が不可欠となる。TD-920は超純水プラントや超純水を扱う洗浄器などに、取り付けることができる。また逆浸透膜、イオン交換樹脂の前後に検出器を取り付けると、イオンの除去率から機能の低下、寿命を知ることができる。

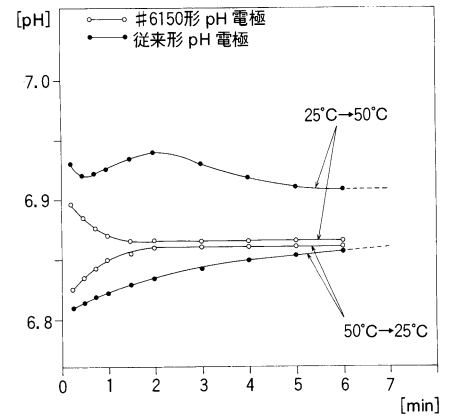


図6 #6150形pH電極の温度応答特性  
Model #6150 pH electrode :  
temperature response characteristics

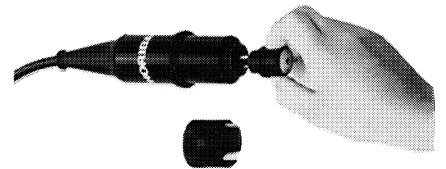


図7 DO電極とプローブ  
DO electrode and probe

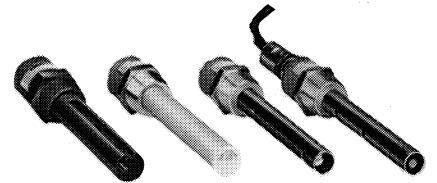


図8 電気伝導率電極  
Electrical conductivity electrode

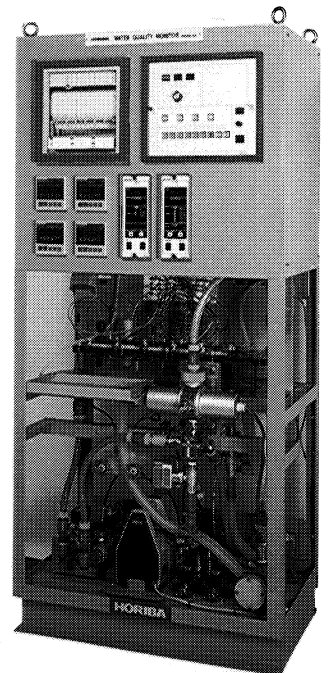


図9 水質モニターシステムWARA-25  
The WARA-25 water quality monitor

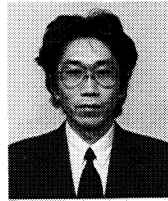
また半導体プロセスの洗浄行程での自然酸化膜の発生を抑えるために純水中の溶存酸素を除去しているが、この行程の監視を TD-980 で実現できる。

#### (5) 発酵槽内の環境監視

微生物を利用する発酵槽内の pH、DO などの測定は欠かせないものである。TD-980、TD-950、TD-960 を用いれば、pH と DO の測定と制御が容易に実現できる。

## 6. おわりに

$\alpha$ -900 シリーズは、変換器に機能を集中させたことで、単に水質測定だけでなく、制御を試みようとする目的には、トータルコストを下げ、また省スペースや省力化にも役立つものである。今後は変換器の測定対象を広げ、なおいっそう使いやすい装置を目指して開発を進めていく所存である。



山内 進  
Susumu Yamauchi  
開発 2 部 主任  
1960 年 3 月 17 日生  
京都工芸繊維大学  
工業短期大学部電気工学科



鈴木理一郎  
Riichiro Suzuki  
開発 2 部 主任  
1953 年 1 月 7 日生  
大阪大学  
基礎工学部物性物理工学科

## 運行管理システム HIT-500

## Intelligent Tachometer HIT-500

中西 保之

Yasuyuki Nakanishi

---

**要 旨**

近年、運送業界における OA 化は事務所内だけでなくトラック内にまで及んでいる。特にトラック内の OA 化は目を見張るものがあり、今後もこの傾向は続くと考えられる。自動車内における OA 化のひとつに運行管理を自動化したシステムがある。ここでは、運行管理の自動化のみでなく物流管理も行った運行管理システムである HIT-500 について、システムの概要、現状の利用方法と今後の展開について述べる。

**Abstract**

In recent years the computerization of the trucking industry has gone beyond the office and is now revolutionizing transport vehicles themselves at a startling rate. Computerized trucks are helping to automatize and systematize trucking management and control. The Horiba HIT-500 System goes beyond mere trucking control and actually enables the automatization of distribution management. This paper describes the system, covers practical applications for today's market, and looks at probable future developments.

---

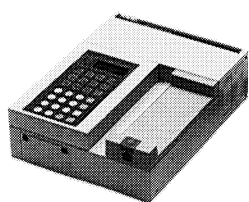
**1. はじめに**

トラック運送業界において、運行管理は運輸省令の自動車運送事業等運輸規則などで決められ、車両の使用状況、運転手の乗務記録などの管理が義務づけられている。従来、この運行管理は、運行記録計(以下タコグラフという)、および、運転手が記録する乗務記録(運転日報)の2点をもとに行われているのが一般的である。タコグラフは、走行距離、時間、瞬間速度が記録される装置であり、乗務員の運転状況が管理できる。また、乗務記録は、行き先(運行区域)、作業内容、作業時間、運送荷物などが記録されている。これらをもとに運行管理、労務管理などが行われている。これらを OA 化するには、今まで、乗務員の記録(手書き)した内容をもとに事務所でコンピュータへ入力を行う必要があった。このため、適正な運行がされているかどうか、適正な労務管理ができていないかどうかの把握をするには相当の労力と時間を必要としてきた。この点を自動化し、省力化することの要望が特にここ数年高まってきた。

そこで、当社では、運行管理や労務管理だけでなく、荷物管理をも同時に出来る装置の開発に取り組み、HIT (Horiba Intelligent Tachometer)を開発した。当初、運行管理と労務管理を主体とした HIT-300シリーズを製品化した。その後、物流管理までも同時に管理したいとの要望が強く、物流をも管理できる HIT-500を製品化した。本稿では、HIT-500システムについて報告する。

## 2. HIT とは

HIT とは、トラック運送業などで使用されている運行管理システムであり、日常乗務員が手書きにより記録している乗務記録の内容、走行距離などを自動的に記録し、帰社後事務所内のコンピュータから出力する装置である。その装置の外観を図1に示す。役割は、図2に示すように運行管理、車両管理、安全運転指導、経済走行指導、労務管理、物流管理の6項目がある。これらの役割を行うために採取できる原始データ(HITで採取できるデータ)を表1に示す。また、この原始データを元にコンピュータで作成される帳票類を同じく表1の帳票例に示す。



(A)読取装置  
Main unit terminal



(B)車載装置  
Truck mounted terminal

図1 HIT-500の読取装置と車載装置  
The HIT-500 Main unit and Truck-mounted terminal

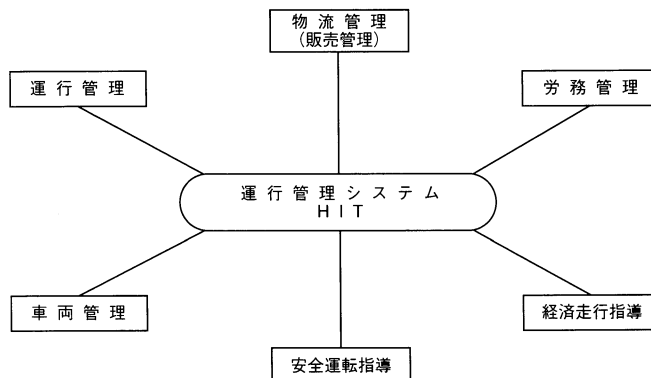


図2 運行管理システムの役割  
The role of trucking management

表1 HIT-500の原始データと汎用コンピュータによる帳票例  
The HIT-500 keeps accounts using raw data and a standard micro-computer.

	運行管理	物流管理 (販売管理)	労務管理	車両管理	安全運転指導	経済走行指導
原始データ	作業内容	発着地	出社時刻	積算走行距離	加速・減速状況	アイドル時間
	作業時間	荷主先	退社時刻	積算エンジン回転数	速度オーバー情報	エンジン回転オーバー情報
	運転時間	荷主名	実労働時間	燃料使用量	連続運転時間	燃費算出
	休憩時間	品名	休憩時間	オイル使用量	休憩・休息時間	加速・減速状況
	発着地	数量		走行距離/日	点検整備時間	
	発着時刻	重量	走行距離	燃		
	走行距離	伝票NO	超動時間	車番		
	実車距離	発着地時刻	各種手当			
	空車距離	走行距離	乗務員外の作業時間			
	出庫メーター値	有料道路費	乗務員氏名			
	帰庫メーター値	手待時間				
	拘束時間	車番				
	運行経費					
距離別運行回数						
帳票例	運転日報	荷主別積算実績表	個人別運行実績表	給油先別補給明細	運転状況リスト	号車別燃費一覧
	標準ダイヤ比較表	号車別積算一覧表	タイムカード一覧	号車別燃費一覧	個人別運転時間一覧	運転状況リスト
	個人別運行明細表	運賃請求書	勤務記録簿	車両管理表		
	突進効率一覧	売上日報	給与計算	号車別走行距離一覧		
		輸送実績報告書	個人別労働時間表			
		販売実績表				
		荷主別輸送実績				
		荷主別手待時間一覧				

従来は、これらの項目を乗務員が手書きし、事務員がそれを元にコンピュータへ入力していたため、例えば、荷主への運賃請求に1～2週間程度必要であった。しかし、このHITの導入により翌日には処理が出来るようになった。また、従来、乗務員の運転状況を見るためには、タコグラフの記録を運行管理者がいちいちチェックする必要があった。このチェックをするには時間と技量が必要であったが、HITの導入により誰でも定量的に迅速に行えるようになった。

### 3. システム構成

構成を図3に示す。システムは大きく分けて車両側と事務所側に分けられる。さらに、車両側は以下に示す4つより構成される。

- ①センサー：速度、エンジン回転数を検出する
- ②センサーボックス：車両に取り付け、複数のセンサーなどを処理する装置
- ③登録ターミナル：乗務員が所持し、作業などを登録する装置
- ④車載アダプター：センサーボックスと登録ターミナルとのインターフェース(車両に取り付け)

センサーボックスには速度、エンジン回転センサーの入力の他に拡張用にシリアル入出力ポートとしてRS232C、また、温度管理などに利用できるようアナログ入力4チャンネルを有している。センサーボックスには、あらかじめ車両の番号(プレートナンバーなど)、累積走行距離などがセットできる機能があり、登録ターミナルが車載アダプターにセットされると自動的に登録ターミナルにこれらのデータが記録される。

登録ターミナルには荷物情報、顧客情報などを入力するためのバーコードリーダーがオプションで装備できる。また、登録ターミナルにはニッケルカドニウム電池が組み込まれてあり、車両から離れても使用できる。

車載アダプターには簡易プリンターを付けることができ、登録ターミナルで入力した項目が確認できる。

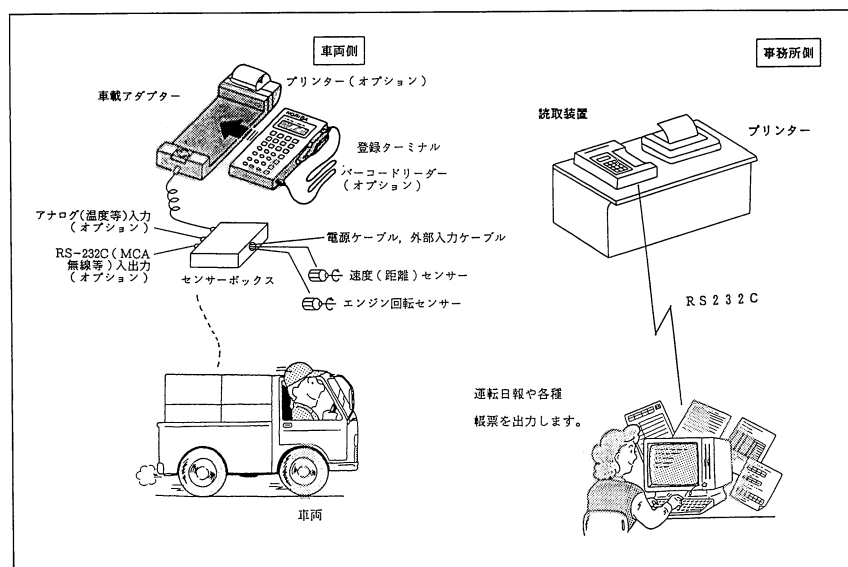


図3 運行管理システムの構成  
The configuration of trucking management

これに対し、事務所側は、以下より構成される。

- ①読取装置
- ②プリンター
- ③顧客が所有する汎用コンピュータ

読取装置は登録ターミナルのデータを保存し、出社状況などを記録し、プリンターに印字をする。汎用コンピュータでは、読取装置から受け取ったデータをもとに各用途にマッチした運転日報、車両管理帳票などの各種帳票を作成する。

