

# クリーンルーム内の超微粒子評価のための基礎的研究

建設工学専攻(修士課程)  
建築環境工学研究

505062 まつだともお  
指導教員 松田知央  
西村直也

## 1. 背景と目的

クリーンルーム(以下 CR)は、現在、精密機械、医療、食品などさまざまな産業で使用されており、技術的進歩は続いている。特に高い清浄度が要求される施設である半導体・液晶用 CR では、急速な清浄化技術の進歩に、対応する規格や評価基準は追従する形が現状である。近年ようやく CR に関する国際規格 ISO14644 シリーズが一部を除き制定されたが、集積度や微細化は続き、現在では、ナノサイズの浮遊微粒子の制御が必要である。そのため規格、評価法の常なる進歩が要求されている。

現状の CR 空気清浄度評価法では、汚染対象粒径が 0.1 $\mu\text{m}$  未満となる場合、表示法として対応はしているが、評価法として確立されていない。これを受け本研究では 0.1 $\mu\text{m}$  未満の浮遊微小粒子である超微粒子の CR 空気清浄度評価法の確立をめざす基礎的な研究を目的とする。

研究手法として、まず粒径ごとの基準値を定める上で必要となる CR 内の粒度分布モデル式の考察を行う。そして、現在使用されている汎用的な測定器を用いての超微粒子評価法を提案し信頼性の評価を行う。また、測定器の計数誤差を考慮した評価方法を考察する。

## 2. CR 空気清浄度評価法

CR 空気清浄度評価法は ISO14644-1<sup>1)</sup> により規定され、清浄度クラスは CR に適用される浮遊微粒子による空気清浄度の等級である。その内、最も使用頻度の高い N 表示とよばれるものは、適用範囲は粒径 0.1 $\mu\text{m}$  以上から 5 $\mu\text{m}$  以下である。粒径 5 $\mu\text{m}$  を超える粗大粒子と 0.1 $\mu\text{m}$  未満の超微粒子については、それぞれ M 表示 (Macroparticles descriptors)、U 表示 (Ultrafine particle descriptors) による清浄度表示を使用することができる。N 表示域の評価法では清浄度によりクラス 1~9 で表され、対象とする範囲の粒径以上の累積上限個数濃度で評価する。清浄度クラスのそれぞれの対象粒径  $D$  の上限濃度  $C_n$  [個/ $\text{m}^3$ ] は、次の式で規定されている。

$$C_n = 10^N \times (0.1/D)^{2.08} \quad \text{eq.1}$$

$N$ : クラス数  $D$ : 測定粒径 [ $\mu\text{m}$ ]

これは、大気中の粒度分布であることで知られる Junge 分布や多くの実験値が基となって定められたものである。M 表示、U 表示による評価法は粒径に対する標準的な上限濃度が提示されておらず、当事者間の協議により粒子濃度と試験方法を決定する。そのため、明確な理論的根拠を持たないまま使用している例が散見される。Junge 分布の適応粒径範囲は 0.1 $\mu\text{m}$ ~20 $\mu\text{m}$  程度と言われているため、U 表示域にも適応できる粒度分布を考える必要があり、これを基に 0.1 $\mu\text{m}$  以下の超微粒子の評価法を考察していく。

## 3. 超微粒子評価法

### 3.1. 対数正規分布

浮遊微粒子の粒度分布については、いまだ適当な理論的根拠が見出されていないが、大気中や室内での多くの実験データにより定常状態に近づくにつれ対数正規分布に近似できると言われ適用性が認められている。CR での実測を分析した報告はあまりないが、浮遊微粒子の基礎的性質などから対数正規分布となると想定する。以下に対数正規分布の確率密度関数  $f_{\log}(x; \mu, \sigma)$ 、最頻値  $M_{\log}(X)$ 、標準偏差  $D_{\log}(X)$ 、を示す。

$$f_{\log}(x; \mu, \sigma) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma}} \exp\left(-\frac{(\log x - \mu)^2}{2\sigma^2}\right) \quad \text{eq.2}$$

$$M_{\log}(X) = \exp(\mu - \sigma^2) \quad \text{eq.3}$$

$$D_{\log}(X) = \sqrt{\exp(2\mu + 2\sigma^2) - \exp(2\mu - \sigma^2)} \quad \text{eq.4}$$

図 1 は、対数正規分布の確率密度関数の例を示したものである。図 2 は、粒度分布として Junge 分布を仮定した場合と対数正規分布を仮定した場合の上側累積個数濃度を算出した例である。Junge 分布では、0.1 $\mu\text{m}$  以上の個数濃度が 10 個/ $\text{m}^3$ 、対数正規分布においては、 $M(X)=70\text{nm}$  となる場合を算出しているが、特に、0.1 $\mu\text{m}(=100\text{nm})$  以下では、その値が大きく外れていくことがわかる。

