

エアロゾル粒子の質量を測る

榎原 研正^{1*}、Charles R. HAGWOOD²、Kevin J. COAKLEY²、福嶋 信彦³、
Kittichote WORACHOTEKAMJORN⁴、田島 奈穂子¹、桜井 博¹

エアロゾル粒子をその質量に応じて分級することができるエアロゾル粒子質量分析器 (APM) を開発した。APMは分級後の粒子を計数する装置と組み合わせることにより、粒子質量分布の測定の目的で使用することができる。APMの開発によって、質量分析器や天秤といった従来の質量測定技術がカバーしない質量範囲の一部を測定できるようになった。また、エアロゾル粒子の密度、空孔率、フラクタル次元、質量濃度などエアロゾル粒子の様々な特性を評価する新しい技術の開発が進んだ。この論文では、エアロゾル粒子の質量測定の意義、APMと他のエアロゾル粒子分級装置との原理の違い、APMの製品化までの道のり等について、構成学の観点から述べる。

キーワード: エアロゾル粒子、粒子質量、質量分布測定、エアロゾル粒子質量分析器

Measurement of mass of aerosol particles

Kensei EHARA^{1*}, Charles R. HAGWOOD², Kevin J. COAKLEY², Nobuhiko FUKUSHIMA³,
Kittichote WORACHOTEKAMJORN⁴, Naoko TAJIMA¹ and Hiromu SAKURAI¹

An aerosol particle mass analyzer (APM) which classifies aerosol particles according to their mass has been developed. Mass distributions of aerosol particles can be measured by the APM combined with a particle counting device. Particle mass that can be measured in this way ranges from 3×10^{-18} g to 2×10^{-12} g, which partially fills the mass range that is not covered by existing mass measuring instruments (e.g., mass spectrometers and conventional balances). The introduction of the APM has led to various new techniques for evaluating aerosol particle properties such as effective and true densities, porosities, fractal dimensions, and mass concentrations of suspended particulates. This article describes the principle of the APM and how it differs from other instruments for classifying aerosol particles. The article also describes the significance of measuring aerosol particle mass and the course of events that led to commercialization of the APM from the viewpoint of “synthesiology.”

Keywords: Aerosol particles, particle mass, mass distribution measurement, aerosol particle mass analyzer

1. はじめに

気体中に浮遊する固体または液体の粒子と媒体気体の二相系をエアロゾルという。エアロゾルは、気中粒子の健康・環境への影響、放射性物質の気中輸送、地球温暖化への関与、およびクリーンルームの管理などに関わりがあるため、広い分野で学際的関心が持たれている。また、負の側面ばかりでなく、エアロゾルによる新規材料創出など、有効活用の側面からの関心もある。

エアロゾルが関わるこのような効果や現象を評価・推定する目的で、エアロゾル粒子の様々な特性の測定が行われる^[1]。中でも粒径(粒子の直径)は、エアロゾルが関わる多くの現象に大きな影響を与えるため、重要な測定対象と

なっている。ただし、エアロゾル粒子は一般に非球形であるため、幾何学的粒径に代わる幾つかの有効粒径が測定対象となる。一方、粒子の質量は、粒子形状に依存しない粒子固有の特性であり、個々の粒子に含まれる物質の量を直接反映する指標として、また粒子の運動や外的効果に関与する物理量として、粒径に劣らない重要性をもつ特性と考えられる。しかし、エアロゾル粒子の質量を測定する技術はこれまで知られていなかった。この論文では、エアロゾル粒子の質量の測定^{脚注1}を初めて可能としたエアロゾル粒子質量分析器 (Aerosol Particle Mass Analyzer; 以下 APM) の開発について、構成学の観点から述べる。

1 産業技術総合研究所 〒305-8560 つくば市梅園 1-1-1、2 国立標準技術研究所 (米)、3 日本カノマックス (株) 〒565-0805 吹田市清水 2 番 1 号、4 プリンソブソンクラ大学 (タイ)

1. National Institute of Advanced Industrial Science and Technology 1-1-1 Umezono, Tsukuba, 305-8560, Japan * E-mail: ehara_k@meiji.ac.jp, 2. National Institute of Standards and Technology, USA, 3. Kanomax Japan Inc. 2-1 Shimizu, Suita, 565-0805, Japan, 4. Prince of Songkla University, Thailand

Original manuscript received June 19, 2019, Revisions received August 16, 2019, Accepted August 19, 2019

2 粒子質量測定の意味

ここではまず2.1節において、エアロゾル粒子の質量が様々な粒子特性の中でどのように位置づけられるかを説明する。これにもとづき2.2節では、粒子質量の測定技術の開発がエアロゾル測定の中でどのような意義があるかを述べる。2.3節では我々が粒子質量に着目した理由を述べる。

2.1 粒子質量と有効径

エアロゾル粒子の多様な形状の例を図1に示す。粒子質量は、どのような形状の粒子についても一意的に定義できる物理量である。しかし粒径はそうではない。非球形粒子に対しては、粒径に代わる幾つかの有効径、すなわち何らかの物理量に着目してそれが同じ大きさをもつ球形粒子に換算した直径が用いられる。代表的な有効径として、移動度等価径・空気力学径などの運動学的等価径、体積等価径・表面積等価径などの幾何学的等価径、および光散乱等価径などの光学的等価径がある^[1]。以下では、粒子質量と関わりの深い運動学的等価径について説明する。

移動度等価径 D_B は、一定の外力場中に置かれた気中粒子の終端速度（速度の漸近値）と外力の比として定義される力学的移動度 B の大きさ^{脚注2} が同じ球形粒子に換算した直径である。直径 D の球形粒子の力学的移動度は、 η を媒体気体の粘性係数、 $C(D)$ をすべり補正係数(Stokesの法則からのずれを表す係数)として、

$$B = C(D) / 3\pi\eta D \quad (1)$$

で与えられる。非球形粒子については、 B が既知のとき、上式を D について解いたものが移動度等価径 D_B である。 B や D_B は粒子の幾何学的広がりのみで決まり、質量や密度に依

存しない。なお、 B と粒子の電荷 q の積 $z = qB$ は電気移動度と呼ばれ、その測定技術(3.2節参照)が発達していることから、力学的移動度の代わりに測定されることが多い。以下では混乱のない範囲で、力学的移動度もしくは電気移動度を単に移動度ということがある。

空気力学径 D_A は運動学的等価径の一種で、重力や慣性力のように粒子質量 m に比例する力の中で粒子が運動するとき、それと同じ終端速度を有する密度 1 g/cm^3 の球形粒子(すなわち丸い水滴)に換算した直径である。重力 mg (g は重力加速度)のもとでの終端速度 v_T は、 $v_T = Bmg$ と書ける。直径 D の丸い水滴について $m = \rho_0 \pi D^3 / 6$ (ただし $\rho_0 = 1 \text{ g/cm}^3$) であることを使うと、 v_T の表式中の g にかかる係数は

$$mB = C(D) D^2 \rho_0 / 18\eta \quad (2)$$

と書ける。従って重力場中(もしくは既知の大きさの加速度場中)での終端速度 v_T の測定から mB 積の大きさが求まったとき、上式を D について解いたものが空気力学径 D_A である。 D_A が同じ大きさの粒子は、粒子の形状にかかわらず、同じ加速度場中で同じ終端速度をもつ。これが D_A を知りたい理由の一つである。

式(1)、(2)から、 m 、 D_B 、 D_A の3つの量のうち2つがわかれば残りは決まることがわかる。例えば m が既知であれば、 D_B から D_A を、逆に D_A から D_B を知ることができる。また一般に、質量 m と他の何らかの粒子特性を同時に測定することにより、粒子の様々な特性評価が可能であることがわかってきている(4章参照)。

2.2 エアロゾルの外的効果

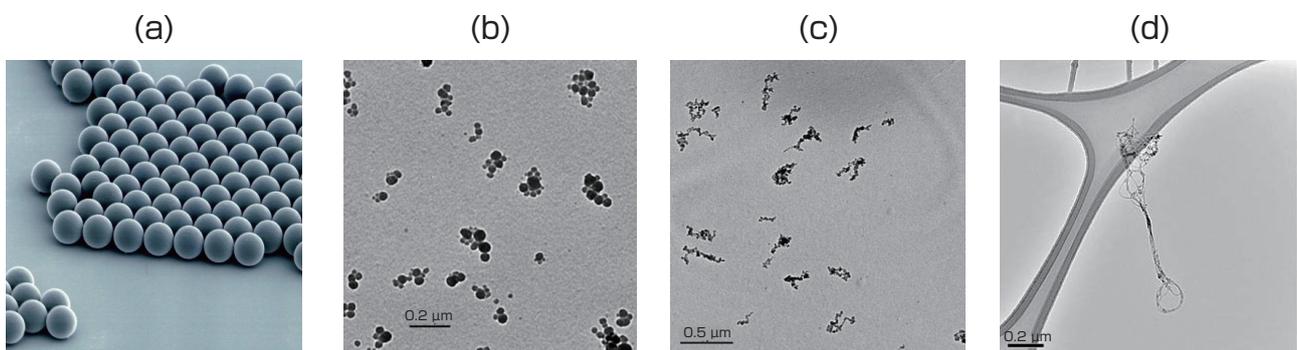


図1 様々な粒子形状の例: (a) ポリスチレンラテックス粒子、(b) Al_2O_3 粒子、(c) ディーゼル排気粒子、(d) 単層カーボンナノチューブ。写真(a)はJSR(株)の提供による。写真(b)、(c)は参考文献[2]、(d)は参考文献[3]から許可を得て再掲。