また、HITは乗務員のコンピュータに対する不慣れをカバーするため、乗務員が操作する装置は、登録ターミナルと読取装置だけとした。事務所内に設置されるコンピュータは事務員が操作し、乗務員は操作しない。

以下、登録ターミナルと読取装置に関して詳しく述べる。

### 3.1 登録ターミナル

登録ターミナルは乗務員一人一人が所有し、一日に発生する作業(積込、荷卸、手待、休憩など)を入力する装置である。機能には次の項目がある。

- ①作業を記録する機能
- ②センサーボックスからの自動採取データを記録する機能
- ③入力された項目を表示する機能
- ④バーコードリーダーをコントロールする機能

図4に登録ターミナルの操作パネルを示す。

操作パネルには、積込や手待など10種類の作業項目のほかに積荷の有無を示す「実車/空車」、走行をしている道路が高速道路か一般道路かを示す「高速/一般」があり、乗務員は作業に応じてキーで入力する。各作業にはその作業に関係のある入力項目(荷卸場所、荷主、品名、数量など)が対話方式で順番に表示される。乗務員はその表示を見ながら順に入力すればよく、入力項目の入れ忘れがないように設計されている。これらの項目は顧客により対応が可能であり、現在使用していただいている顧客で同じ仕様はなく全て異なっている。センサーボックスで集められた自動収集データには、車番、速度、エンジン回転数、走行距離などがあり、車載アダプターを経由してセンサーボックスから登録ターミナルへ伝送され記録される。また、バーコードリーダーを接続することで先程の入力項目などを一度に入力することができる。登録ターミナルは通常、車載アダプターにセットして使用するが、電池を搭載しているために車載アダプターから取り外しても使用できる。このため、荷物についているバーコードを入力する際に登録ターミナルを荷物の所まで持って行って入力することができる。電池はニッケルカドミウム電池を使用し、充電は車載アダプターにセットしているときに行われるため、電池交換、充電の心配をする必要がない。

記録容量は32Kバイトあり、通常一週間程度の連続記録が可能である。

表示は液晶を使用し、図4に示すように3行で構成される。上段に時刻と積荷の有無「実車/空車」、走行している道路の状態「高速道路/一般道路」を絵により表示をする(図4、5)。その下2行を使って作業項目、テンキー入力項目などを表示する。1行は16文字入力できるため、表現が自由にできる。また、バックライトを行っているため、夜間の使用も不自由なくできる。この照明は常時点灯させるのではなく、車両が停止したとき、作業などの入力を行っているときのみ点灯し、乗務員が運転しているときなどは点灯しない。これは、

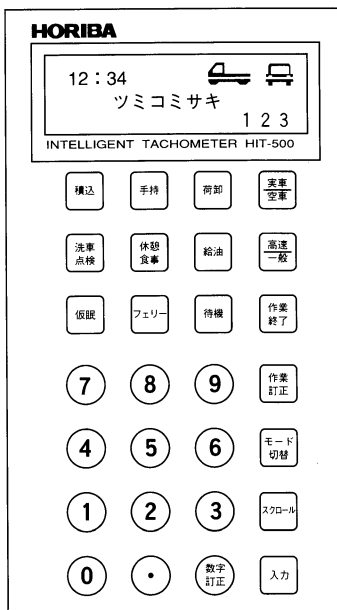


図4 HIT-500の登録ターミナルのパネル  
The control panel of the HIT-500 truck-mounted terminal

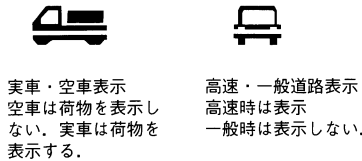


図5 HIT-500の登録ターミナルのパネル表示部  
The control panel readout on the HIT-500 truck-mounted terminal



運転中に点灯するとその光が気になるのを防ぐためである。また、これと同じ理由で、走行中はキーを操作できないようにし、運転の安全性を高めている。

登録ターミナルは、個人持ちのためあらかじめ登録ターミナルに氏名、社員コードなどをセットすることができる。

### 3.2 登録ターミナルのハード構成

登録ターミナルのハード構成を図6に示す。CPUを中心にして、各種のキー、LCD、バーコードリーダーのコントローラーが、また、ROMにはプログラムが書き込まれている。このROMはEEPROM(電氣的書き込み消去が可能なROM)が使用され、プログラムの変更が容易にできる。RAMは記録データエリアで、32Kバイトある。車載アダプターとの間は光通信により行っている。バーコードリーダーはCODE39, JAN, NW7などのコードが読み取りが可能であり、現在国内で使用されているコードのほとんどがカバーされている。

電源は、とりはずして使用するためにニッケルカドミウム電池の他にデータのバックアップ用としてリチウム電池がある。キーボードは屋外使用および防水性を考慮しシートキーとした。

### 3.3 読取装置

読取装置は事務所に設置され、次の機能を持っている。

- ①登録ターミナルに記録されたデータを一時的に保存する機能
- ②登録ターミナルのデータをプリンターへ印字する機能
- ③出退勤、作業登録機能

登録機能は全部で12項目あり、車載装置と同じく使用者により変更が可能である。操作パネルを図7に示す。登録ターミナルと同じ使い方とするため同ターミナルとできるかぎり同じ配置とした。登録ターミナルのデータを一時的に保存するために記憶容量を最大512Kバイトとした。この容量で登録ターミナル100台程度のデータが保存できる。このデータは、汎用コンピュータの都合に合わせて伝送ができる。このため、汎用コンピュータは常に読取装置と通信する必要はなく、乗務員の帰社時などとは全く無関係に夜間、空き時間にデータを受信することができる。

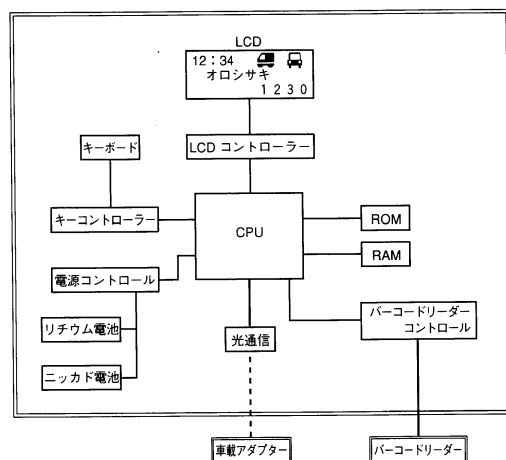


図6 HIT-500の登録ターミナルのハード構成  
The HIT-500 truck-mounted terminal : hardware configuration

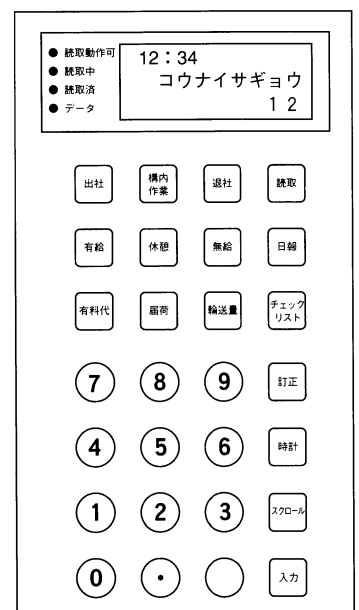


図7 HIT-500の読取装置のパネル  
The HIT-500 main unit control panel

プリンターへは、乗務員が登録した内容を確認するためのドライバーチェックリストと簡易運転日報を印字する(図8, 9)。ドライバーチェックリストは記録されたデータの中で必要なデータのみを印字する。したがって、どの車両に乗り、いつ、どこで、何の作業をしたか、そこまでの距離はいくらか、一日の距離はいくらかなどを中心に印字する。これに対して、簡易日報は、ドライバーチェックリストをもっと簡単に表にしたものであり、それぞれの作業時間の合計など、一日の作業の大まかな流れが解かる。これらを利用することにより、運輸省令の自動車運送事業等運輸規則で定められた乗務記録とすることも可能である。

図8 ドライバーチェックリストの作成例  
Driver's checklist

\*\*\* 運転日報 \*\*\* (株) 坂馬製作所

日付	89* 05* 08*	営業所	***1	出勤 時刻	89* 05* 08* 07* 52*		
運転手	27* 27*	号車	19600401	出勤 指令時刻	08* 15*		
助手	00001234			退社 時刻	89* 05* 08* 20* 18*		
				退社 指令時刻	20* 00*		

作業	00--01--02--03--04--05--06--07--08--09--10--11--12--13--14--15--16--17--18--19--20--21--22--23--	累計		
出発・退社	*			
発着		07:07		
ハンドル		08:36		
戻込		01:16		
手待		00:00		
降卸		00:57		
洗車点検		00:40		
休憩食事		00:57		
降卸		00:22		
戻込		00:00		
フェリー		00:00		
その他		00:00		
アイドル		00:17		
速度超過	SSS S	II S SS *		
同転超過		RR		
作業	00--01--02--03--04--05--06--07--08--09--10--11--12--13--14--15--16--17--18--19--20--21--22--23--	累計		
備考	燃料 125.60 オイル 0.00	出庫メータ 89452 帰庫メータ 89699	実用距離 0186 総走行距離 0247	総エンジン回転数 1087600

図9 運転日報の作成例  
Driving log

\*\*\* ドライバーチェックリスト \*\*\*

日付	89/05/08	乗務員	ネリバ タロウ	読取
出社	89/05/08 07:52 08:15			
退社	89/05/08 08:18 20:00			

日付	開始	終了	記録	走行距離	実車距離
05/08	07:52		出社	0815	
05/08	07:56		乗務作業開始		
	07:56		*** 空車		0000
			スタートメーター	89452	
			出社指示	0815	
	07:56		降卸	1284	0000
	07:57-08:18		* 洗車点検		0000
	09:52-11:08		** 積込		0048
			品名	112	
			品名	412554	
			数量	100	
			数量	1128459	
			数量	150	
	11:08		*** 実車		0048
	12:13-13:10		** 休憩食事		0069
	14:12-15:09		** 降卸		0100
			品名	101	
			品名	1128459	
			数量	150	
			品名	412554	
			数量	60	
	16:04-16:28		* 給油		0144
			給油所	201	
			燃料	125.6	
			オイル		
	17:12-17:41		** 降卸		0191
			品名	115	
			品名	412554	
			数量	40	
	17:41		*** 空車		0234
	18:48		* 通行料(プレート)	4500	0247
	18:48-19:07		** 実車点検		0186
05/08	19:07		乗務作業終了		
05/08	19:09		乗務作業		
05/08	20:18		退社		

積込	1	手待	0	降卸	2
洗車点検	2	休憩食事	1	給油	1
戻込	0	フェリー	0	ソノ他作業	0
速度オーバー	0	同転オーバー	2	アイドルオーバー	1
実車距離	0186	走行距離	0247		

汎用コンピュータへのデータ伝送にはRS232Cを利用しており、どのメーカーのコンピュータにも接続することができる。伝送方法は登録ターミナルで採取したデータをコンピュータが処理しやすいように分類加工し伝送される。

汎用コンピュータのプログラムは使用者が用意するシステムとなっている。これは、使用者がすでにソフト会社と契約して使用者のソフトを製作していたり、または、自社のソフト部門を所有している場合が多く、そこでコンピュータのソフトを開発する方が、現在使用しているプログラムとの連動などを考えると良いと思われるためである。現在、接続を行ったコンピュータメーカーの数は10社、機種では数十機種にのぼる。

読取装置は、直接汎用コンピュータに伝送するだけでなく、電話回線を利用した伝送も行う。これにより、読取装置にモデムを接続することで、汎用コンピュータの設置できない様な人員の少ない事務所、営業所などでも利用できる。