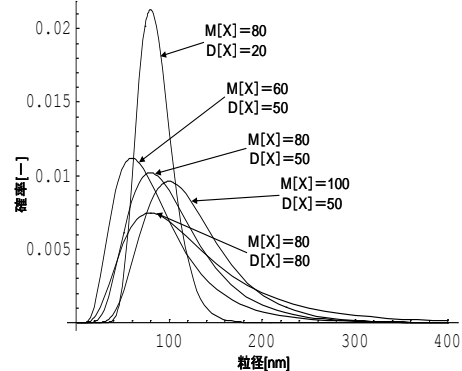


図 1 対数正規分布確率密度関数

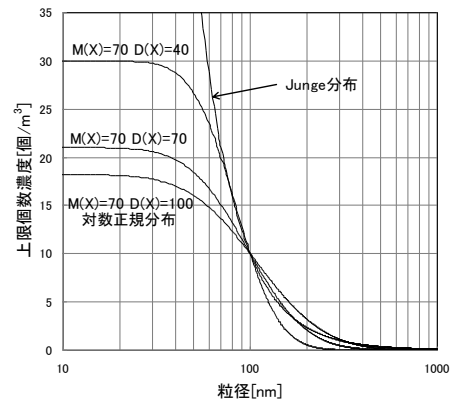


図 2 対数正規分布の累積分布関数と Junge 分布

## 3.2. 気中超微粒子計数器

評価法を実用化するためには、現行の測定器を考慮する必要がある。超微粒子の評価法で可能性のある 2 種類について特徴を示す。

### ・光散乱式自動粒子計数器 (LPC)

JIS B9921<sup>2)</sup> により規定され、現在 ISO での規格化が進んでいる。N 表示の清浄度クラスの評価法に用いられる計測器で最小可測粒径、約 0.1 $\mu\text{m}$ 、対象粒径以上の粒子を累積個数濃度で計数する。粒径は光散乱相当径である。大流量のもので 28.3 $\text{l}/\text{min}$  (1 $\text{cft}/\text{min}$ )がある。低濃度での計測が可能で、CR 内多点モニタリングにも使用される。高清浄度クラスの評価では、検出される粒子が少ないため、偽計数の影響が大きく十分考慮が必要である。

・凝縮核粒子計数器 (CPC)

LPC では計測出来ない 0.1 $\mu\text{m}$  未満の粒子を凝縮成長させ LPC と同じ光散乱法により計数する測定器。数 nm まで測定が可能であるが、凝縮により粒径の情報が失われるため、単体では粒径の測定が出来ない。通常は凝縮媒質にブタノールを使用することから、CR での使用は敬遠されることがあるため水を使用した WCPC もある。しかし濃度の少ない空間では無核凝縮が多く発生し、計数誤差が多いと言われている。測定流量は、多いもので 15 $\ell/\text{min}$  のものがある。

3.3. 超微粒子評価測定における上限濃度の設定

LPC、CPC とともに汎用性があり、CR 評価測定には敵しているが、超微粒子を対象とする粒径では、LPC は最小可測粒径 0.1 $\mu\text{m}$  であるため仮定した粒度分布により同清浄度での測定可能な粒径への変換が必要である。CPC では、粒径測定が出来ないため、最小可測粒径である約 10nm 以上すべての粒径の個数濃度が計数される。そのため、同様にして 10nm への変換が必要である。

例として、20nm 以上の粒子濃度が 1 個/cft 以下である空間を評価する場合において、仮定する粒度分布を  $M(X)=70, D(X)=70$  の対数正規分布とする。まず図 3 は清浄度クラスが直線となる Log-Log のグラフをとる。①のグラフは清浄度クラス 1 と同等の清浄度と見せる。1cft は 28.3 $\ell$  であるので 35.3 個/ $\text{m}^3$  となる。20nm で 35.3 個となる濃度分布を求めたものが②のグラフである。これにより LPC での測定可能範囲である。100nm(=0.1 $\mu\text{m}$ ) の粒子濃度が 16.9 個/ $\text{m}^3$  となり評価が行える。同様に CPC では、約 10nm 以上の全粒子が計測されるので②のグラフより 35.5 個/ $\text{m}^3$  となり評価が行える。また、20nm, 1 個/cft の評価は、100nm を基準に考えた場合、図 3 からクラス 1.2 と同等の清浄度である。同様にして 50nm 以上の粒子濃度が 10 個/cft 以下であることを評価する場合には、③のグラフで上限濃度を表すことができる。100nm では、19.2 個/ $\text{m}^3$  となり 10nm では、403 個/ $\text{m}^3$  となる。そして、クラス 2.2 と同等の清浄度である。