脚注1: 厳密には、質量分布の測定というべきであるが、簡単のためこの論文では質量の測定と表現する。エアロゾル測定では、特定の一粒子でなく粒子群全体に関心があるため、ほとんどの場合に粒子特性の分布が測定対象となる。また、「粒子質量の測定」は、捕集した粒子全体の秤量ではなく、個々の粒子の質量分布測定を表している。

脚注2: B は一般にテンソルであるが、ここでは簡単のためスカラーとして扱う。

表 エアロゾル粒子の代表的な分級装置において利用される力と分級対象特性

力の種類	静電気力	拡散力	慣性力	遠心力	重力	流体抵抗	分級対象特性
関与量 分級装置	電荷 (q)	(注 1)	質量 (m)	質量 (m)	質量 (m)	移動度 (B)	
微分型電気移動度分析器	✓					✓	移動度等価径
拡散バッテリー		✓				✓	移動度等価径
インパクト			✓			✓	空気力学径
遠心分離型分級器 (注 2)				✓		✓	空気力学径
エルートリエータ					✓	✓	空気力学径

(注 1) 拡散力は粒子の個数濃度を n として $-kT(\nabla n)/n$ で表され (k はボルツマン定数、 T は熱力学温度)、個別粒子の物理量には依存しない。

(注 2) Stöber 型遠心分離器、Goetz スペクトロメータ、円柱型エアロゾルスペクトロメータ等。

先に述べた有害性・有用性を含むエアロゾルの様々な働きをここでは外的効果と呼ぶことにする。エアロゾルの外的効果を制御するためには、その効果の大きさを評価する必要がある。しかし外的効果を直接評価するのは一般に容易でなく、また有効でない場合が多い。例えば、ナノ粒子に懸念されている有害性の場合、ヒトの健康の悪化がその外的効果であるが、それを直接かつ正確に評価するのは困難であるだけでなく、予防の目的には役立たない。そこで、様々な粒子特性をあらかじめ測定しておき、これらと生体毒性の関係を明らかにする吸入暴露試験等が行われる。エアロゾルの外的効果の制御は、このようにして明らかになった粒子特性—外的効果の関係と粒子特性の測定結果にもとづいて行う必要がある。

一般に、エアロゾルの特定の外的効果がどのような粒子特性と強い関係を有するかは、先験的にわかるわけではない。例えば、ナノ粒子の生体毒性が、サイズ^{脚注3}、質量、形状、表面積、化学成分等の特性のいずれに強く依存するかは、吸入暴露試験を行うまでは不明である。従って、エアロゾル測定立場からは、できるだけ多様な粒子特性を測定できる技術を整備しておくことがその使命の一つである。粒子質量を測定可能量の一つに加えることは、この点で重要である。

2.3 粒子質量に着目した理由

粒子質量を測ろうと考えたのは、その明確なニーズがあったからというよりは、むしろその技術がそれまでに存在しなかったからという理由による。粒子質量を測定したいと考える研究者はエアロゾルのコミュニティの中にいたかもしれないが、そのようなニーズが明示的に喧伝されることは

なかった。ただし、質量は粒子の基本的な物理特性なので、これが測定可能量になれば、エアロゾルのふるまいや外的効果の解明に寄与し得るものと期待された。実際その通りであったことは、APMの実用化後に、その様々な利用技術の開発が進んだ(4章参照)ことからうかがえる。

3 エアロゾル粒子質量分析器 (APM)

3.1 既存の粒子分級装置

エアロゾル粒子の何らかの物理量の分布を測定する主な方法の一つは、粒子をまずその物理量について分級しておき、分級後の粒子の量を求めることである。分級物理量の大きさを変更しながら粒子量を求めれば当該物理量の分布がわかる。粒子の量は、個々の粒子を計数する凝縮核式粒子計数器 (CPC) や光散乱式気中粒子計数器 (LSAPC)、帯電粒子が運ぶ電流から粒子数を求めるエアロゾル電流計、あるいはフィルタ上に捕集した粒子を秤量する天秤などを用いて測定される。

表1に、既存の代表的なエアロゾル粒子分級装置について、利用される力と分級対象となる粒子特性を示す^[4]。粒子が周囲気体と相対速度 v で運動するとき、粒子には気体から流体抵抗 ($-v/B$) が働く。粒子の分級は、粒子に印加する外力と流体抵抗の平衡によって実現されるとみなすことができる。例えば、微分型電気移動度分析器では、電極中の帯電粒子に働く静電気力 (電荷 q に比例) と流体抵抗 (B に反比例) の平衡条件から定まる電気移動度 (qB) の特定の値をもつ粒子のみが外に取り出される (3.2 節参照)。同様に、粒子質量に比例する力 (慣性力、遠心力、重力) を利用する分級装置では、これらの力と流体抵抗の

脚注3: 粒子の幾何学的広がり程度をここではサイズという。有効径はサイズの定量的指標である。

平衡で分級が実現され、その結果、 mB 積で決まる空気力学径が分級対象特性となる。このように、既存の粒子分級装置では移動度に反比例する流体抵抗が主要な役割を果たすので、分級対象特性から移動度依存性をなくすことができず、結果として粒子質量の分級を実現することはできなかった。APMでは、流体抵抗が力の平衡に関与しないようにすることにより、粒子質量が分級できるように工夫した（次節参照）。

3.2 APMの原理

この節では、APMの原理を、移動度分級の目的で使われる微分型電気移動度分析器 (differential mobility analyzer; DMA)^[5] と対比して説明する。図2に示すように、DMAの主要部は同軸円筒型の電極で、電極内を軸方向に流れる清浄空気中に、外側円筒上部に設けたスリットを通じて試料エアロゾルが導入される。エアロゾル中の粒子は電気移動度の大きさに応じて異なる軌跡に従って電極内を運動し、特定の電気移動度を有する粒子のみが内側円筒下部に設けたスリットから取り出される。DMAはCPCと組み合わせてエアロゾル粒子の粒径分布（厳密には移動度等価径分布）を測定する目的で広く普及している。

一方、APMもその主要部はやはり同軸円筒型電極であるが、内外の電極が同じ角速度で回転する機構となっている

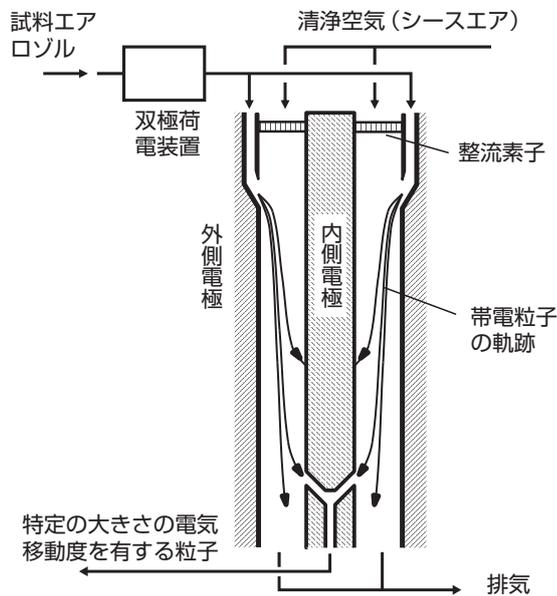


図2 微分型電気移動度分析器 (DMA) の原理

る(図3)。電極間に導入されたエアロゾル中の帯電粒子は、内側方向への静電気力と外側方向への遠心力の影響の下に運動し、これらの二つの力が平衡する粒子、すなわち特定の質量電荷比を有する粒子のみが電極下部から取り出される^{脚注4}。分級対象特性が質量電荷比であることから、エアロゾル粒子質量分析器の名前を与えた^[6]。

粒子が気体の中を運動する分級原理では、粒子に働く流体抵抗が移動度に依存するため、粒子質量の分級はできない。一方APMにおいて電極を通り抜ける粒子は、周囲空気と同じ速度で運動するため、流体抵抗が働かない^{脚注5}。このことが粒子質量の分級を可能としている。DMAを含む従来の分級装置は、一外力場中での粒子の移動距離の違いを利用している点で、いわゆる偏位法に分類できる。これに対し、APMは二つの外力の平衡を利用する零位法に分類できる。この違いが質量分級の可否につながっている。

APMの質量分級性能は、APM伝達関数^{脚注6} $\Omega(m; V)$ で特徴づけることができる^[6]。これは V をパラメータとする m の関数で、電極の印加電圧を V 、回転速度を ω に固定したとき、質量 m の粒子について電極入口に到来する粒子数流束と出口から出て行く粒子数流束の比として定義される。伝達関数は、電極内での粒子の運動方程式を解くことにより部分的に数値解析を行って計算することができる。個数濃度の質量分布が $n(m)$ で表されるエアロゾルがAPMに吸引されるとき、APMから取り出される粒子数濃度は伝達関数を用いて理論的に

$$C(V) = \int_0^{\infty} n(m) \Omega(m; V) dm \quad (3)$$

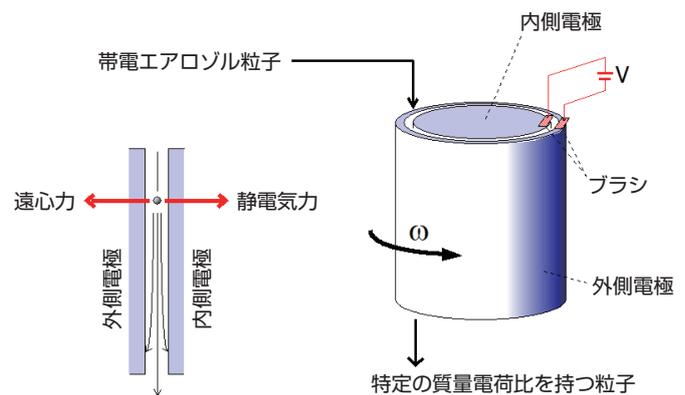


図3 エアロゾル粒子質量分析器 (APM) の原理

脚注4：APMは厳密には質量電荷比の分級装置というべきであるが、粒子の電荷の大きさは幾つかの条件下で推定可能なため、ここでは質量の分級装置として扱う。

脚注5：厳密には、粒子が取り出されるまでに動径方向に最大で電極間ギャップに相当する距離を運動する。粒子質量の分級分解能は、この動径方向運動によって移動度依存性を持ち得るが、これについてはここでは触れない。