### 3.4 読取装置ハード構成

読取装置のハード構成を図10に示す。CPUは2つ搭載されている。CPU1は、LCD・キーボード・プリンターの制御と、登録ターミナルとの通信、データの保存を行う。CPU2は汎用コンピュータへの伝送を行う。CPUを2つ搭載する

理由は、汎用コンピュータへデータを伝送しているときにでも乗務員が伝送とは無関係に読取装置の操作ができるようにするためである。ROMカードにはプログラムが書き込まれる。ROMカードにプログラムを書き込むのは、仕様の変更時にこのROMカードを交換すれば、読取装置や登録ターミナルのプログラムが簡単に変更できるようにするためである。RAMカードは登録ターミナルのデータ保存に使用する。このRAMカードも交換が可能であり、伝送系不良などのトラブルで伝送ができずにRAMカードが満杯になったときなどには、新たなカードと交換することで交換前のRAMカードのデータとは別に新しいデータが保存できる。これによりトラブルによる運用の障害を最小限にする。なお、トラブルが復旧した後、先ほどのRAMカードを再びセットすればデータは伝送できる。

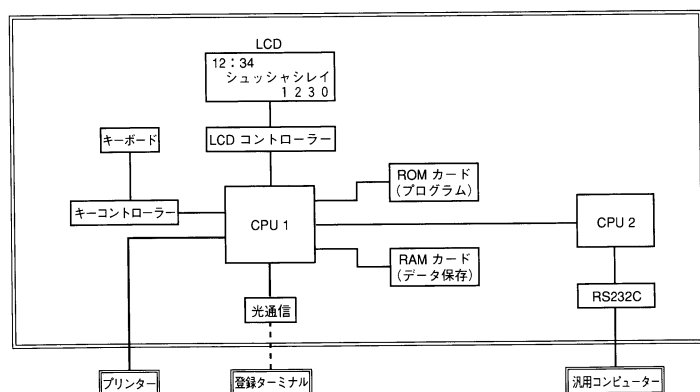


図10 HIT-500の読取装置のハード構成  
The HIT-500 main unit hardware configuration

#### 4. 利用の方法

ここでは、HIT-500の利用方法を運送会社における一日の作業の流れにそって述べる。(図11)

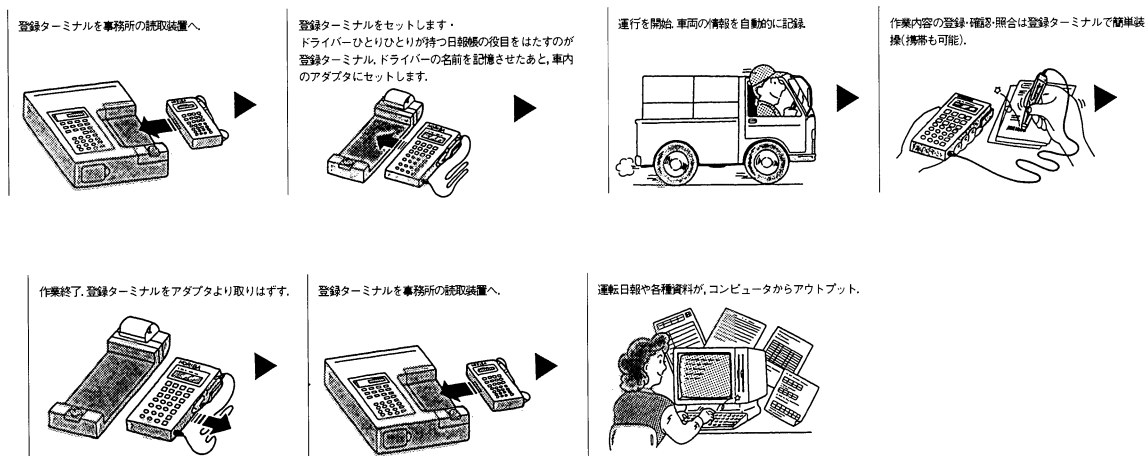


図11 HITを導入した運送業務の1日の流れ  
A typical day in a trucking organization using the HIT-500

### (1) 出社の記録

乗務員は朝、出社した時点で登録ターミナルを読取装置にセットし、読取装置の出社キーを押して出社の記録を行う。これにより読取装置からは誰がいつ出社したかがプリンターに印字されると同時に、登録ターミナルにもその時刻が記録される。

### (2) 運行開始と作業登録

出社を記録した後、乗務員は車両に乗り出庫する。この車両に乗り込んだ時点で登録ターミナルを車載アダプターにセットする。すると、登録ターミナルには自動的に何号車に何時に乗ったかが記録される。これとは別に、乗務員に対しては、本日の天気、一人運行か二人運行かなど車両に乗ったときに必ず記録する必要がある項目が液晶に表示されるのでこれに合わせて入力をする。もし、入力をせずに走行するとブザーと表示で入力が完了していないことをアラームを出して、乗務員に注意を促す。

積込などの作業が発生したときは、この時点でその作業に相当する作業キーを押す。すると次にその作業に付く必要なテンキー入力項目が順次表示されるので、表示に従い入力する。これらの入力をした後は何もする必要はなく、作業の終了は自動的に判断される。作業でバーコードによる入力が必要なときは、バーコードリーダーを利用して入力する。このとき、記録された時点が何時で、そこまでの距離が何キロメートルかを同時に自動で記録する。

速度、エンジン回転数、走行距離などは、自動的にセンサーボックスにて採取され、車載アダプター経由で登録ターミナルへ記録される。このとき、速度、エンジン回転数は瞬時値を記録するのではなく、規定値を越えた場合と走り終えたときのみ記録を行う。全てのデータを記録しないのは、記録容量が膨大になり、それに見合った活用ができないためである。

### (3) 下車とデータの読取(退社処理)

一日の作業が終了して車両から降りるときは、乗務員は単に登録ターミナルを車載アダプターから取り外すだけであり、それ以外、何も操作はしない。

退社するとき、登録ターミナルを読取装置にセットし、退社キーを押す。すると自動的に登録ターミナルのデータが読取装置に伝送される。その後、ドライバーチェックリストと運転日報を印字し、一日の作業の確認をして作業を終わる。その後、運行管理者とその日の出来事運転状況などを話し合い、その後帰社する。

### (4) コンピューターへのデータ伝送と処理

読取装置に保存されたデータは、通常、毎朝コンピューターに伝送される。この操作は、事務員が行う。ただし、この伝送中にも読取装置を使っての出社などの登録作業は可能である。事務員は、このデータを元に各種帳票を印字、または、データとして保存し、本社や支店へデータを伝送する。

## 5. 仕様変更

運行管理システムは、運送業界としてまだ歴史が浅いため、導入するユーザーも初めてのケースがほとんどである。このため、導入した後に仕様を変更したいとの要望が発生する場合が少なくない。そこで、HIT-500ではプログラムを

メモリーカード(ROMカード)に書き込み読取装置にセットして顧客へ納入する方式とした。登録ターミナル、読取装置の仕様変更は、読取装置のメモリーカードを交換し、読取装置のダウンロード機能(読取装置から登録ターミナルへプログラムを送送する機能)を使って読取装置にて顧客が簡単にすることができる。この方法では、登録ターミナルのプログラムを変更するだけで車載装置の仕様を変更できるので、車両まで行ってプログラムの交換作業をする必要はなく、事務所で行うために作業効率が良い。従来、仕様変更は、当社の技術者が現地へ出かけ、車両にて交換作業を行なわなければならなかった。ところが車両は、いつも入庫しているとは限らず、作業は夜間や休日がほとんどで作業効率が大変に悪く、費用も発生した。HIT-500は、使用者自身で変更ができるため、費用面、作業面などでも大変により結果が得られている。

## 6. まとめ

今後の展開構想図を図12に示す。センサボックスの持っている機能をフルに利用し、MCA無線への連動を行いデータをリアルタイムに処理、また、最近利用が盛んになってきたG.P.S(人工衛星による位置検知システム)を利用し、現在の位置を営業所などに知らせるシステムへの展開を実施中である。また、アナログ入力を利用し、保冷車などの温度管理や他のハンディターミナルと接続しデータのやりとりをすることもできる。以上のように、将来は単なる運行管理だけにとどまらず、車が一つのOA室となることを目指している。

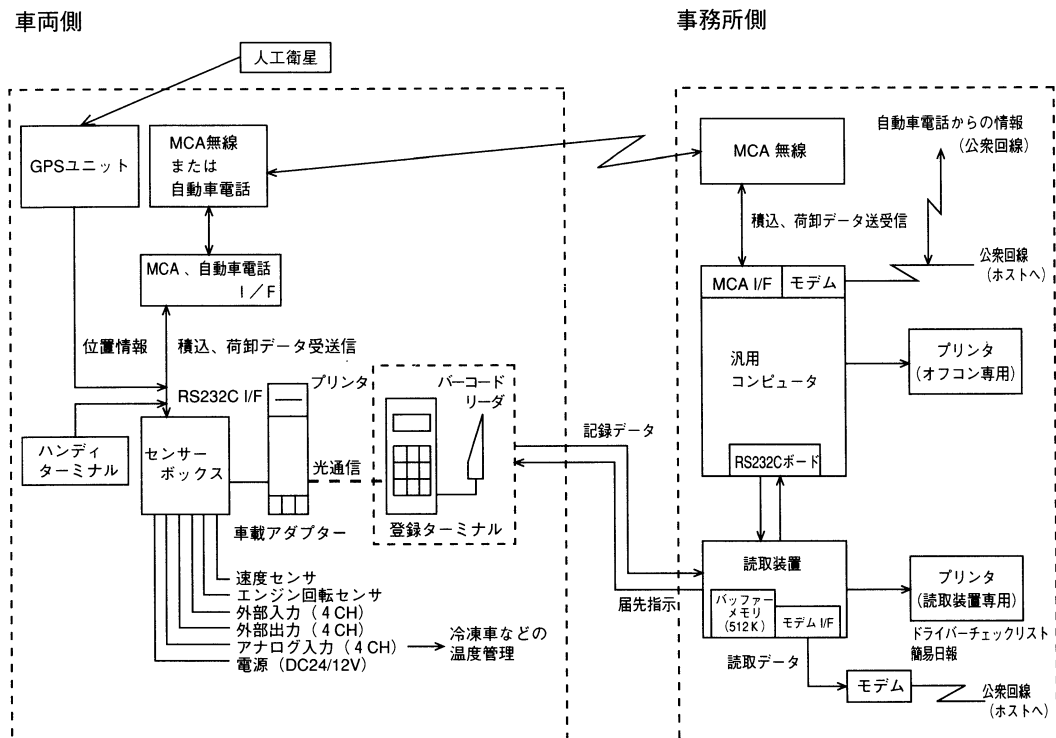
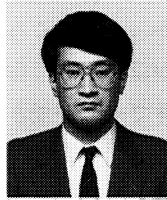


図12 運行管理システムの将来像  
Trucking management system of the future

運行管理計はまだ世の中に出て認識され始めたこれからの製品であり、HIT-500も2代目である。HIT-500は運行管理だけでなく物流管理をもできる装置として、乗務員が戸惑うことなく容易に受け入れられるようにした装置に作り上げた。今後は、さらに、使いやすい装置を目標とし、運行管理計のパイオニアとして業界をリードできる製品造りを目指したいと考えている。



中西保之

Yasuyuki Nakanishi

開発4部 主任

1959年1月15日生

関西大学

工学部電子工学科

## 「人の動き」センサー：フレネルアーデット

## The Fresnel-IRDET Human-Movement Sensor

操谷 俊之・高田 秀次

Toshiyuki Kuritani, Shuji Takada

---

**要 旨**

焦電形赤外線検出器を用いて「人の動き」感知用赤外モジュールIM-02(フレネルアーデット)を製品化した。IM-02は、集光レンズ・回路基板・ケースなど検出器を用いる上で最低限必要な部品を一つに集約したものであり、わずかの付加部品で簡単に「人の動き」センサーとして使用することができる。焦電形赤外線検出器は、最近ますますその用途を広げつつあるが、「人の動き」センサーのような赤外センサーシステムを正しく設計するためには、その光学系や電気回路についての知識が必要である。ここでは、IM-02を紹介すると共に、焦電形赤外線検出器についても解説した。

**Abstract**

Horiba has begun the manufacture of the Model IM-02 infrared module, which has a pyroelectric-type infrared detector for sensing human movement ; this model is distributed commercially under the name Fresnel-IRDET. The Model IM-02 design reduces the number of components to the absolute minimum and concentrates these into a single unit that holds the light-gathering lens, the circuit boards, the case, and the detector. This compact unit can then be used as a human-movement sensor with just the addition of a few auxiliary components. The pyroelectric infrared detector has recently come to be used in a wide range of applications. However, it is necessary to be familiar with the relevant optical systems and electronic circuitry use this type of detector in an infrared sensor system designed for the detection of the human body. This paper we introduce the Model IM-02 infrared module ; and in order understand the principles of its operation, we also look at the design and principles of the pyroelectric-type infrared detector.