4. 逐次サンプリング法による評価

CR 空気清浄度における超微粒子評価を要求される施設では、より高い清浄度の CR であると考えられるため、評価方法は逐次サンプリング法が適している。上記で提案した上限濃度の設定法と合わせて判定することとなる。そこで、ISO14644-1 の逐次サンプリング法での評価信頼度と判定までの速度を検証する。逐次サンプリング法では、1 サンプリング流量は、平均して 1 個の粒子が期待される量であるので、1 サンプリング流量において平均 0.1~10 個のポアソン分布に従う粒子検出モデルとする。ポアソン分布に従うモデルは、乗算型剰余法により発生した区間 [0, 1) の一様乱数で粒子到達時間間隔の指数乱数をつくり、1 サンプリング時間に到達する一定時間粒子到達数のポアソン乱数に変換する。平均粒子濃度は、0.1~10 [個] を対数で 50 に区切り、51 のモデルについて、それぞれ 10,000 回ずつ試行する。図 4 は、適合、不適合の判定された割合を表した。図 5 は、平均濃度 11 モデルにおける判定に要したサンプリング回数の頻度を表した。図 4 から上限濃度より実際の濃度が 2 倍以上なれば不合格の判定は 95% をこえるが、1 倍から 2 倍の間では、不合格率が約 50%~98% 程度となった。例えば、実際の濃度が上限濃度の 1.1 倍であった場合 36% は合格の判定を下してしまう。95% の信頼を得るためには、上限濃度の約 70% の値で評価する必要があることがわかる。

5. まとめ

本研究では、これまでの実験や研究報告に基づき評価法の提案を行った。CR での超微粒子の実態把握はこれからの課題であり、信頼性と理論的根拠のある評価法の確立が急がれる。今後は実測や検証が必要である。

＜参考文献＞

- 1) ISO14644-1 Cleanrooms and associated controlled environments-Part1 Classification of air cleanliness: 国際標準化機構, 1999
- 2) 日本規格協会: JIS ハンドブック 45 クリーンルーム, 2003
- 3) 藤井修二他: クリーンルーム評価における逐次検定法の特長, 日本建築学会計画系論文集, 第 455 号 pp17-22, 1994
- 4) JACA No.40 - 2005, クリーンルームの性能試験方法指針, 日本空気清浄協会, 2005
- 5) 高橋幹二: エアロゾル学の基礎, 森北出版株式会社, 2003
- 6) ウィリアム C. ハイネズ著, 早川一也監訳; エアロゾルテクノロジー 一井上書院, 1985

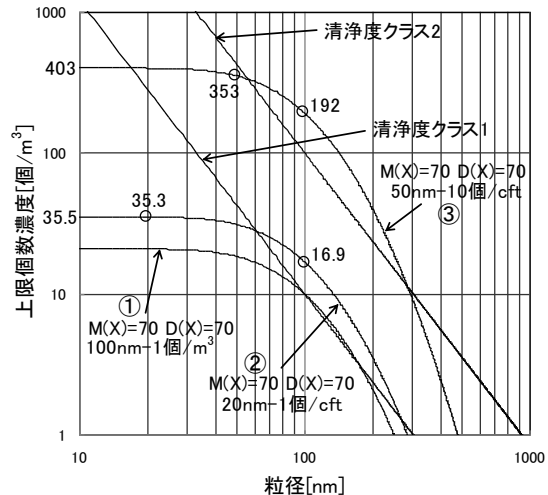


図 3 上限濃度の設定法

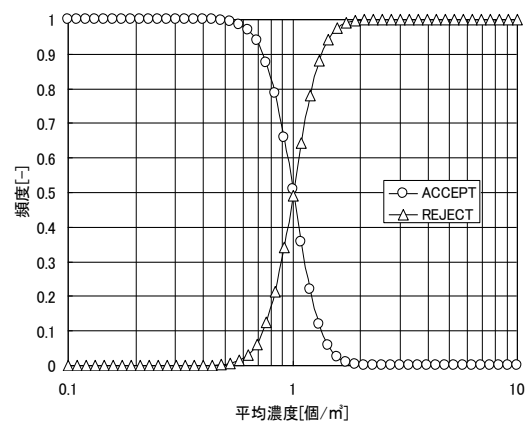


図 4 適合・不適合の判定頻度

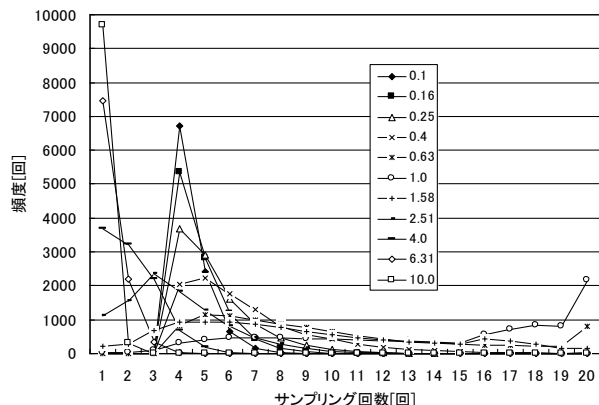


図 5 判定に要した回数の頻度