脚注6：APM電極から取り出される粒子数流束と電極に導入される粒子数流束の比を粒子質量の関数として表したものを、DMAに対する同種の用語にならってこのように呼んでいる。

と表すことができる^{脚注7}。印加電圧 V についての関数 $C(V)$ をAPMスペクトルと呼ぶ。様々な V の値についての $C(V)$ を実験で求め、これを式(3)の理論スペクトルができるだけ再現するように $n(m)$ を定めることで、試料エアロゾル粒子の質量分布を求めることができる⁷。

3.3 APMについての第三者研究

APMの原理の発表以降、APMの実用化を目的に我々が実施した研究以外に、他の研究グループによるAPMの特性やデータ解析方法に関する研究が行われている。これらはAPM伝達関数の実験的評価⁸や理論的解析⁹、ブラウン拡散の効果の評価¹⁰、データ解析のための逆問題解法の検討¹¹などである。これらの技術的詳細についてはここでは触れない。

APMは内外の電極が同じ角速度で回転するように設計した。この制限を外し、内側電極を外側よりも高速に回転するように設計されたクエット遠心粒子質量分析器(Couette centrifugal particle mass analyzer; CPMA)が当時ケンブリッジ大学にいたOlfertとCollingsにより開発・実用化された¹²¹³。APMでは二つの外力の平衡は、不安定な平衡に対応するが、CPMAではこれを安定な平衡とすることができる。その結果、分級分解能が同じ条件で運転するとき、理論的には電極からより多くの粒子を取り出せる可能性がある。現実のCPMAでは、おそらく電極内流れを理想的なクエット流^{脚注8}に維持することが工学的に難しいとの理由で、理論性能を達成する装置はまだ実現できていない¹³。しかし理想的な装置が実現できれば、APMの粒子通過率を向上できる装置として期待できる。なお、以下ではCPMAも含めてAPMと呼ぶことにする。

3.4 質量測定装置としての位置づけ

図4に物体の質量を測る代表的な装置のおよその対象質量範囲を示す。微小質量向けに作られた天秤の最小読取りは0.1 μg程度である。TEOM(Tapered Element Oscillating Microbalance; 先細振動子マイクロバランス)は、PM2.5などの空気中の粒子状物質を振動子上に捕集し

たときの固有振動数の変化から捕集質量を求めるもので、およそ 10^{-11} gから 10^{-5} gが対象質量範囲である¹⁴。一方、原子・分子の質量は質量分析器で測定され、そのうち測定可能範囲が広い飛行時間型の質量分析器(TOF-MS)では、約 1.7×10^{-24} gから約 1.7×10^{-18} g(1 D_A からおよそ $10^6 D_A$)が対象質量範囲である。

以上のように既存の質量測定装置では、およそ 10^{-18} gから 10^{-11} gの質量範囲がカバーされていなかった。APMはこの空白範囲を部分的に埋めるもので、およそ 3×10^{-18} gから 2×10^{-12} gを対象質量範囲としている⁷。

4 APMの利用技術

APMの実用化後、これを利用したエアロゾル粒子の新しい特性評価技術の開発が進んだ。これらは、APM開発の直接的成果と言えるので、以下ではこれらについてやや詳細に述べる。

4.1 有効密度^{[15]-[20]}

DMAとAPMを直列に接続し、分級された粒子をCPC等で計数することにより、粒子の有効密度の分布を求めることができる。有効密度とは、質量 m を直径が移動度等価径 D_B に等しい球形粒子の体積で割ったものと定義され、粒子が球形であれば粒子密度に一致する。有効密度は、成分物質や粒子の形態(モルフォロジー)を反映することから、単にサイズ分布の測定だけでは得られない情報をもたらす。DMA-APMを利用した有効密度測定の方法はミネソタ大学のMcMurryらにより提案された¹⁵。彼らはこれを利用して、アトランタ市の大気中粒子が、有効密度が大きい成分と小さい成分の二成分で構成される場合があることを初めて示した。彼らの研究以来、各地の大気エアロゾル粒子や実験室で発生した様々な種類の粒子の有効密度測定が行われている¹⁶²⁰。

4.2 真密度・粒子密度^{[21][22]}

エアロゾル粒子の体積を電子顕微鏡等で決めることができれば、APMによる粒子質量測定結果と併せて、粒子

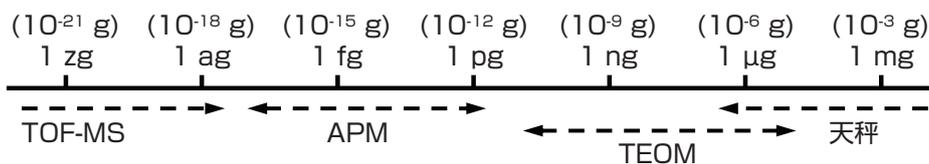


図4 代表的な質量測定装置の対象質量範囲 (TOF-MS: 飛行時間型質量分析器、TEOM: 先細振動子マイクロバランス)

脚注7: 簡単のため、ここではAPMに入る粒子はすべて1価帯電であると仮定した。このような条件はAPMの上流側にDMAを配置することにより近似的に実現可能である。

脚注8: 有限の相対速度をもつ2枚の平面状や同軸円筒状の面間の粘性流体の流れを一般にクエット(Couette)流と呼んでいる。クエット流では、面間運動に平行な方向の流速には面に垂直方向の勾配が生じる。

の密度が求まる^[2]。得られる密度は、計算に用いる体積の値が空孔（ポイド）を含まない場合は真密度（material density）、含む場合は粒子密度（particle density）となる。メリーランド大学の Kim らはこの方法を用いて、多層カーボンナノチューブの密度（中空部分を含む粒子密度）の決定に成功している^[21]。同様の方法で、ディーゼル排気粒子、金属粒子、酸化金属粒子などの密度測定が行われている^{[21][22]}。

4.3 粒子質量・粒子体積^{[23]-[32]}

揮発性成分を含むエアロゾル粒子は、加熱前後の粒子質量の比較から、揮発性成分の含有率を求めることができる。当時ミネソタ大学にいた桜井らは、この方法によりディーゼル排気粒子の揮発性成分の割合を粒径別に調べた^[23]。また、カリフォルニア大学ロサンゼルス校の Lall らは、凝集粒子に対して彼らが提唱している理想凝集モデルの妥当性を実験的に検証する中で凝集粒子の質量を求めるために APM を利用した^[25]。

粒子の真密度 ρ_m がわかる場合には、粒子質量 m から粒子体積が求まる。東京大学の茂木らは、地球温度に影響を与える大気中の元素状炭素粒子（ブラックカーボン）の量を光学的に測定する Single Particle Soot Photometer の性能評価において、炭素粒子の体積を求めるためにこの方法を利用している^[24]。

4.4 質量濃度^{[33][34]}

PM2.5 や浮遊粒子状物質（SPM）のように、空気中に含まれる特定の空気力学径以下の粒子の質量濃度（単位空気体積あたりの総質量） M は、大気中の粒子汚染を監視する目的で用いられている。粒子の質量濃度の標準的測定法は、フィルタ上に捕集した粒子の天秤による秤量であるが、捕集中に起こりえる揮発や他成分吸着などが測定系の系統誤差となり得ること、秤量可能な質量を捕集するまでに時間がかかることなどの欠点がある。ミネソタ大学の Park らは、移動度等価径 D_B を指定したときの平均粒子質量 $\bar{m}(D_B)$ を DMA-APM-CPC の組合せで求めておき、別途 DMA-CPC の組合せで求める移動度等価径の個数分布 dN/dD_B (N は個数濃度) を併用して、次式から質量濃度を求める方法を提案した^[33]。

$$M = \int \bar{m}(D_B) \frac{dN}{dD_B} dD_B \quad (4)$$

この方法は、粒子の捕集を要しないオンライン測定であるため捕集に伴う測定バイアスの発生がないこと、および $\bar{m}(D_B)$

が時間的に安定していれば dN/dD_B の測定だけから M を求められるため粒子質量濃度の低い清浄空気に対しても短時間で M を測定できること、などの長所がある。