---

**1. はじめに**

人の動きを感知するといえば、警備保障会社が使用する侵入者警報装置、工場や事業所における工作機械などの安全装置、自動ドアのセンサーなどを思い出させる。しかし最近では人の動きや人数を感知して、たとえば照明のコントロールや来客報知器、また室内エアコンやエアクリナーの風量をきめ細かく制御し、より快適な環境を創り出そうという試みがなされており、私たちの生

活に身近なものになりつつある。

人を感知する方法として、人が設定エリア内を動くことにより生じる赤外放射エネルギーの変化を検出する方法が簡便でかつ正確度も高く、この種のセンサーの主流になっている。人の体温のように、常温近くの物体から放射される赤外エネルギーは、その波長分布から見ると、ほぼ $10\mu\text{m}$ 付近でピークをもち、「人の動き」を感知するためには、この波長帯で感度を有することが必要である。

焦電形赤外線検出器は、当社の主力製品である非分散形赤外線分析装置の主要部品として長年の間研究開発が続けられてきたものであり、広い波長域にわたり平坦な分光感度を持ち、しかも素子を冷却する必要がなく常温で使用できるなど良好の特長がある。特定波長領域のみを透過するよう設計された赤外多層膜干渉フィルターと組み合わせることにより、自動車の排気ガス中の炭化水素 (Hydrocarbon : HC) や大気中の窒素酸化物 (Nitrogen Oxide :  $\text{NO}_x$ ) の濃度測定装置、ビルの空調管理用炭酸ガスや一酸化炭素ガス ( $\text{CO}_2/\text{CO}$ ) 濃度測定装置など、数多くの製品に搭載されており、これらの分析装置の小形化、高信頼化に役立っている。また波長が $10\mu\text{m}$  付近の光を効率良く透過する赤外干渉膜フィルターと組み合わせることにより、侵入者警報器や放射温度計など、より広範な応用分野においても、その用途にあわせて設計した検出器を開発している。

「人の動き」センサーや各種分析装置に組み込んで使用する場合、検出器そのものについての知識を持つことは言うまでもなく、集光系や電気回路についてもある程度の知識と理解が必要である。当社は、この検出器を導入する上での理解を深めるために、フレネルレンズ、回路基板など最低限必要な機能を1つのケースに集約した、「人の動き」感知用赤外モジュール IM-02 (フレネルアードット) を製品化した。

## 2. 焦電形赤外線検出器

赤外線検出器は、PbSe や HgCdTe など半導体材料を使用した量子形と、サーミスターやサーモパイルなどの熱形に分類される。量子形は高感度で高速応答である反面、感度の波長依存性と素子の冷却の必要性が避け難い欠点となっている。一方、熱形検出器は、感度の波長依存性がなく常温で使用できるなど使いやすさの面では優れているが、応答性や感度が不十分である。焦電形赤外線検出器は、熱形の中では応答性、感度とも優れており、ますます広い用途に使用されつつある。

### 2.1 動作原理

赤外線が焦電素子に吸収されると、表面付近にわずかな温度変化が生じる。赤外線の検出は、この温度変化により素子内部に自発分極の変化を生じて、電荷が素子表面に過渡的に誘起される現象(焦電効果)を利用している。誘起された電荷は、約 $10^{11}\Omega$ の負荷抵抗で受けて電圧信号にし、FET をソースフォロア接続することにより、インピーダンスを変換して出力される。

### 2.2 焦電材料

焦電材料は、素子の感度が高いことは言うまでもなく、素子間の特性のばらつきが小さく、耐環境性に優れ、かつ安価であることが要求される。チタン酸



ジルコン酸鉛(Lead Zirconate Titanate : PZT)セラミクスは、キュリー点も約320℃と高く、誘電率も高い( $\epsilon_r$ =約400)ため、周囲温度に対する安定性にも優れている。

### 2.3 構造

図1(A)は検出器の構造であり、図1(B)は内部回路である。

一对の素子を相補的に接続した形に電極パターンを形成しているため、周囲温度の急激な変化や振動・衝撃などの、両素子に同時に入る信号に対しては互いに逆向きに焦電流が発生し、それぞれを打ち消し合う。これにより、外乱に対し安定で信頼性を高めている。

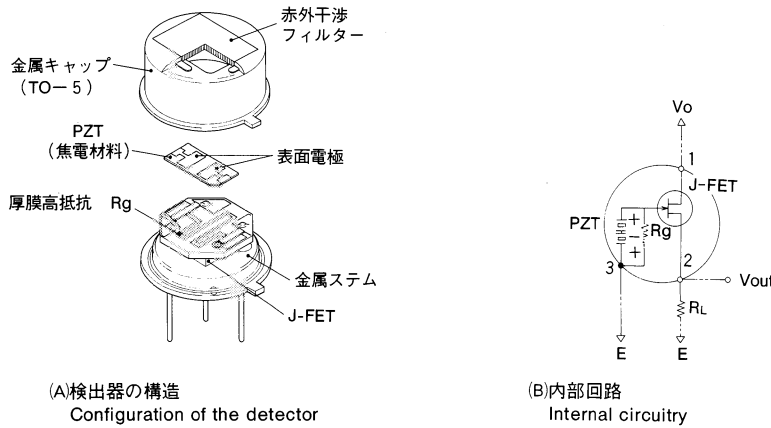


図1 焦電形赤外線検出器  
Pyroelectric-type infrared detector

### 2.4 分光感度特性

焦電素子は、入射する光の波長に関係なく平坦な分光感度特性を示す。「人の動き」センサーは、太陽光の影響を低減するために、波長6 $\mu\text{m}$ 以下を遮断し6~14 $\mu\text{m}$ のみを受光するように、赤外透過材料を多層蒸着した赤外多層膜干渉フィルター(6 $\mu\text{m}$ カットオンフィルター)と組み合わせて使用する。図2に分光透過特性を示す。

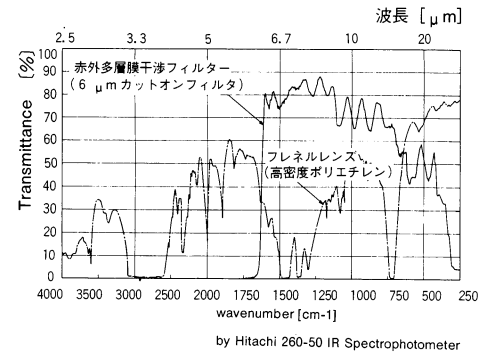


図2 検出器の窓材とフレネルレンズの分光透過特性  
The Spectral transmission of the filter and fresnel lens

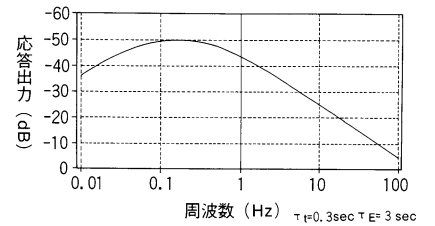


図3 焦電検出器の周波数応答例  
Example of frequency response of the pyroelectric-type infrared detector

### 2.5 周波数応答特性

周波数応答特性は、素子の材料特性や形状によって決まる熱時定数 $\tau_r$ と電気時定数 $\tau_e$ の値で定まる。「人の動き」センサーとして用いる場合には、低周波応答特性(~10Hz)に重点をおいてそれぞれの素子パラメータを設計しており、図3に特性を示す。図4に実際の人の移動によるIM-02の応答波形例を示す。デュアル素子構造の検出器であるため、応答波形も複雑である。また、人の移動速度が変わると応答波形や感度が変わっていくことがわかる。

## 3. フレネルアーデット IM-02

「人の動き」センサーに焦電形赤外線検出器を用いるためには、レンズや反射鏡などの集光素子や、出力を利用しやすい形に変換する電気回路を設計し、組み合わせることが必要である。これらを1つの樹脂ケースにコンパクトに収納し、モジュール化したものがフレネルアーデット IM-02である。

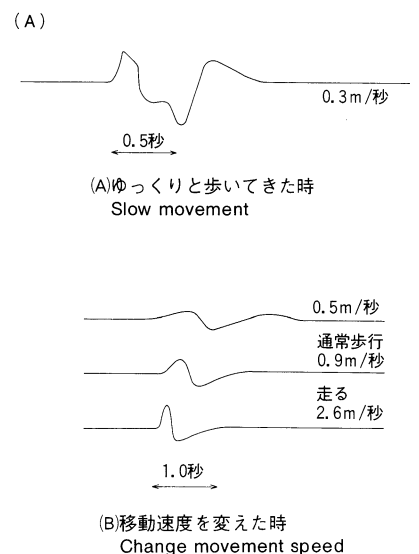


図4 人が感知エリアを横切った時の検出器の応答波形  
Response wave form of the detector when a person has crossed the detection area.

IM-02には次のような特長がある。

- 「人の動き」センサーに必要な機能をコンパクトにまとめた
- 出力は、オープンコレクタである
- タイマー回路を内蔵し、出力の保持時間を最大200秒まで調整できる
- 電源印加直後の不要出力を抑制する回路が内蔵されている
- ケース側面にパネル取付用リブを付加した
- 周囲の雑音に強い

図5にIM-02の外観を、表1にIM-02と焦電検出器の仕様を示す。



図5 フレネルアーデット IM-02  
External view of the Model IM-02

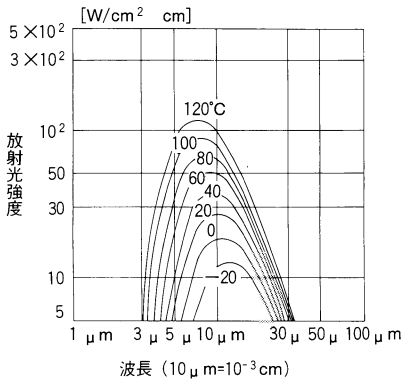


図6 黒体の分光放射強度  
Spectral radiation of the black body

	赤外モジュール		焦電検出器	
型名	フレネルアーデットIM-02	IP-220/-222	IP-240/-242	IP-260
素子材料	PZT	PZT	PZT	PZT
感度波長範囲	8~13µm	6~25µm 但し7~14µmにて 透過率、70%以上	6~25µm 但し7~14µmにて 透過率、70%以上	6~25µm 但し7~14µmにて 透過率、70%以上
感度 (500, 1)	検知距離から5m	(500, 0.5) 2,200V/W	(500, 0.5) 2,200V/W	(500, 0.5) 2,200V/W
比検出率 (D*) (500, 1, 1)	—	(500, 0.5, 0.3) 0.9×10³cmHz <sup>1/2</sup> /W	(500, 0.5, 0.3) 0.9×10³cmHz <sup>1/2</sup> /W	(500, 0.5, 0.3) 0.9×10³cmHz <sup>1/2</sup> /W
オフセット電圧	オープンコレクタ出力消費電流 10mA以下	V <sub>D</sub> =5V, R <sub>S</sub> =10kΩにて 0.7V以下	V <sub>D</sub> =5V, R <sub>S</sub> =10kΩにて 0.7V以下	V <sub>D</sub> =5V, R <sub>S</sub> =10kΩにて 0.7V以下
電源電圧	4.5~7V	3~10V	3~10V	3~10V
動作温度範囲	0~50°C	-20~60°C	-20~60°C	-20~60°C
応答時間	—	300ms	300ms	300ms
受光面積	2×1mm 2素子	2×1mm 2素子	2×1mm 2素子	台所(1.8mm²) 2素子
視野角度	水平	80°	45°2方向	47°2方向
	垂直	32°	45°2方向	47°2方向
備考	フレネルセンサーモジュール 小型プラスチックケース収納 57(W)×(D)×28(H) オープンコレクタホルド 設定時間可変 2~200s	高受光面タイプ(H=5.1mm) IP-220;標準品 IP-222;可視光対策品	仮受光面タイプ(H=3.5mm) IP-240;標準品 IP-242;可視光対策品	指向性を改善 検知死角を排除 可視光対策可能

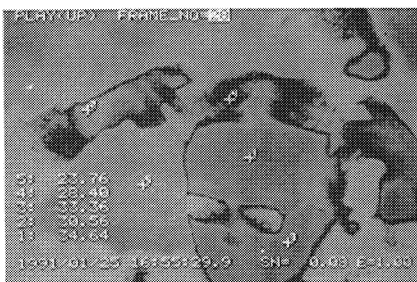
表1 IM-02の仕様  
Specifications of the Model IM-02

### 3.1 測定原理

赤外線は目に見えないのでなじみがうすいが、自然界の物体は全てその温度に応じた赤外光を放射している(図6)。

人の表面温度は、その着衣や周囲温度によって異なるが、一般的には20~35°C程度であり、ほぼ波長10µm付近に放射のピークを持っている。図7は人の各部の表面温度分布の一例を示している。

まず、人体を「幅が20~50cm程度で、0.1~10m/secの速度で移動する20~35°Cの熱源」とモデル化する。反射鏡やレンズと組み合わせて、設定したエリア内にこのような熱源が移動してきた時に生じる受光量変化を、検出器で捉えられることにより、人の存在として感知する方法である。



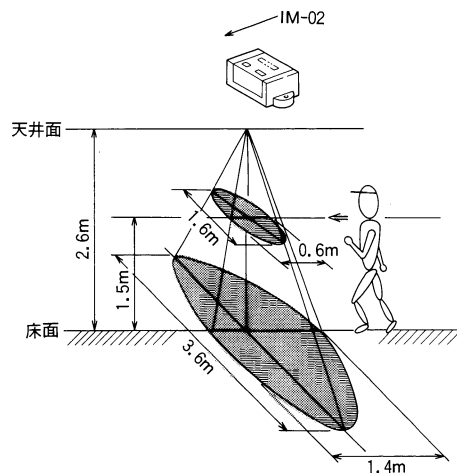
	身体部位	表面温度
1	額	34.6°C
2	腕	30.6°C
3	頬	33.4°C
4	頭髮	28.4°C
5	背景	23.8°C

図7 人の表面温度測定例  
Sample measurement of the surface temperature of a human being

### 3.2 集光系

人体から放射されるわずかの赤外線を効率良く検出器の受光面に集めるためには、レンズなどの集光素子が必要である。IM-02では、広い角度で効率良く感知するため、複数のレンズチップを組み合わせ、13面のマルチフレネルレンズを使用し、26の感知エリアを放射状に配置している。レンズの材質は、この波長域で比較的良好な透過率を示す高密度ポリエチレンである。

図8はフレネルレンズの設計仕様である。



- (1) レンズ面数……………13面
- (2) 焦点距離……………20mm
- (3) レンズ材質……………高密度ポリエチレン
- (4) レンズ厚み……………0.7mm
- (5) 外形寸法……………44×24.8mm
- (6) 加工方法……………射出成形金型による

図 8 フレネルレンズの設計仕様  
Design specification of the Fresnel lens

### 3.3 電気回路

図 9 は回路構成である。

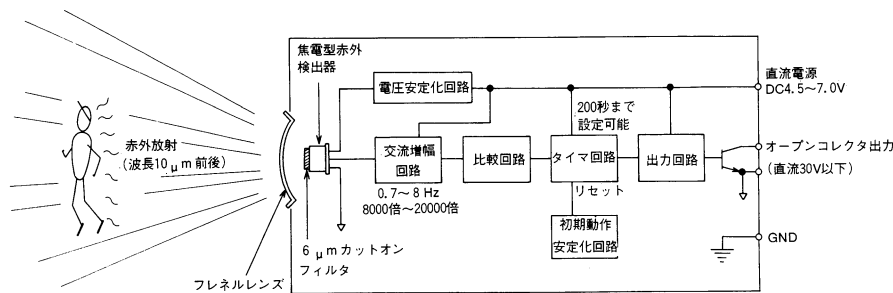


図 9 IM-02の回路構成  
Circuitry configuration of the IM-02

#### (1) 増幅回路

人が移動することにより発生する検出器の受光量変化は、数  $\mu\text{W}$  と小さいため高い増幅率が必要である。IM-02では8,000～20,000倍に設定している。人の動く速度は0.1～10m/秒程度であるが、個々の用途に応じて異なってくる。これを周波数に置き換えると、IM-02では約0.3～5 Hz 程度になる。センサーの応答特性は、検出器の応答周波数特性と増幅帯域の重ね合わせとなる。IM-02に使用している検出器の応答周波数特性は0.05～0.8Hzであるので、増幅回路に必要とされる帯域は約0.7～8 Hz となる。

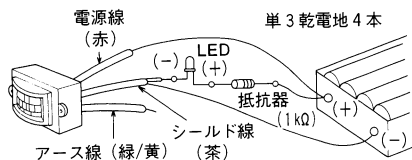
#### (2) タイマー回路

自動照明などに用いる場合は一定時間出力を保持することが必要であり、IM-02には出力の保持時間を最大200秒まで調整できるタイマー回路を内蔵している。

#### (3) ウォームアップ回路

受光素子の抵抗値が非常に高い ( $10^{11} \sim 10^{12} \Omega$ ) ため、電源を印加した後検出器各部分が安定するまで約10～20秒間を必要とする。IM-02では、電源印加後約30秒間出力を抑制する回路を付加し、不要な出力の発生を抑えている。

LEDを点灯させる場合



チャイムなどをならす場合

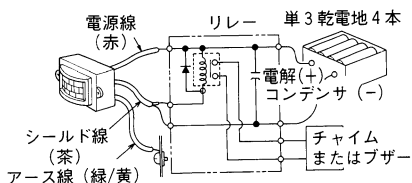


図10 LEDやチャイムを作動させるための回路構成例  
Circuit configuration examples to operate LED & Chime

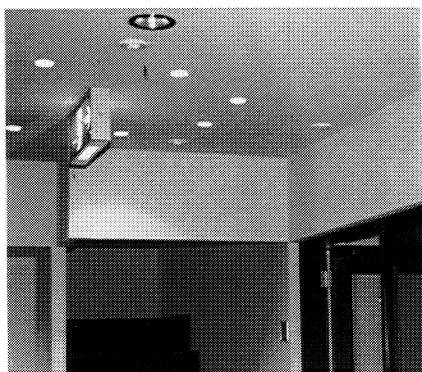


図11 照明コントロールシステムへの応用例  
(天井取付用にセットアップした例)  
Using the Model IM-02 in a lighting-control system  
(Example here shows the unit mounted in the ceiling)

#### (4) 電源ノイズ

検出器の出力は微小信号であるため、電源に含まれるノイズが重畳され易く、不要な出力を出したり動作不良を起こす原因になることがある。IM-02では、定電圧ICを内蔵することにより影響を取り除いている。

### 4. IM-02の応用例

図10は、IM-02を用いてLEDを点灯したり、チャイムなどを鳴らせる回路の例である。このように、抵抗やリレーなどわずかの付加部品で、「人の動き」センサーとして使うことができる。

IM-02の最も身近な応用例の一つに自動照明がある。図11は、滋賀県朽木村に建設した当社の研修施設(愛称：FUN HOUSE)に設置された自動照明システムである。電力制御回路を付加することにより、人が来ると、ホール中央の装飾照明設備(ハロゲンランプ8灯、480W)や洗面所の照明を一定時間点灯させる機能をもっている。また、これと同様のシステムを大規模にしたものが、国会図書館新館の地下書庫の自動照明にも使用されている。センサーを通路ごとに設置することにより、閲覧要求のあった書籍を係員が取りに行く際に、人が居る書棚エリアのみを一定時間自動的に照明するシステムである。このような比較的人の出入りの少ない場所に設置した場合、いちいちスイッチを入れたり切ったりするわずらわしさがなく便利である。

その他、エアコンや空気清浄器などに組み込んで、人の数や活動量に合わせてよりきめ細かくコントロールし、心地よい快適な空間を提供するためのセンサーとして用いられつつある。

### 5. 検出器の新しい試み

使用される分野が拡大するにつれて、検出器への要求もますます多様化している。これらは直接、信頼性の向上や機能付加など、検出器の使用可能な範囲の拡大に結びつくことが多く、以下に最近の2,3の例を紹介する。

#### (1) 可視光による影響の低減

従来は、屋内使用に限定されていたが、最近では、来客報知器や車庫の自動照明など、半ば屋外での使用が要求されるようになっている。太陽光や自動車の前照灯などの強力な光が検出器に直接入射する場合、検出器の窓材や接着剤のモールド部分で一部吸収されることにより生じる2次輻射により、不要な出力を生じることがある。当社は、金やクロムなどの金属をその部分にコートすることにより反射率を高め、可視光による影響を低減した(図12)。

#### (2) 死角の無い検出器

従来のデュアル素子形状の検出器では、人が横切る方向により、感度を有しない方向、即ち死角が存在する(図13(A))。天井に取付けてスポットエリアセンサーとして用いる場合には、どの方向から視野を横切っても感度を有することが求められ、当社は図13(B)に示す素子形状の検出器(IP-260)を開発した。従来感度がほとんど得られなかった方向(90°, 270°)においても、感度が得られることがわかる。感度の方向依存性をさらに改善するためには、図13(C)のような素子形状を持つ検出器が有利である。この検出器は、本質的にどの方向

から横切っても均一な感度が得られるため、特に有用である。

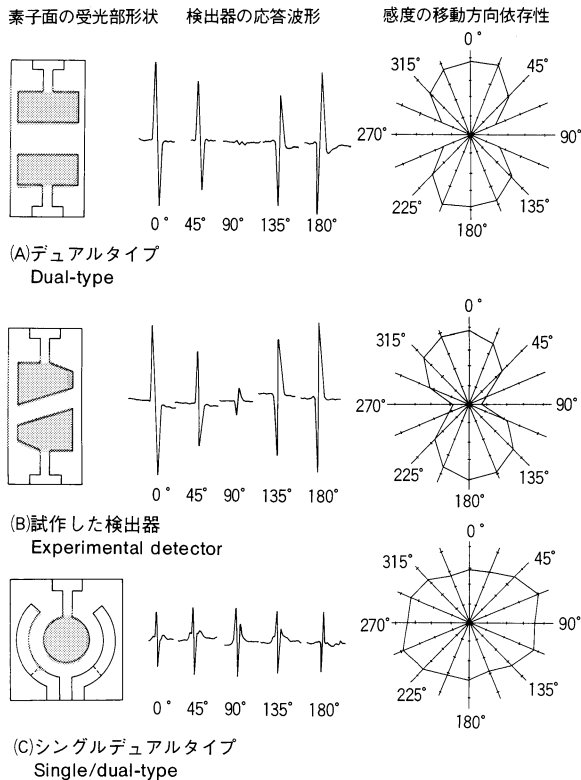


図13 素子形状と感度の方向依存性  
Directional dependency of sensitivity and the element pattern

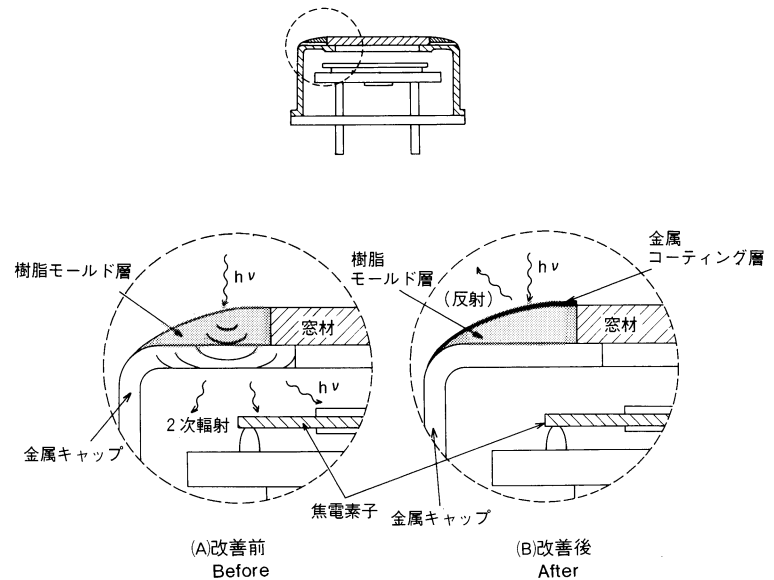


図12 強力な可視光による影響の低減  
Reducing the effects of strong visual light

## 6. 今後の課題

焦電形赤外線検出器の研究開発は2分化する傾向にある。一つは、検出器の基本特性を改善して新たな用途を拡大することである。素子の薄膜化は、より高感度・低雑音・高速応答など特性改善の有効な手段である。もう一つの傾向は、低価格化・複合化による使いやすさの追求である。当社で最も力を注いでいる課題である。

一方、人にとって居心地の良い環境や使い心地の良い機械を実現するために、焦電形赤外線検出器を使った応用製品が開発されている。これらの機器をより有効に使うためには、検出器だけではなく、光学系や増幅器など周辺技術との適合性の研究開発がますます重要となる。

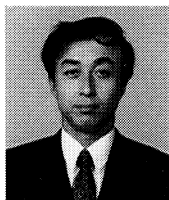
## 7. まとめ

以上、焦電形赤外線検出器と、それをういた赤外モジュールフレネルアーデットIM-02を紹介した。

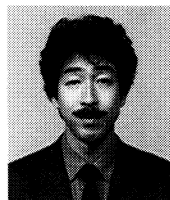
焦電形赤外線検出器は、高感度で室温で使用することができ、かつ量産性に富み低価格であることから、今後ますますその需要が拡大していくものと思われる。また、フレネルアーデットなどの赤外モジュールが、今後さまざまな分野で活用され、赤外センサーシステムのいっそうの普及・拡大に役立っていくことを願ってやまない。

## 参考文献

- 1) 焦電形赤外線センサ通則(EIAJ,EDX-8131)1990年3月制定.
- 2) 焦電形赤外線センサ試験方法(EIAJ,EDX-8132)1990年3月制定.
- 3) トリケップス技術資料“赤外線センサー”第24号.
- 4) “データ・シート・焦電形赤外線センサ”センサ技術 VOL.11,NO.9,P98(1991).