4.5 フラクタル次元^{[35]-[49]}

図 1 (b)、(c) の例のように、1次粒子が凝集することで成長が進む凝集粒子については、フラクタル次元^{脚注9}が粒子形状の指標の一つとなる。粒子質量 m 、移動度等価径 D_B 、フラクタル次元 d_f の間にはいくつかの条件のもとで近似的に次のスケーリング則が成立することが知られている^[50]。

$$m \propto D_B^{d_f} \quad (5)$$

成長の様々な段階にある多数の凝集粒子を対象に、DMA-APM の組合せを用いて (D_B , m) を測定することにより d_f が求まる。この方法はミネソタ大学の Park らによって提案され、ディーゼル排気粒子のフラクタル次元のエンジン負荷依存性が明らかにされた^[35]。チューリッヒ工科大学の Eggersdorfer らは、実験室内で発生した銀のナノ凝集体を温度を変えて焼結させると、 d_f は 2.07 (焼結温度 20 °C) から球に近い 2.95 (600 °C) まで変化することを示している^[47]。

4.6 動的形状因子^{[51][52]}

非球形粒子の移動度 B と、その粒子と同じ体積をもつ球形粒子の移動度 B_{ve} の比は動的形状因子 χ として知られている。粒子形状の球形からのずれが大きいほど χ の 1 からのずれが大きくなるため、 χ は粒子の形状を表す指標の一つとして利用される。上記 4.3 節の方法で粒子の体積がわかれば B_{ve} を計算することができ、また B は DMA を用いて測定できるため、これらから χ を求めることができる。

Pacific Northwest National Laboratory (米) の Deranik らは APM、DMA、および粒子毎の成分分析を行う SPLAT と呼ばれる装置を組み合わせた複合装置により、動的形状因子を含む幾つかの特性を同時に評価する方法を示した^[51]。またドレスデン工科大学の Hillemann らは、焼結温度を変えて発生した粒子の動的形状因子が焼結温度にどのように依存するかを実験的に明らかにしている^[52]。

4.7 空孔率^{[53][54]}

空孔が粒子の内部に、もしくは表面に部分的に露出して含まれる場合に、空孔体積と粒子の包絡面で囲まれた体積の比を空孔率という。粒子包絡面がおおよそ球形であれば、移動度等価径から包絡面で囲まれた体積 V_e がわかる。さらに粒子の材質が既知であればその真密度と粒子質

脚注9：現実のエアロゾル粒子は、フラクタルが満たすべき自己相似則に厳密には従わないことから、 d_f は質量移動度指数やフラクタル様次元などと呼ばれることが多いが、ここでは簡単のためフラクタル次元と呼ぶ。

量から、空孔を除く粒子体積 V_i がわかる。これらの比から空孔率が計算できる。広島大学の Lee らは、幾つかの製法で作成したシリカ粒子の空孔率の違いを、この方法を用いて明らかにしている^[53]。

4.8 粒子毎の比表面積^{[3][55]}

粒子の形状とサイズが一定の条件を満たすとき、移動度等価径は粒子の投影面積等価径に近似的に等しいことが知られている^[56]。ウィルソンセンター（米）にいた Maynard らは、移動度等価径 D_B について分級した粒子の質量分布の最頻値 \bar{m} を DMA と APM の組合せで求め、これらを用いた次の指標を定義した^[3]。

$$\Gamma = \pi D_B^2 / \bar{m} \quad (6)$$

粉体に対して測定される通常の比表面積は、粉体群全体の総表面積と総質量の比を表すが、 Γ は粒子毎の表面積と質量の比を近似的に表す。彼らは、単層カーボンナノチューブについて、その製法やロットが違っていると Γ が、従って物理化学的特性が大きく違い得ることを示し、ナノ粒子の潜在的危険性を評価する際に粒子特性のこのようなばらつきに配慮する必要性を訴えている。

5 APM製品化までの道のり

APMの原理の着想からその製品化に到る過程の概略を3つの段階に分けて図5に示す。装置の試作を含む実験的研究は、環境庁（現在の環境省）による公害防止等試験研究費の課題（1994-1998）の一部として開始した。試作機が稼働することが確認できたときには、装置の実用化は難しくないと考えられたが、実際には幾つかの深刻な問題が発生し、それらすべての解決は、NEDO 材料ナノテクノロジープログラム「ナノ計測基盤技術プロジェクト」（2001-2007）にまで持ち越すこととなった。各段階の経過の概略を以下

に述べる。

5.1 実現可能性の確認（第1段階）

APMの原理は、榎原が1991年から1992年にかけて応用統計学に関わる客員研究を行うために米国国立標準技術研究所（NIST）に滞在中に考案した。榎原は統計の実験計画法の有効性を検証する目的で、DMAの性能評価実験を行っていた。実験にはNISTのBuilding and Fire Research LaboratoryにいたMulholland博士の協力を得ることができ、その成果はDMAに関する論文^[57]として後に発表した。一方、この実験を進める中で、エアロゾル粒子の質量を測定する技術がないことが気になっていた。DMAが分級対象とする移動度は、非球形粒子に対してはテンソル量で、粒子の空間姿勢にも依存するため、粒子固有の量とは言えない。一方、粒子質量は粒子の形状によらない粒子固有の物理量であり、重要な測定対象量と考えられる。原子・分子の質量は、質量分析法で測定可能である。これをエアロゾル粒子に適用することはできないだろうか。しかし、エアロゾル粒子の質量は原子・分子と比べて大きいと、装置が実用的でないほど大きくなる。また、気中の粒子を真空に持ち込むと、粒子の変質や粒子数濃度の大幅な低下が生じる可能性があった。そこで、粒子を気中に浮遊させたまま質量を分級する方法を検討し、その結果として3.2節に述べた仕組みを考案した。これだと机上に置ける大きさの装置でエアロゾル粒子の質量分析が実現可能である。

榎原が滞在していたNIST統計工学課は理論系研究の部署であり、新たな装置を試作し実験を進めることが困難であったため、技術の公開を促進する目的で特許を申請することとした。米国を対象とし、NISTに権利が帰属する特許US5428220Aが1993年に認められた。また後に日本国内を対象とし工業技術院長に権利が帰属する特許2517872が1996年に認められた。

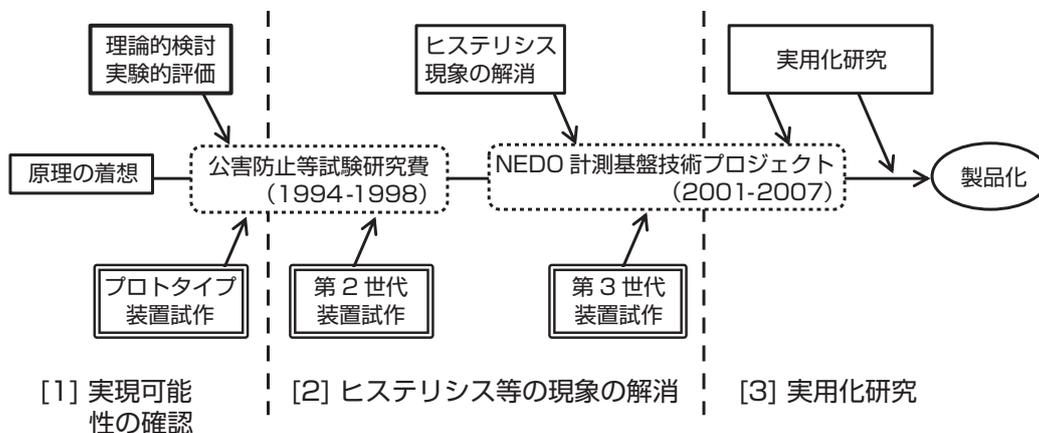


図5 APMの製品化までの道筋

NIST では幸運なことが二つあった。一つは、榎原が滞在していた部署には確率論や数理統計学の専門家が多くのいたことである。APM を微小粒子に適用するには、粒子のブラウン拡散の効果を解析する必要がある。このために必要な確率微分方程式に関する専門的知識を有する Hagwood と Coakley にこの解析に参加してもらうことができた。ブラウン拡散の効果を考慮した APM 伝達関数の性質は 1995 年までに明らかになり、その成果は APM に関する最初の論文となった^[58]。

今一つは、米国出張中であった日本カノマックス（株）の福嶋が NIST を訪れたことである。その際、APM 装置の実現の可能性について榎原が福嶋に相談する機会を持つことができた。福嶋はエアロゾル工学の専門的知識を有していたため、APM の実現がエアロゾル測定分野でのどのような意義があるかを直ちに理解することができた。また、装置設計に必要な機械工学・電気工学・流体工学についての包括的知識があったため、装置の実現のための技術的課題がどこにあるかを具体的に予測することができた。

1994 年に計量研究所（現在の産業技術総合研究所 計量標準総合センター）と日本カノマックスの間で共同研究契約を締結し、その成果として 1995 年に APM の最初の試作機（以下ではプロトタイプ装置と呼ぶ）が完成した。この装置には幾つかの明白な問題があったが、粒径と密度が既知のポリスチレンラテックス標準粒子（図 1(a)）に対して、およそ理論的に予想される質量位置に分級粒子のピークが観測され^[6]、APM の実現可能性を実験的に確認することができた。

5.2 ヒステリシス等の現象の解消（第2段階）

プロトタイプ装置には、ベアリングを通しての試料エアロゾルの漏洩など幾つかの問題があった。これらを解消し、さらに幾つかの点で性能向上を図った第 2 世代装置を 1996 年に試作した。この装置では、APM スペクトルの理論的に予想される位置に粒子通過率のピークが確かに観測