操谷俊之  
Toshiyuki Kuritani  
開発4部 主任  
1953年2月21日生  
大阪大学大学院  
基礎工学研究科



高田秀次  
Shuji Takada  
開発4部 主任  
1956年8月14日生  
京都府立田辺高等学校  
機械工学科

# 研究開発用多目的クリーンルーム

## Horiba's Multi-purpose Clean Room for R&D

大槻 久仁夫  
Kunio Otsuki

### 要 旨

1991年8月に、研究開発棟<sup>1)</sup>(通称アクティブゾーン21)の第二期工事分である東棟部が竣工し、同棟五階フロアに開発専用のクリーンルームが完成した。

このクリーンルームの特長は、半導体デバイスの製造工程を基本としたマイクロセンサーの開発、各種半導体検査装置の開発、赤外線センサーの開発など、種々の分野での利用を考慮して設計され、フレキシビリティに富んだ構造となっている。クリーンルームは大きく3室に区画され、クリーンルーム1はクラス100,000、クリーンルーム2はクラス10,000、クリーンルーム3はクラス1,000の清浄度となっている。さらに、クリーンルーム3には温度と湿度をコントロールできるフィルター付きのサーマルチャンバーが設置されており、内部はクラス100の清浄度を保てる構成になっている。今後の新製品の開発や、種々の分野の基礎研究に十分に活用できる環境が整った。

### Abstract

In August 1991, the second stage of construction on Horiba's "Active Zone 21" research center was completed. On the fifth floor of the east wing we have established a clean room especially for developmental activities. The main advantages of this new clean room is that it provides for development of a range of specialized equipment, including (1) the micro-sensors, which is essential in the manufacturing process of semiconductor devices, (2) various types of semiconductor inspection devices, and (3) infrared sensors. Our overriding aim in designing the new clean room facility was flexibility, to allow it to be used for multi-purpose research-and-development activities. The new facility is divided into three clean-room areas, with cleanliness ratings as follows: Clean Room 1, class 100,000; Clean Room 2, class 10,000; and Clean Room 3, class 1,000. In addition, Clean Room 3 contains a filter-equipped thermal chamber that permits control of both temperature and humidity. The interior of the thermal chamber is maintained at a cleanliness rating of class 100. We expect that this new facility will be the center of future Horiba activity in the development of new products and in fundamental research in a wide range of fields. This paper gives an overview of the new Horiba multi purpose clean room facility.

### 1. はじめに

クリーンルームは半導体業界、食品業界、精密機械業界、電気部品業界、医療薬品業界等種々の分野で広く使用されている。分野ごとにそれぞれ特色のあるクリーンルームがつけられているが、一般的にクリーンルームを設置する目的は次の二通りに分けることができる。

- ①生産環境を清浄化することによって製品の品質を高め、歩留まりを向上させること。
- ②微生物による汚染を制御し、微生物による感染や、品質の低下を防ぐこと。

クリーンルームの清浄の度合いはクラスという単位で表現される。たとえば、クラス100とは0.5 $\mu$ m以上の異物の存在が1立方フィート中に100個以内であることを示している。最近では半導体工場における微粒子の管理が最も厳しい製造ラインでクラス10程度が要求されつつある。当社では、従来から赤外線分析計に使用するコンデンサーマイクロホン型検出器の組立、X線分析計に使用するシリコン半導体X線検出器<sup>2)</sup>の組立、焦電形赤外線検出器やマイクロセンサーなどの開発用としてクリーンルームを使用してきた。

ますます軽薄短小化が進む中、より信頼性のある製品を開発しなければならない状況にあって異物、温度、湿度等を厳密に制御できる開発環境の整備が望まれている。

今回完成したクリーンルームは、前述の項目①に示す目的を持つものとして、清浄度はクラス100,000から100までの範囲で、温度や湿度の制御はもちろん、サーマルチャンバーにおいてはより厳密な室温のコントロールができる構造になっている。

以下にクリーンルームの主な内容と機能を紹介する。



図1 クリーンルームの内部  
Interior of the clean room facility

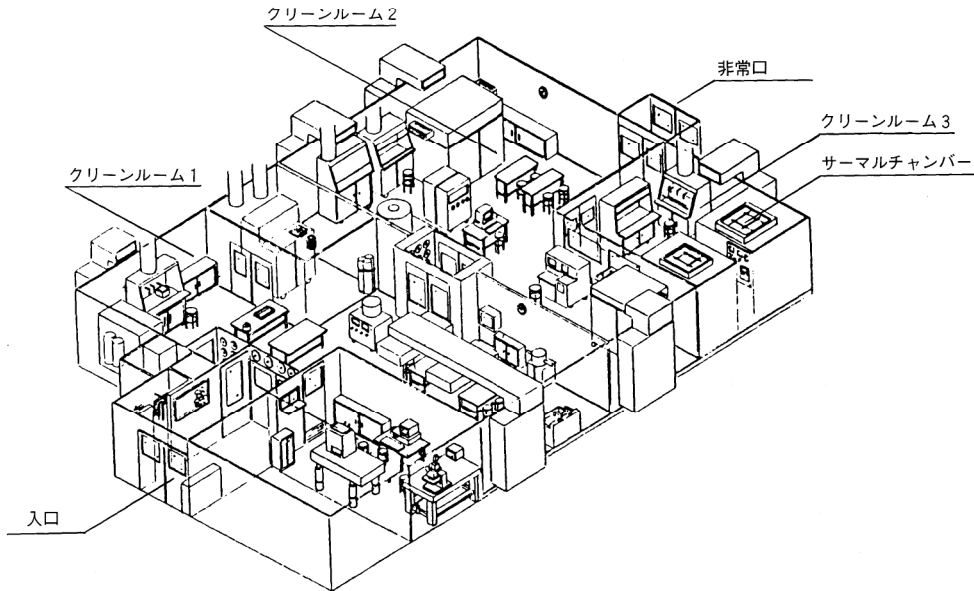


図2 クリーンルームの透視図  
Cutaway view of the facility

## 2. クリーンルームの概要

クリーンルームは、サーマルチャンバーも含めると、清浄度別に5区画に区別される。仕様を次に示す。

- |             |                |          |             |          |             |
|-------------|----------------|----------|-------------|----------|-------------|
| (1)クリーンルーム1 | 清浄度 クラス100,000 | 温度 25±3℃ | 湿度 60%RH 以下 | 負荷人員 10名 | 電力負荷 11.6KW |
| (2)クリーンルーム2 | 清浄度 クラス10,000  | 温度 25±3℃ | 湿度 50%RH 以下 | 負荷人員 20名 | 電力負荷 31.6KW |
| (3)クリーンルーム3 | 清浄度 クラス1,000   | 温度 25±3℃ | 湿度 50%RH 以下 | 負荷人員 5名  | 電力負荷 4.5KW  |

- |               |            |               |             |         |          |
|---------------|------------|---------------|-------------|---------|----------|
| (4)サーマルチャンバー1 | 清浄度 クラス100 | 温度 20~25±0.5℃ | 湿度 50%RH 以下 | 負荷人員 0名 | 電力負荷 1KW |
| (5)サーマルチャンバー2 | 清浄度 クラス100 | 温度 15~45±2℃   | 湿度 50%RH 以下 | 負荷人員 0名 | 電力負荷 1KW |

クリーンルームの床は、各種の配管や電源ケーブルがどこからでも引き出せるようフリーアクセス方式とし、クリーンルーム内の設備の増減や配置変更などに容易に対応できるようにした。また、ユーティリティとして超純水装置や真空源も設置し、半導体デバイスの開発・製作についても便利なように設計している。図1に本クリーンルームの内部を、図2に全体の透視図を示す。

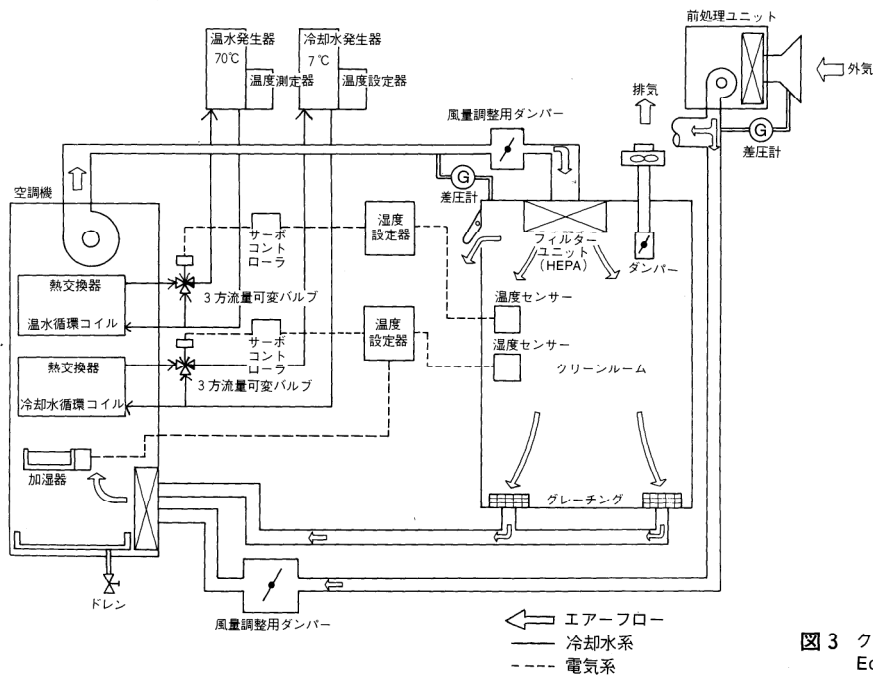


図3 クリーンルームの設備構成  
Equipment layout



### 3. 各設備の詳細

#### 3.1 全体の機能と構成

全体の構成を図3に示す、主な機能は次のようになっている。

##### (1) クリーンルーム

クリーンルーム内部にはHEPAフィルターで浄化したエア吹き出し口を設置し、温度、湿度コントロールのためのセンサーを取り付けた。

床のフリーアクセス部の一部にはグレーティングを配置し、クリーンエアの循環口をつくった。グレーティングの位置は、開発環境の変更より生じる気流の変化に合わせて、随時変更できる構造とした。天井にはHEPAフィルターの交換時期を監視するために圧力損失を測定する差圧計を取付け、室内を高い清浄度に維持できるようにした。またドラフトチャンバー等の排気口も各室に設置し、室内で発生した汚染ガスを直ぐに取り除ける構造になっている。ユーティリティはフリーアクセス方式の床に取り出し口を設け、市水、井水、超純水、圧縮空気、窒素の供給や、各装置の排気や排水の取り出し口、さらに真空源、AC100/200V(50/60Hz)をどこからでも利用できるように配慮した。

##### (2) 空調機

屋上にある温水生成器(ボイラー)と冷水生成器からの温水と冷水をクリーンルーム側壁の熱交換器まで引き込み、室内の循環エアと屋外から取り込んだ外気エアを同時に除湿、温調を行い、クリーンルーム室内を常に設定した温、湿度条件で自動調整できる機能を持たせた。供給される水の設定温度は温水系では70℃冷水系は7℃である。両者を継ぐ配管の途中にそれぞれ三方流量可変バルブを取り付け、クリーンルーム室内の温度、湿度センサーからの情報をフィードバックし、バルブを少しずつ開閉して、供給水の流量を加減する事によって室内の温度、湿度を調整している。

空調機の内部には、加湿器を設け、湿度センサーによって同様に湿度を自動調整させる事にした。

なお、空調機はクリーンルーム内での開発作業の変更などによる間仕切の改造に容易に対応できるように、各々の壁ごとに計6台設置し、それぞれを独立に制御できるように配慮した。(クリーンルーム1には2台、クリーンルーム2には3台、クリーンルーム3には1台設置した。)

##### (3) 外気取り入れ部

クリーンルームはドラフトチャンバーなどから外部へ排出するエアの量を考慮し、クリーンルーム内を正圧力に保つように外気を取り込む必要がある。外気取り入れ部はこのために設置される設備である。この部分には、清浄なエアを取り入れるために、前処理ユニットとしてHEPAフィルターが取り付けられている。フィルターを通過した外気はファン

によって各空調機を通りクリーンルームへ送られる。外部取入れ部と空調機との間には風量調節用のダンパーが取り付けられており、これによりクリーンルーム内の内圧を制御している。

HEPAフィルターへの大気の入り口側と出口側の間に差圧計を取付け、フィルターの交換時期モニターとした。

##### (4) 安全機能

クリーンルームの中に半導体製造プロセスの一つであるCVD専用室を設けた。ここではいくつかの危険なガス類を使うこともあり火災などの危険性を十分考慮しなければならない。このため、この室には特別に排気系をもうけ、常に減圧にし、さらに1台が故障した時の為に2台設置することにした。

また、CVD反応槽からの排気は、水で洗浄してから排気するシステムとなっているが、万一洩れた場合に、いち早く全員待避させるために、ガス漏れ検知器を取り付けている。

フリーアクセス方式の床部での水漏れは目視では発見が困難なため、水洩れ感知センサーを設ける予定である。

その他、クリーンルーム内の温度上昇や、空調器用の温水・冷水生成器の故障を知らせる警報器も設置を予定している。以上の警報音(社内放送も含め)は、クリーンルーム全室に聞こえるようになっている。

#### 3.2 主要性能の実測値

##### (1) クリーン度

最も清浄度の良いサーマルチャンバー内の測定データを例として図4に示す。測定点は床から高さ1mの場所である。

0.5 $\mu$ mの異物が10個以下となっており、クラス100を十分に満足している。

##### (2) 温度、湿度

図5にクリーンルーム3の測定データを示す。

温度は $\pm 0.5$ 度、湿度も相対湿度60%以下に制御できている。

```
DATE:1991 9-10 7:42
KC-03 AUTO 0.1CF
TOTAL SINGLE mm
1 0 0.3
1 1 1
0 0 2
0 0 5

DATE:1991 9-10 7:43
KC-03 AUTO 0.1CF
TOTAL SINGLE mm
0 0 0.3
0 0 1
0 0 2
0 0 5

DATE:1991 9-10 7:44
KC-03 AUTO 0.1CF
TOTAL SINGLE mm
0 0 0.3
0 0 1
0 0 2
0 0 5
```

図4 サーマルチャンバー内の清浄度  
Cleanliness rating inside thermal chamber

### (3)室内の圧力

図6に測定データを示す。

室内の圧力は常に外気圧よりも高く維持され、異物で汚染された外気がクリーンルーム内に進入する事を防いでいる。

## 4. まとめ

半導体業界を筆頭に、あらゆる製造業などでクリーンルームの需要はますます増加している。当社でもますます微量化、微細化する分析技術への要求に答えるべく、物を造る上で信頼性のある開発環境を整える事が重要となっている。

今回完成したクリーンルームは、このような要求に対して十分な環境を維持する事ができ、フレキシビリティのある開発環境を提供できるものである。

### 参考文献

- 1) 中村成男, “自動車計測試験用ラボ”, Readout, No.1, p.75-79 (1990).
- 2) 新井重俊, “超高純度シリコン X線検出器(ゼロフィー)”, Readout, No.2, p.49-56 (1991).



大槻久仁夫  
Kunio Ohtsuki

開発1部 係長  
1953年5月30日生  
立命館大学  
理工学部機械工学科

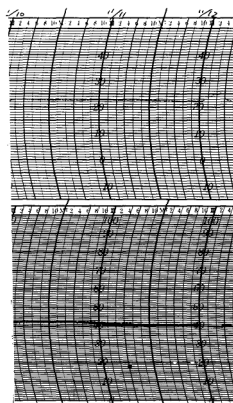
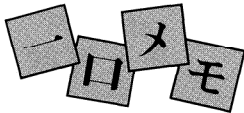


図5 クリーンルーム内部の温・湿度  
Temperature & humidity inside clean room facility

- OA 差圧(AHU 運転)12~12.5mmH<sub>2</sub>O
- R-3 0.8mmH<sub>2</sub>O(ドラフト ON)
- R-2 0.8mmH<sub>2</sub>O(ドラフト ON 4台)
- R-3 1.0mmH<sub>2</sub>O(ドラフト ON)

図6 クリーンルーム内の圧力  
Pressure inside clean room facility (1)



## Short Notes

# 自然/遠心沈降式粒度分布測定装置 CAPA シリーズの保守 —トラブル発生を予防する—

## Maintenance Procedure of the CAPA Series Particle-Size Distribution Analyzer

田中 輝夫  
Teruo Tanaka

最近の分析装置の多くは、装置にトラブルが発生した時には、その内容を知らせる自己診断機能を有しております。当社の自然/遠心沈降式粒度分布測定装置 CAPA シリーズは、トラブル発生時にはコード化されたエラーメッセージを表示すると同時に、装置の動作が停止するような機能を備えています。これにより安全面にも配慮されています。

しかしながら、自己診断機能だけではトラブルが発生したか否かの、いわば事後処理的な判断しかできません。分析装置を所定の精度で安定に稼働させるには、日頃から装置の状態を的確に捉えておくことが必要となります。本 CAPA シリーズはチェックプログラムを内蔵しており、この機能と各装置のマニュアルを併用することにより、装置の性能をフルに発揮することができます。

今回は、CAPA-700について、お客様から寄せられるサービスクールの中から、測定系の光量不足やモータの回転異常などのトラブル発生を予防するために、有効なチェック方法を紹介します。

### 1. エラー表示

分析装置の設置場所など環境条件によって異なりますが、装置を長期間にわたり無保守で使用すると、光学系が汚れて測定光量が不足したり、モータの回転異常が発生することがあります。これらの異常は、それぞれエラーコード番号 E21 (光量不足)、E42 & E43 (モータ異常) で表示されます。

### 2. チェックプログラムによる保守管理

CAPA-700には、測定系の光量とモータの回転状態を診断できるチェックプログラムが内蔵されています。

#### 2.1 チェックプログラムの操作方法

- ①電源がOFF、測定セルがセットされていないことを確認
- ②補助モードスイッチのH・Iを1側にセット(A～Gのスイッチ位置には無関係)
- ③電源をONし、プリンターヘッドが動作してから3秒以内に操作パネルのSTOPキーを3回以上連続して押す(CRT上にC-1 LED CHECKが表示されチェックモードになったことを確認)
- ④CONDキーをゆっくりと7回押し、CRT上にC-8 MOTOR CHECKを呼び出す(CONDキーを押すとC-1……C-8→C-1……C-8を繰り返す)

- ⑤STARTキーを押す(CRT上に図1のように表示)
- ⑥チェックするモータ回転速度をテンキーで指定した後、STARTを押す
- ⑦CRT上の各項目の数値を確認・記録
- ⑧STOPキーを押す(異なる回転速度のチェックは⑥～⑦を繰り返す)
- ⑨再度STOPキーを押し、電源OFF

#### 2.2 クリーンアップ実施の目安

装置のクリーンアップををするか否かはCRT上に表示された数値で判定します。判定の目安は次のようになります。

- ①光量不足：SIGNAL INTENSITY < 450
- ②モータ回転異常：ARRIVAL TIME < 定格時間 ± 3秒 または、ROTATIONAL SPEED < 設定回転数 ± 5%

(表1に設定回転数、定格時間を示す)

このようにCAPA-700は、内蔵のチェックプログラムを使って装置の異常が事前に察知できます。もし上記範囲を越えているようなら、クリーンアップを実施して下さい。(不明な場合は最寄りのサービスステーションにお問い合わせ下さい。) このように適当な保守管理はトラブルの事前回避に加え、常に信頼性の高い分析結果を得ることができます。なお、このチェック・保守作業は6カ月に1度程度が目安となります。

図1 CRT上の表示

設定回転数 (rpm)	定格時間 (秒)
300	0.32
500	0.53
700	0.74
1000	1.06
1500	1.81
2000	2.58
3000	4.61
5000	9.51
7000	15.72
10000	35.01

表1 設定回転数と定格時間



田中輝夫  
Teruo Tanaka  
サービス部 係長  
1948年10月12日生  
近畿大学理工学部化学科

## シャシダイナモメータの速度制御方法および装置

【特許番号】 特許第1566547号 【発明者】 野口進治

### 【分野・目的】

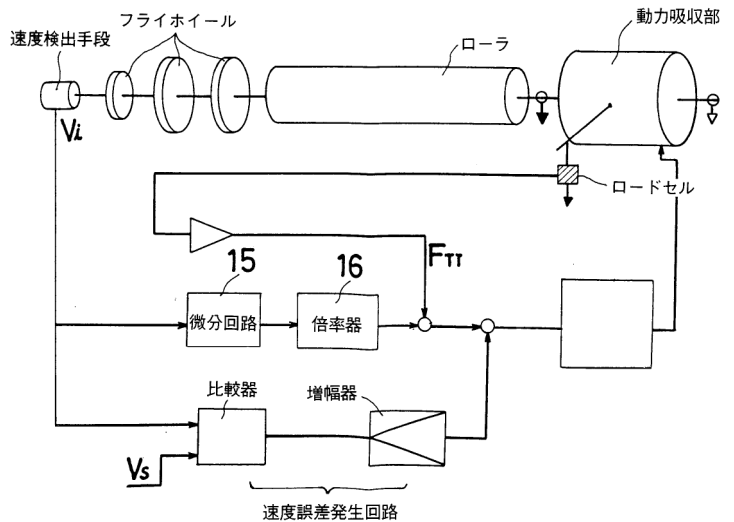
本発明は、車両の性能試験のため、室内でより正確な路上走行時の車両の特性を再現するためのシャシダイナモメータの速度制御方法および装置に関し、速度設定値を変更した場合のローラ速度の追従性を高めることを目的とする。

### 【概要】

動力吸収部の吸収トルクと、ローラの加速度とからローラ上の車両出力を計測し、また、設定速度とローラ速度とを比較して速度誤差を計測し、前記車両出力と速度誤差との和で動力制御回路を制御する。

### 【効果】

従来のローラ速度と設定速度との差で動力吸収部の吸収量を調整しローラ速度を制御する手法では、制御ゲインを上げると、系が発振することとなり、過渡特性が悪い。本発明では、速度誤差発生回路の比較ゲインを高くしないでも、車両出力の変化に対してダイナモ吸収力を速やかに追従させ、過渡特性を良好に保ち得る。従って設定速度を変更した場合でもローラ速度は速やかに追従し、しかも速度偏差もないという優れた効果が発揮される。