され、実用に足る性能を有していると思われた。しかし、性能評価実験を継続する中で、粒子通過率データの再現性が統計的ばらつきでは説明できないほど低くなる場合があること、また APM スペクトルのピーク高さが理論的予想よりも明白に低くなる場合があることなどの現象が 1997 年に見つかった。これらの原因が何か、榎原と福嶋の間で時間をかけて検討したが、明瞭な手がかりがつかめなかった。そこで、いずれも 2000 年に産総研に客員研究員として滞在することとなったプリンスオブソククラ大学（タイ）の Worachotekamjorn と NIST の Coakley に参加してもらい、実験と理論の両面からあらためて体系的に検討を進めることになった。

実験的評価では、APM の電極電圧を別の値に切り替えた後、粒子通過率が一定の値に漸近するまでに理論的予想よりずっと長い時間がかかること、および漸近の方向が前回電圧の値に依存するヒステリシス現象が見られること（図 6 の「第 2 世代」とあるデータ）が判明し、これらの現象の粒子質量や運転条件への依存性の詳細が明らかになった^[59]。

理論的には、電極電圧設定値のステップ状変化を考慮した非定常の確率微分方程式を数値的に解くことで粒子通過率の過渡応答を調べた。この中では、器壁近傍の運動速度が遅い粒子の存在、電圧設定値切り替え直後からの粒子軌跡の時間変化、それらへのブラウン運動などの影響などを考慮した計算を行ったが、原因究明には至らなかった。しかしこれらの計算結果は、検討の焦点を絞り込むための貴重な情報となった。

原因究明はその後しばらく進まなかったが、2002 年に可能性のある一つのモデルが浮上した。第 2 世代装置の電極出口の下流側には、正負電極を分離するための絶縁体の表面が帯電粒子の流れに露出している部分がある。図 7 に示すように、電極に電圧を印加すると、静電気力により絶縁体表面に帯電粒子の付着が生じる。付着が時間的に進むと

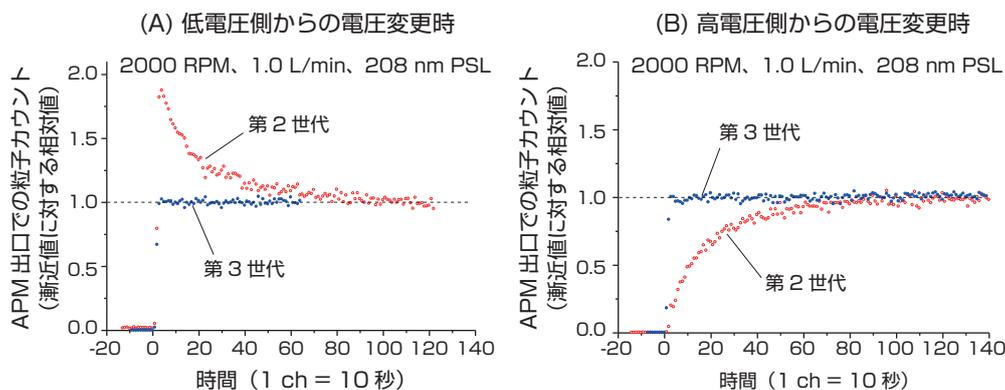


図 6 第 2 世代 APM の時間応答に見られたヒステリシス現象と、改良した第 3 世代 APM の時間応答

これらが二次的に作る静電場由来するクーロン斥力が強くなるため、この部分を通過する粒子数流束が減少する。時間が十分経過した後の付着粒子数の漸近値は印加電圧が高いほど多くなることからヒステリシスが説明できる。

このモデルに基づき、正負電極の絶縁方法を工夫して問題の現象が生じないようにした第3世代装置を2003年に試作した。その時間応答特性を調べたところ、図6の「第3世代」と示すデータのように、遅い応答とヒステリシスの両方が解消されていることが確認できた^[60]。さらに、理論的に予想される粒子通過率の値が実験値とほぼ厳密に一致することもわかった。これによりAPM実用化までの道が一気に見通せるようになった。第2世代装置の問題が発覚した1997年からここに至るまで約6年の時間を要した。

5.3 実用化研究(第3段階)^{脚注10}

ヒステリシス現象の問題が解消された後は、分級分解能の向上、電極を横置き(回転軸を水平方向に設置)することの可能性、遠心力に伴う電極変形の評価と低減、電極部の機械加工精度の向上など、装置を実用化するための検討を進めた。またAPMをディーゼルナノ粒子の特性評価や質量濃度測定に応用する研究も行った^{[16][34]}。この中で、電極電圧を時間の関数として階段状でなく連続的に変化させる走査モード運転においてもほぼ同様の精確さを与えるAPMスペクトルが得られることを桜井が見いだした^[61]。

これにより1セットのAPMスペクトルを得る時間をこれまでのおよそ40分から数分に短くできる可能性が開かれた。

最初の市販装置 APM Model 3600(日本カノマックス)は2008年に販売が開始された。この装置は、試料エアロゾル流量1 L/minで、0.01 fgから100 fgの質量範囲の粒子を分級可能である。田島と桜井はこの装置の詳細な性能評価を行う中で、粒子質量に応じた最適な運転条件を選択するツール“APM operation diagram”を提案した^[7]。その後、田島を中心とする詳細な設計パラメータの解析^[62]を経て、試料エアロゾル流量は0.3 L/minと小さいがModel 3600とほぼ同等の分級性能を有する小型のModel 3601が2012年に開発された。その本体部(図8)の寸法は、幅430 mm、奥行200 mm、高さ140 mmである。現在は、このモデルの制御方法を改良したModel 3602が販売されている。

5.4 実用化と製品化の間の壁

実用的な技術を開発しても、それが必ずしも製品化に結びつくわけではない。特にその技術に対するニーズが関連コミュニティの中で明白に意識されていない状況の中では、その技術がどの程度受け入れられそうかの予測が立ちにくく、製品化に進むことは簡単ではない。実用化と製品化の間には低くない壁がある。

ミネソタ大学のMcMurry教授は、第2世代APMを試

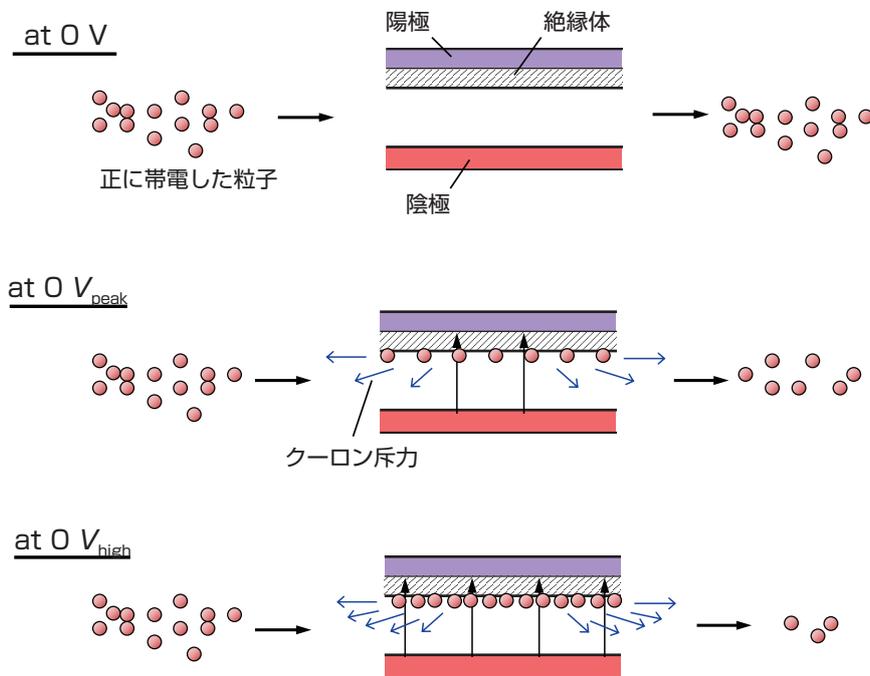


図7 APM 応答のヒステリシス現象を説明する電極出口の下流側部分のモデル。絶縁体表面に付着する帯電粒子によるクーロン斥力のため、印加電圧の大きさに応じてこの部分を通過できる粒子数割合が変わる。

脚注10: この論文では研究過程を具体的に説明する目的で、特定の商品名を記載することがある。このような記載は米国国立標準技術研究所による推奨を意味するものではなく、またその商品がその使用目的に最良のものであることを意味するものでもない。

作した直後に早くもこれに関心を寄せ、これと同型の装置を利用して行った研究の成果を10編以上の論文にして発表した。ミネソタ大学はエアロゾル研究における世界的な中心の一つと見なされており、McMurry教授はその研究陣の一人としてすでに著名な存在であった。彼の研究を通じてAPMという装置が国際的に認知されたことが、製品化の壁を乗り越える重要な鍵となった。

McMurry教授がAPMに関心を寄せた背景に、1994年に榎原がミネソタ大学に短期滞在したこと、またその数年後にMcMurry教授が計量研究所を訪問したことがある。いずれもAPMとは関連のない目的での訪問であったが、この中でAPMの構想や第2世代装置の性能についての情報を伝える機会があった。意図しなかったこのような偶然的機会が、APMの製品化に重要な役割を果たした。

6 まとめ

エアロゾル粒子に働く遠心力と静電気力の平衡を利用して粒子の質量について分級するエアロゾル粒子質量分析器（APM）を開発した。APMは、既存の質量測定装置がカバーしない質量測定範囲の空白領域を部分的に埋めるもので、およそ 3×10^{-18} g から 2×10^{-12} g を測定対象範囲とする。APMの応用技術として、有効密度、真密度、粒子体積、空孔率、フラクタル次元、質量濃度など、エアロゾル粒子の様々な特性の新しい評価技術が様々な研究グループによって開発された。