# 社外技術発表リスト

## ▶口頭発表

1991年5月～1991年10月

標 題	氏 名	発 表 機 関 (場 所)	時 期
Characteristics of Schottky Junctions on H <sub>2</sub> <sup>-</sup> and PH <sub>3</sub> Plasma Treated InP	1) T. Sugino 1) H. Yamamoto 1) T. Yamada 1) H. Ninomiya 1) Y. Sakamoto K. Matsuda 1) J. Shirafuji	3rd Int. Conf. InP & Related Materials Cardiff, UK	1991年4月8-10日
Schottky Junctions on Phosphidized GaAs Surface	1) T. Sugino 1) T. Yamada K. Matsuda 1) J. shirafuji	3rd Int.Conf.Formation Semicond. Interface Rome, ITA	1991年5月6-10日
顕微専用 FT-IR による微小領域・微小異物の分析	中田 靖	第5回中四国科学機器展 広島県産業会館	1991年5月17日
高純度銅中の水素・酸素分析における表面処理と保存方法の検討	内原 博 大石 誠 伴 弘一 辻 勝也 池田 昌彦	第52回分析化学討論会 帯広畜産大学	1991年5月19日
ICTS 法による MOS 解析	井内 穰	セミコン関西京都ワークショップ 京都パルスプラザ	1991年5月21日
顕微専用 FT-IR による微小有機異物の分析	中田 靖 森田 洋二	'91新素材展 幕張メッセ	1991年5月28日
X線元素分析の最新の動向と分析技術の紹介	中田 靖 森田 洋二	'91新素材展 幕張メッセ	1991年5月28日
水溶液中の核酸の電場配向 [3] -電気複屈折・電気二色性における高分子量 DNA の非カー法則的挙動-	2) 山岡 究 2) 福留 清博 松田耕一郎	高分子学会 京都国際会議場	1991年6月2日
HCl および HF 等液化特殊ガスの電気伝導度評価	3) 石原 良夫 3) 長谷川英晴 3) 野田 浩 4) 三木 正博 4) 前野又五郎 福嶋 良助	第12回ウルトラクリーンテクノロジーワークショップ 半導体基盤技術研究会 全電通ホール	1991年6月7日
Spray Characteristics of Pintle Type Injector under Low-Pressure Field	5) J. Senda 5) M. Yamaguchi 6) T. Wakashiro T. Tsukamoto 7) K. Hojyo 5) H. Fujimoto	ICLASS'91 Nat. Ins. Stand. Technol. Gaithersburg MD USA.	1991年7月15-18日
火花点火機関におけるノッキング現象の解明	5) 河合 英直 8) 服部 文昭 塚本 時弘 5) 千田 二郎 5) 藤本 元	第9回内燃機関合同シンポジウム 中央大学	1991年7月18-19日
Characteristics of Flash Boiling Spray under Low-Pressure Field	5) J. Senda 5) M. Yamaguchi 5) T. Nishikori T. Tsukamoto 5) H. Fujimoto	ICMF'91 筑波大学	1991年7月24-27日
FT-IR 高感度分析の最近の動向	池田 昌彦	酒研懇分析分科会 四日市文化会館	1991年7月26日
地球環境と環境用計測器	三笠 元	関西電力技術セミナー 関西電力姫路支店	1991年8月7日
Surface Enhanced Infrared Absorption Spectroscopy: Mechanism and Application to Trace Analysis	9) M. Osawa 9) K. Ataka M. Ikeda	IUPAC ICAS '91 幕張メッセ	1991年8月25日
低圧場に噴射された減圧沸騰噴霧の挙動	5) 千田 二郎 5) 錦織 環 塚本 時弘 5) 藤本 元	燃料協会第18回液体の微粒化に関する講演会 全ラ連会館	1991年8月28-29日
パイロハイドロリシスとイオン電極を用いたフローインジェクション分析法による超微量フッ素の測定	10) 板井 一好 10) 角田 文男 池田 昌彦	'91年分析機器と解析システムに関する東京討論会 幕張メッセ	1991年8月28日

標 題	氏 名	発 表 機 関 (場 所)	時 期
不活性ガス搬送融解法による高純度銅中の酸素・水素の分析	横山 政昭 内原 博 大石 誠 伴 弘一 辻 勝也 池田 昌彦	'91年分析機器と解析システムに関する東京討論会 幕張メッセ	1991年8月28日
高繰り返し(1 KHz)窒素-色素レーザーによる時間分解発光測定装置の開発	南 孝明 横山 一成 樽井 克泰 松田耕一郎	'91年分析機器と解析システムに関する東京討論会 幕張メッセ	1991年8月28日
FT-IR による分析技術と最新の応用例について	中田 靖	'91年分析機器展新技術説明会 幕張メッセ	1991年8月28日
0.04 μm の測定を実現したレーザー回折/散乱式粒度分布測定装置の最新の技術について	鈴木 哲也	'91年分析機器展新技術説明会 幕張プリンスホテル	1991年8月29日
高感度分析のための赤外スペクトルの測定法	池田 昌彦 内原 博 11)星野 忠夫 9)大澤 雅俊	日本化学会第62秋季年会 北海道大学	1991年9月25日
環境計測器の現状と今後の課題	三笠 元	堀場製作所本社講堂	1991年9月27日
新素材計測の現状と今後の課題	辻 勝也	堀場製作所本社講堂	1991年9月27日
ICTS 法を用いた AlGaAs: Te中の DX センターの圧力効果	12)芹沢 宏明 12)財部 健一 12)箕村 茂 松田耕一郎 13)加藤 弘 13)渡辺 泰堂	日本物理学会第46年会 北海道大学	1991年9月27-30日
FT-IR の基礎と化学分析への応用	池田 昌彦	西部試薬協会試薬技術講演会 大阪薬業クラブ	1991年10月9日
プラズマ処理された InP 表面付近の深い準位	1)二宮 英彰 1)杉野 隆 松田耕一郎 1)白藤 純嗣	第52回応用物理学会秋季学術講演会 岡山大学	1991年10月9-12日
ハンディ型赤外線放射温度計(IT-340)	大須賀直博	'91国際計測工業展 晴海展示場	1991年10月23日
超高感度ガスモニターと応用展開(GA-360E)	嘉田 教夫	'91国際計測工業展 晴海展示場	1991年10月24日
0.1 μm 以下の測定を実現したレーザー回折/散乱式粒度分布測定装置について	鈴木 哲也	第10回東北科学機器総合展新技術・新製品説明会 仙台卸商センター産業見本市会館	1991年10月24日
ハンディ多項目水質チェッカの U-10の測定技術	森 健	'91国際計測工業展 晴海見本市会場	1991年10月25日
放射温度計校正法の開発-広視野角に対応した黒体の製作-	14)藤原 哲雄 柳田 祥男 藤山 志伸 野村 俊行	計量研究所大阪計測システムセンター研究発表会 計量研究所大阪計測システムセンター	1991年11月6日

注 1)大阪大学 2)広島大学 3)日本酸素 4)橋本化成 5)同志社大学 6)ホンダ技研 7)大阪工業大学 8)トヨタ自動車 9)東北大学 10)岩手医科大学 11)慶応大学 12)岡山理科大学 13)関西学院大学 14)計量研究所

## ▶ 文書発表

1991年5月～1991年10月

標 題	氏 名	発 表 書 誌 名	
電頭関連 EMAX の応用(元素分析の紹介)	村瀬 潤	HITACHI SCIENTIFIC INSTRUMENT NEWS	34, 4, 13-16, 1991
高速応答排ガス測定装置による過渡運転時の排ガス特性	武田 賢二 青木 潤次	内燃機関	30, 6, 55-61, 1991
FTIR 方式自動車排ガス測定装置の開発	山岸 豊 足立 正之 井上 香	内燃機関	30, 6, 62-67, 1991
シャシダイナモメータ上の供試車両のタイヤ表面温度とタイヤロス	河端 保芳 野口 進治	内燃機関	30, 6, 68-72, 1991
シャシダイナモメータ上モード運転における運転性能評価方法の提案	野口 進治 河原林成行	内燃機関	30, 6, 73-75, 1991
ハンディ多項目水質チェッカ U-10	大川 浩美	計測技術	19, 7, 61-67, 1991
新素材中 C・S, O・N, H 分析の自動化動向	辻 勝也	金属	8月臨増, 108-112, 1991
HF 洗浄工程に使用されているフッ化水素酸モニタ	福嶋 良助 潮先 弘子	Surface Control & 洗浄設計	50, 夏号, 24-28, 1991

Readout No.2 特集●半導体をはかる

- 巻頭言 オリジナリティと多様化に挑む 大浦政弘
- 特別寄稿 先端技術における光 佐々木昭夫
- 総説 Global R & D 堀場 厚

- 特集論文 ICTS/DLTS法による半導体中不純物・欠陥評価 松田耕一郎  
時間分解フォトルミネッセンス法による半導体デバイスの評価 横山一成  
半導体製造プロセス用液体中微粒子計測装置(PLCAシリーズ) 鈴木理一郎

- 特別寄稿 アルカリハライド光物性今昔物語(その1)―混晶研究事始め― 中井祥夫

- 一般論文 超高純度シリコンX線検出器(ゼロフィー) 新井重俊  
ハンディ型赤外線放射温度計(IT-340) 野村俊行・大須賀直博  
ハンディ多項目水質チェッカ(U-10) 大川浩美・河野 訓・森 健  
炭素・硫黄分析装置の自動化ニーズに向けて 辻 勝也・平野彰弘

- ◇一口メモ 今、なぜ重量分析が? 伴 弘一

- 研究施設紹介 ソフトウェア開発部署を統合したネットワークシステム 下野善弘

- ◇特許メモ 液体中の微粒子計測装置 他1件

- ◇社外技術発表ダイジェスト

- ◇社外技術発表リスト(1990年5月~1990年10月)

- ◇バックナンバー掲載記事

Readout No.3 特集●血液をはかる

- 巻頭言 もの造り元年 堀場 厚
- 特別寄稿 血液分析にもとめられるもの 森本武利  
臨床検査現場における電解質分析の現状 関口光夫

- 特集論文 センサー開発と血液分析 青海 隆  
Na<sup>+</sup>・K<sup>+</sup>・Cl<sup>-</sup>3項目自動電解質分析装置(SERA-520) 植松宏彰・臼井誠次  
血算8項目自動血球計数装置(LC-360) 矢島 昇  
白血球分類機能付自動血球計数装置(ARGOS 5 DIFF) 奥 成博・臼井誠次  
グルコースセンサーの試作と血液分析への応用 河野 猛  
電極法による血液ガス分析装置の検討 西川勝己

- 特別寄稿 pHの概念を確立したセーレンセン教授 清水 栄  
アルカリハライド光物性今昔物語(その2)  
―混晶の発光スペクトル:STEは実はF-Hそのものだった!― 中井祥夫

- 一般論文 回転形干渉計の機構と制御 佐竹 司・境 行男・右近寿一郎  
大気中メタン・一酸化炭素濃度観測システム 青木 剛  
ヨウ化セシウムを使った放射線サーベイメーター(PA-100) 板谷紀雄・青山剛士

- 研究施設紹介 Horiba Crystal Product Division in Tempe ―HCP― Sully T. Hightower

- ◇一口メモ 顕微/FT-IRのためのピンポイントサンプル濃縮法による高感度分析 内原 博

- ◇特許メモ

- ◇社外技術発表ダイジェスト

- ◇社外技術発表リスト(1990年11月~1991年4月)

- ◇バックナンバー掲載記事

※バックナンバーに関しては当社Readout事務局(075)313-8121へお問い合わせ下さい。各論文の別刷りを用意しております。



## Readout 編集委員会

委員長：石田 耕三

副委員長：青海 隆

事務局：伊藤 省二

●お問い合わせ先

株式会社 堀場製作所 知的所有権部

電話 (075) 313-8121 Fax (075) 321-5648

---

# Readout

HORIBA Technical Reports

## No.4

1992年1月26日発行

編集・発行人 石田 耕三

発行所 株式会社 堀場製作所

〒601 京都市南区吉祥院宮の東町2番地

電話 (075) 313-8121

印刷・製本 河北印刷株式会社

〒601 京都市南区唐橋門脇町28 電話(075)691-5121

**HORIBA**

平成4年1月26日

殿

---

京都市南区吉祥院宮の東町2  
株式会社 堀場製作所  
**Readout** 編集・発行人  
常務取締役 石田 耕三

### Readout No.4 送付ご案内

拝啓 いよいよご清栄のこととお喜び申し上げます。

さて、弊社の技術情報誌「**Readout**/HORIBA Technical Reports」No.4が、お陰をもちまして、このほど発刊の運びとなりました。今号は、ますます微細化のすすむ新素材や半導体分野において欠かすことができない微粒子計測技術を中心とした、特集「粒子をはかる」と致しました。

ここに一部お届けいたしますとともに、日ごろ弊社にお寄せいただいておりますご芳情に対し、重ねて厚くお礼申し上げます。

なお、ご多忙中まことに恐縮ではございますが、誌面充実のため、皆様からのご意見をお知らせいただければ幸甚です。今後ともなにとぞよろしくご指導、ご鞭撻を賜りますようお願い申し上げます。

敬 具