深刻な技術的課題を解消しつつ装置を実用化するまでに、エアロゾル測定の専門家だけでなく、動作原理の理論解析のための数的手法について専門的知識を有する研究者、および装置設計に必要な機械工学・電気工学・流体工学の包括的知識を有する研究者等の参加が必要であった。開発プロセスの中でこれらの人々の参加が得られたのは、

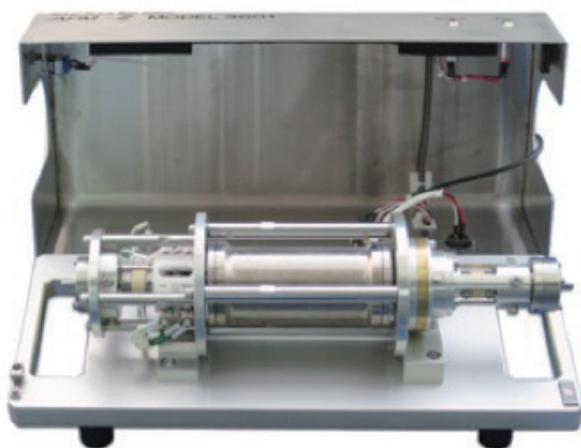


図8 APM Model 3601の本体部

幸運によるところもある。また、装置開発の初期の段階からAPMに関心をもち、その存在の国際的な認知につなげてくれた研究者と交流を持てたのも幸運なことであった。

APMについて研究すべき課題はまだ残されている。電圧連続走査モード運転の市販装置への実装は未完了である。またAPMは零位法にもとづく装置として正確さの高い測定が期待できるため、APMを粒子質量のトレーサビリティに利用できる可能性がある。0.01 fg以下では、DMA測定粒径からの予想質量と系統的にずれる可能性があり^[63]、この問題の解決も待たれる。さらにCPMAの性能評価やその理想性能の実現も期待される。

謝辞

著者の一人（榎原）は、本研究のきっかけを与えていただいた故 Dr. Robert Lundegard, Dr. George Mulholland（いずれも元 National Institute of Standards and Technology）および向坂保雄大阪府立大学名誉教授、製品化前のAPMに関心をもち活用いただいた Prof. Peter McMurry（ミネソタ大学）、上司として研究推進を継続的に支援いただいた田中充博士（産業技術総合研究所）、APMを利用した多くの実験に貢献いただいた齊藤敬三博士および矢部明博士（いずれも元産業技術総合研究所）に感謝します。この論文で紹介した研究の一部は、環境庁（現在の環境省）国立機関公害防止等試験研究費「浮遊粒子状物質の組成別濃度および粒子個別特性の評価に基づく発生源制御に関する研究」（1994-1998）およびNEDO材料ナノテクノロジープログラム「ナノ計測基盤技術プロジェクト」（2001-2007）の中で実施されたものです。

参考文献

- [1] P. Kulkarni, P. A. Baron and K. Willeke (eds.): *Aerosol Measurement: Principles, Techniques, and Applications*, 3rd edition, Wiley, Hoboken, N.J., (2011).
- [2] K. Park, D. B. Kittelson, M. R. Zachariah and P. H. McMurry: Measurement of inherent material density of nanoparticle agglomerates, *J. Nanoparticle Res.*, 6 (2), 267–272 (2004).
- [3] A. D. Maynard, B. K. Ku, M. Emery, M. Stolzenburg and P. H. McMurry: Measuring particle size-dependent physicochemical structure in airborne single walled carbon nanotube agglomerates, *J. Nanoparticle Res.*, 9 (1), 85–92 (2007).
- [4] 榎原研正: 気中ナノ粒子のサイズおよび質量による分級, *化学工学*, 73 (2), 83–86 (2009).
- [5] E. O. Knutson and K. T. Whitby: Aerosol classification by electric mobility: apparatus, theory, and applications, *J. Aerosol Sci.*, 6 (6), 443–451 (1975).
- [6] K. Ehara, C. Hagwood and K. J. Coakley: Novel method to classify aerosol particles according to their mass-to-charge ratio—Aerosol particle mass analyser, *J. Aerosol Sci.*, 27 (2),

- 217–234 (1996).
- [7] N. Tajima, N. Fukushima, K. Ehara and H. Sakurai: Mass range and optimized operation of the aerosol particle mass analyzer, *Aerosol Sci. Technol.*, 45 (2), 196–214 (2011).
- [8] C. Presser, X. Ma, S. Guha, G. W. Mulholland and M. R. Zachariah: Online nanoparticle mass measurement by combined aerosol particle mass analyzer and differential mobility analyzer: Comparison of theory and measurements, *Aerosol Sci. Technol.*, 43 (11), 1075–1083 (2009).
- [9] M. Kuwata: Particle classification by the tandem differential mobility analyzer–particle mass analyzer system, *Aerosol Sci. Technol.*, 49 (7), 508–520 (2015).
- [10] G.-Y. Lin, B.-X. Liao, N.-J. Tzeng, C.-W. Chen, S.-N. Uang, S.-C. Chen, D. Y. Pui and C. J. Tsai: The effect of nanoparticle convection-diffusion loss on the transfer function of an aerosol particle mass analyzer, *Aerosol Sci. Technol.*, 48 (6), 583–592 (2014).
- [11] K. Park: In-situ measurements of physical properties of 50–500 NM particles: mass-mobility relationship, Ph. D. thesis, University of Minnesota, (2003).
- [12] J. S. Olfert and N. Collings: New method for particle mass classification—the Couette centrifugal particle mass analyzer, *J. Aerosol Sci.*, 36 (11), 1338–1352 (2005).
- [13] J. S. Olfert, K. St. J. Reavell, M. G. Rushton and N. Collings: The experimental transfer function of the Couette centrifugal particle mass analyzer, *J. Aerosol Sci.*, 37 (12), 1840–1852 (2006).
- [14] E. Weingartner, H. Burtscher, C. Hüglin and K. Ehara: Semi-continuous mass measurement, in *Aerosol Measurement: Principles, Techniques, and Applications, Third Edition*, P. Kulkarni, P. A. Baron, K. Willeke eds., John Wiley & Sons, 255–268 (2011).
- [15] P. H. McMurry, X. Wang, K. Park and K. Ehara: The relationship between mass and mobility for atmospheric particles: A new technique for measuring particle density, *Aerosol Sci. Technol.*, 36 (2), 227–238 (2002).
- [16] 齊藤敬三, 篠崎修, 矢部明, 瀬戸章文, 桜井博, 榎原研正: DMA-APM法によるディーゼル排気の質量濃度測定 (第1報) —有効密度の測定—, 自動車技術会論文集, 38 (6), 113–118 (2007).
- [17] Q. G. J. Malloy, S. Nakao, L. Qi, R. Austin, C. Stothers, H. Hagino and D. R. Cocker III: Real-time aerosol density determination utilizing a modified scanning mobility particle sizer—Aerosol particle mass analyzer system, *Aerosol Sci. Technol.*, 43 (7), 673–678 (2009).
- [18] S. Nakao, M. Shrivastava, A. Nguyen, H. Jung and D. R. Cocker III: Interpretation of secondary organic aerosol formation from diesel exhaust photooxidation in an environmental chamber, *Aerosol Sci. Technol.*, 45 (8), 964–972 (2011).
- [19] T. L. Barone, A. A. Lall, J. M. E. Storey, G. W. Mulholland, V. Y. Prikhodko, J. H. Frankland, J. E. Parks and M. R. Zachariah: Size-resolved density measurements of particle emissions from an advanced combustion diesel engine: Effect of aggregate morphology, *Energy Fuels*, 25 (5), 1978–1988 (2011).
- [20] X. Tang, D. R. Cocker III and A. Asa-Awuku: Are sesquiterpenes a good source of secondary organic cloud condensation nuclei (CCN)? Revisiting β -caryophyllene CCN, *Atmospheric Chem. Phys.*, 12 (18), 8377–8388 (2012).
- [21] S. H. Kim, G. W. Mulholland and M. R. Zachariah: Density measurement of size selected multiwalled carbon nanotubes by mobility-mass characterization, *Carbon*, 47 (5), 1297–1302 (2009).
- [22] M. Kuwata, S. R. Zorn and S. T. Martin: Using elemental ratios to predict the density of organic material composed of carbon, hydrogen, and oxygen, *Environ. Sci. Technol.*, 46 (2), 787–794 (2012).
- [23] H. Sakurai, K. Park, P. H. McMurry, D. D. Zarling, D. B. Kittelson and P. J. Ziemann: Size-dependent mixing characteristics of volatile and nonvolatile components in diesel exhaust aerosols, *Environ. Sci. Technol.*, 37 (24), 5487–5495 (2003).
- [24] N. Moteki and Y. Kondo: Effects of mixing state on black carbon measurements by laser-induced incandescence, *Aerosol Sci. Technol.*, 41 (4), 398–417 (2007).
- [25] A. A. Lall and S. K. Friedlander: On-line measurement of ultrafine aggregate surface area and volume distributions by electrical mobility analysis: I. Theoretical analysis, *J. Aerosol Sci.*, 37 (3), 260–271 (2006).
- [26] M. Kuwata and Y. Kondo: Measurements of particle masses of inorganic salt particles for calibration of cloud condensation nuclei counters, *Atmospheric Chem. Phys.*, 9 (16), 5921–5932 (2009).
- [27] M. Kuwata, Y. Kondo and N. Takegawa: Critical condensed mass for activation of black carbon as cloud condensation nuclei in Tokyo, *J. Geophys. Res. Atmospheres*, 114 (D20), (2009).
- [28] M. Shiraiwa, Y. Kondo, T. Iwamoto and K. Kita: Amplification of light absorption of black carbon by organic coating, *Aerosol Sci. Technol.*, 44 (1), 46–54 (2010).
- [29] X. Ma, A. A. Lall, G. W. Mulholland and M. R. Zachariah: Evaporation anisotropy of free nanocrystals, *J. Phys. Chem. C*, 115 (34), 16941–16946 (2011).
- [30] S. Guha, X. Ma, M. J. Tarlov and M. R. Zachariah: Quantifying ligand adsorption to nanoparticles using tandem differential mobility mass analysis, *Anal. Chem.*, 84 (15), 6308–6311 (2012).
- [31] M. Laborde, P. Mertes, P. Zieger, J. Dommen, U. Baltensperger and M. Gysel: Sensitivity of the Single Particle Soot Photometer to different black carbon types, *Atmospheric Meas. Tech.*, 5 (5), 1031–1043 (2012).
- [32] J. G. Radney, X. Ma, K. A. Gillis, M. R. Zachariah, J. T. Hodges and C. D. Zangmeister: Direct measurements of mass-specific optical cross sections of single-component aerosol mixtures, *Anal. Chem.*, 85 (17), 8319–8325 (2013).
- [33] K. Park, D. B. Kittelson and P. H. McMurry: A closure study of aerosol mass concentration measurements: Comparison of values obtained with filters and by direct measurements of mass distributions, *Atmos. Environ.*, 37 (9), 1223–1230 (2003).
- [34] 齊藤敬三, 篠崎修, 矢部明, 瀬戸章文, 桜井博, 榎原研正: DMA-APM法によるディーゼル排気PMの質量濃度測定 (第2報) —フィルター法との比較測定—, 自動車技術会論文集, 39 (4), 97–102 (2008).
- [35] K. Park, F. Cao, D. B. Kittelson and P. H. McMurry: Relationship between particle mass and mobility for diesel exhaust particles, *Environ. Sci. Technol.*, 37 (3), 577–583 (2003).
- [36] B. K. Ku, M. S. Emery, A. D. Maynard, M. R. Stolzenburg and P. H. McMurry: In situ structure characterization of airborne carbon nanofibres by a tandem mobility–mass analysis, *Nanotechnology*, 17, 3613–3621 (2006).
- [37] J. S. Olfert, J. P. R. Symonds and N. Collings: The effective density and fractal dimension of particles emitted from a light-duty diesel vehicle with a diesel oxidation catalyst, *J. Aerosol Sci.*, 38, 69–82 (2007).
- [38] R. Zhang, A. F. Khalizov, J. Pagels, D. Zhang, H. Xue and P. H. McMurry: Variability in morphology, hygroscopicity, and optical properties of soot aerosols during atmospheric

- processing, *Proc. Natl. Acad. Sci.*, 105, 10291–10296 (2008).
- [39] W. G. Shin, G. W. Mulholland, S. C. Kim, J. Wang, M. S. Emery and D. Y. H. Pui: Friction coefficient and mass of silver agglomerates in the transition regime, *J. Aerosol Sci.*, 40 (7), 573–587 (2009).
- [40] S. C. Kim, J. Wang, M. S. Emery, W. G. Shin, G. W. Mulholland and D. Y. H. Pui: Structural property effect of nanoparticle agglomerates on particle penetration through fibrous filter, *Aerosol Sci. Technol.*, 43 (4), 344–355 (2009).
- [41] J. Pagels, A. F. Khalizov, P. H. McMurry and R. Y. Zhang: Processing of soot by controlled sulphuric acid and water condensation—Mass and mobility relationship, *Aerosol Sci. Technol.*, 43 (7), 629–640 (2009).
- [42] N. Moteki, Y. Kondo, N. Takegawa and S. Nakamura: Directional dependence of thermal emission from nonspherical carbon particles, *J. Aerosol Sci.*, 40 (9), 790–801 (2009).
- [43] J. H. Scheckman, P. H. McMurry and S. E. Pratsinis: Rapid characterization of agglomerate aerosols by in situ mass–mobility measurements, *Langmuir*, 25 (14), 8248–8254 (2009).
- [44] W. G. Shin, G. W. Mulholland and D. Y. H. Pui: Determination of volume, scaling exponents, and particle alignment of nanoparticle agglomerates using tandem differential mobility analyzers, *J. Aerosol Sci.*, 41 (7), 665–681 (2010).
- [45] J. H. Scheckman and P. H. McMurry: Deposition of silica agglomerates in a cast of human lung airways: Enhancement relative to spheres of equal mobility and aerodynamic diameter, *J. Aerosol Sci.*, 42 (8), 508–516 (2011).
- [46] T. Torvela, A. Lähde, J. Mönkäre, J. Riikonene and J. Joutsensaari: Low-temperature aerosol flow reactor method for preparation of surface stabilized pharmaceutical nanocarriers, *J. Aerosol Sci.*, 42 (10), 645–656 (2011).
- [47] M. L. Eggersdorfer, D. Kadau, H. J. Herrmann and S. E. Pratsinis: Aggregate morphology evolution by sintering: Number and diameter of primary particles, *J. Aerosol Sci.*, 46, 7–19 (2012).
- [48] M. Shapiro, P. Vainshtein, D. Dutcher, M. Emery, M. R. Stolzenburg, D. B. Kittelson and P. H. McMurry: Characterization of agglomerates by simultaneous measurement of mobility, vacuum aerodynamic diameter and mass, *J. Aerosol Sci.*, 44, 24–45 (2012).
- [49] J. Olfert and S. Rogak: Universal relations between soot effective density and primary particle size for common combustion sources, *Aerosol Sci. Technol.*, 53 (5), 485–492 (2019).
- [50] A. Schmidt-Ott, U. Baltensperger, H. W. Gäggeler and D. T. Jost: Scaling behaviour of physical parameters describing agglomerates, *J. Aerosol Sci.*, 21 (6), 711–717 (1990).
- [51] J. Beranek, D. Imre and A. Zelenyuk: Real-time shape-based particle separation and detailed in situ particle shape characterization, *Anal. Chem.*, 84 (3), 1459–1465 (2012).
- [52] L. Hillemann, F. Babick and M. Stintz: Measurement of the dynamic shape factor using APM and SMPS in parallel, *Procedia Eng.*, 102, 1177–1182 (2015).
- [53] S. Y. Lee, H. Chang, T. Ogi, T. Iskandar and K. Okuyama: Measuring the effective density, porosity, and refractive index of carbonaceous particles by tandem aerosol techniques, *Carbon*, 49 (7), 2163–2172 (2011).
- [54] Q. Liu, X. Ma and M. R. Zachariah: Combined on-line differential mobility and particle mass analysis for determination of size resolved particle density and microstructure evolution, *Microporous Mesoporous Mater.*, 153, 210–216 (2012).
- [55] B. K. Ku and D. E. Evans: Investigation of aerosol surface area estimation from number and mass concentration measurements: Particle density effect, *Aerosol Sci. Technol.*, 46 (4), 473–484 (2012).
- [56] S. N. Rogak, R. C. Flagan and H. V. Nguyen: The Mobility and structure of aerosol agglomerates, *Aerosol Sci. Technol.*, 18 (1), 25–47 (1993).
- [57] K. Ehara, G. W. Mulholland and R. C. Hagwood: Determination of arbitrary moments of aerosol size distributions from measurements with a differential mobility analyzer, *Aerosol Sci. Technol.*, 32 (5), 434–452 (2000).
- [58] C. Hagwood, K. Coakley, A. Negiz and K. Ehara: Stochastic modeling of a new spectrometer, *Aerosol Sci. Technol.*, 23 (4), 611–627 (1995).
- [59] K. Worachotekamjorn and K. Ehara: Performance evaluation of the aerosol particle mass analyzer, *Proc 1st Asian Part. Technol Symp APT 2000 Bangk.*, S-VI-1 (2000).
- [60] K. Ehara, K. Fukushima, K. Worachotekamjorn and K. J. Coakley: Analysis and improvement of the temporal response of the aerosol particle mass analyzer, *J. Aerosol Sci.*, 35, Supplement 1 (Abstracts of European Aerosol Conference), (2004).
- [61] 櫻井博, 榎原研正: 粒子質量分析方法 特開2008-224246 (2008).
- [62] N. Tajima, H. Sakurai, N. Fukushima and K. Ehara: Design considerations and performance evaluation of a compact aerosol particle mass analyzer, *Aerosol Sci. Technol.*, 47 (10), 1152–1162 (2013).
- [63] H. Sakurai, K. Ehara, N. Tajima and N. Fukushima: Investigation on the cause for underestimation of density measured by the DMA-APM method, *Poster Presentation at 2010 Annual Conf. Am. Assoc. Aerosol Res., Portland Or.*, (2010).

執筆者略歴

榎原 研正（えはら けんせい）

1983年京都大学理学部物理学科卒業。1988年大阪大学基礎工学研究科博士課程修了。工学博士。同年通商産業省工業技術院計量研究所入所。2001年産業技術総合研究所計測標準研究部門。応用統計研究室室長、粒子計測研究室室長、材料物性科科长、首席研究員等を経て、2019年退職。現在、産業技術総合研究所名誉リサーチャー、明治大学兼任講師、学習院大学非常勤講師。本研究では、研究の中心として装置開発を推進した。



Charles R. HAGWOOD（チャーるず はぐうつど）

ノースカロライナ州立農工大学数学科卒業。ミシガン大学数学科研究科修了。Ph. D.（数学）。ダートマス大学およびバージニア大学数学科で講師を務めた後、1987年に米国国立標準技術研究所入所（統計工学課）、現在に至る。フォード財団奨学金を受けてスタンフォード大学統計学部にて一年間滞在。現在は、確率微分方程式とそのエアロゾル粒子への応用、形状解析、動的周波数アクセス、点過程のモデル化などについての研究と技術支援を提供している。本研究では、APM伝達関数に対するブラウン拡散の影響の理論的解析を担当した。APMに関する最初の論文の筆頭著者。



Kevin J. COAKLEY (けびん こーくりー)

エール大学物理学科卒業。ワシントン大学(シアトル)物理学修士号、スタンフォード大学統計学博士号取得。1989年に米国国立標準技術研究所入所(統計工学課)。統計的モデリング、物理学における実験計画・解析、広帯域マイクロ波イメージングやアトムプローブトモグラフィにおける統計的方法、ジョンソンノイズ温度計等に対する統計的学習法などの研究に従事。本研究では、APM伝達関数に対するブラウン拡散の影響および伝達関数の過渡応答特性の理論解析を担当した。



福嶋 信彦(ふくしま のぶひこ)

1978年金沢大学工学部化学工学科卒業。1978年日本科学工業(株)(現日本カノマックス(株))に入社。主に微粒子計測技術の研究開発に従事。1995年大阪府立大学博士後期課程修了、博士(工学)。1998年日本カノマックス(株)生産担当取締役、2007年同代表取締役副社長、2008年(株)カノマックスコーポレーション上席執行役員副社長、2011年日本カノマックス(株)代表取締役副会長、現在に至る。本研究では実用化初期段階でのAPM試作機器の設計・開発を行った。



Kittichote WORACHOTEKAMJORN (きていちょーと うおらちょーとかむよるん)

1992年プリンスオブソクラ大学(PSU)薬学部製剤工学科卒業。同年からPSU薬学部製剤工学科講師、現在に至る。1999年から2000年までJICA奨学金を得て計量研究所においてエアロゾル計測に関する研究を行った。本研究では第2世代APMの過渡応答特性の実験的解析を担当した。



田島 奈穂子(たじま なおこ)

1984年金沢大学工学部化学工学科卒業、1984年日本科学工業(株)(現日本カノマックス(株))入社、2013年退社。2013年広島大学大学院工学研究科化学工学専攻博士課程修了。工学博士。2014年より産業技術総合研究所ナノエレクトロニクス研究部門を経て、現在は同研究所ナノチューブ実用化研究センターにて特別研究員。本研究では、APM実用装置の設計・性能評価、装置の小型化のための理論解析と実験的評価を行った。



桜井 博(さくらい ひろむ)

1999年米国ペンシルベニア州立大学大学院化学専攻Ph.D.修了、1999年米国ミネソタ大学ポスドク研究員、2003年産業技術総合研究所ポスドク研究員、2004年産業技術総合研究所入所、2013年計測標準研究部門粒子計測研究室長、現在物質計測標準研究部門粒子計測研究グループ長。本研究では、ディーゼル排気粒子及び気中ナノ粒子特性評価へのAPMの応用のほか、走査モード運転の提案、APM運転条件選択ツールの開発などを行った。



近年、健康や環境、安全への関心が高まり、産業分野でもクリーンルームの管理などで微粒子評価の重要性が広く認識されるなかで、従来、測定することができなかった微小質量領域にあるエアロゾル粒子の質量を測るために筆者らが考案したエアロゾル粒子質量分析器(Aerosol Particle Mass Analyzer: APM)の測定原理と、そのために開発した装置を様々な粒子特性評価に応用した事例などが紹介されているという点で、質の高い論文であると思います。

この手法によって、従来用いられてきた計測技術である電子天秤による質量計測の下限の0.1 μg、先細振動子マイクロバランス(TEOM)による質量測定範囲の 10^{-11} gから 10^{-5} g、飛行時間型の質量分析器(TOF-MS)による質量測定範囲の 1.7×10^{24} gから 1.7×10^{18} gではカバーできなかった 3×10^{18} gから 2×10^{12} gの領域でのエアロゾル粒子の質量が評価できるようになったということは極めて画期的です。

2019年5月20日にキログラムの定義が130年ぶりに改定され、原器による定義からプランク定数による定義へ移行し、質量標準の分野でも、これまで測定することができなかった0.1 μg以下の領域での質量計測ニーズが高まっています。新しい測定領域の開拓という点でとてもタイムリーな論文であると思います。

コメント(一村 信吾:早稲田大学)

エアロゾル粒子質量分析器(APM)原理考案から装置開発、さらには実用化・製品開発に向けての様々な課題克服、およびAPMの波及効果としての(主として他者による)様々な粒子特性評価技術の開発までをコンパクトにまとめた論文です。「研究の目標設定と社会的価値、それに至る具体的なシナリオや研究手順、要素技術の統合のプロセスを記述」することを目的としたSynthesiologyの研究論文として掲載に値すると思います。

議論2 エアロゾル粒子質量分析器(APM)の測定原理とその不確かさ

質問1(藤井 賢一)

3.2節にAPMによるエアロゾル粒子の質量測定についての原理が説明しており、同じ角速度で回転する内外筒間に電圧を印加し、帯電した微粒子の質量と電荷との比(質量電荷比)によって粒子を分級するという事は理解できますが、具体的に粒子の質量を導くのに必要な測定パラメーターや誘導式などについての記述がありません。このことを具体的に記載すると、読者がこの測定原理をより深く理解できるようになると思います。

回答1(榎原 研正)

APMの分級特性はAPM伝達関数により特徴付けられ、APMで得られる実験データは伝達関数を用いて表すことができます。これらについての簡単な説明を3.2節に追加しました(改訂稿の式(3)を含むパラグラフ)。伝達関数についての詳細な説明については、引用文献を参照ください。

質問2(藤井 賢一)

APMによる質量計測は、粒子一粒の質量を測るのではなく、質量分布を測定することになる、との説明がありますが、代表的な例、あるいは、最高精度が得られた例でも結構ですので、質量分布の測定における不確かさの考え方やその相対不確かさ、主な不確かさの要因などについても触れて下さい。

回答2(榎原 研正)

APMよりも測定の精確さに優れる(しかし測定の実用性には劣る)方法として、平面電極を用いて静電気力と重力の平衡から粒子質量を求める“Electro-gravitational Aerosol Balance (EAB)”をAPMの派生技術として開発しました(Ehara, K. Takahata, K. Koike, M. *Aerosol Sci. Technol.* 40, 514-520 (2006). および *Aerosol Sci. Technol.* 40, 521-535 (2006).)。EABは、単分散粒子

査読者との議論

議論1 全体について

コメント(藤井 賢一:産業技術総合研究所)

（粒径が均一な粒子）の質量を高精度に決定することができるため、日本での粒子質量・粒径の国家計量標準として産総研で利用されています。EABは100 nm準単分散ポリスチレンラテックス(PSL)標準粒子(約0.57 fg)に対して粒径(個数基準平均径)で0.66%、質量(個数基準平均質量)で1.9%の相対拡張不確かさ(包含係数2)を実現しています。EABについては、本論文に含めることを当初は検討していましたが、論文の焦点が散漫になることを避けて、含めないことにしました。

APMは、50 nmから800 nmの粒径範囲のPSL粒子について、EABに基づいて決定した粒子質量と5%の範囲で一致することを確認しています(文献7)。

質問3(藤井 賢一)

3.3節で内側電極を外側よりも高速に回転するように設計されたクウェット遠心粒子質量分析器(Couette centrifugal particle mass analyzer; CPMA)についての説明がありますが、このなかで「クウェット流」という用語が出てきます。脚注などで説明して頂けると、この測定原理の特徴が理解できるようになると思います。

回答3(榎原 研正)

3.3節脚注にクウェット流についての説明を追加しました。

議論3 先細振動子マイクロバランス(TEOM)による質量計測の信頼性

質問1(藤井 賢一)

3.4節で先細振動子マイクロバランス(TEOM)による質量測定が 10^{11} gから 10^5 gの領域をカバーしているとの記述がありますが、振動原理を用いているので、質量と振動数との関係を校正するのが、トレーサビリティを確保するという点では難しい部分であると考えられます。通常、TEOMではどのような方法で質量標準へのトレーサビリティを確保しているのか、簡潔で結構ですので説明して下さい。

回答1(桜井 博、榎原 研正)

TEOMは、先細振動子の先端に交換可能な粒子捕集用フィルターカートリッジを取り付けた状態でエアロゾルを連続吸引し、フィルター上に捕集された粒子の質量を振動子の固有振動数の変化から求める原理となっています。校正は、天秤によってあらかじめ質量を正確に求めたフィルターカートリッジを取り付けたときと取り外したときの固有振動数をそれぞれ求めることにより行われます。

質問2(藤井 賢一)

TEOMによる粒子質量の測定では、質量と固有振動数との関係を、天秤によってあらかじめ質量を校正しておいたフィルターを振動子に取り付けたときと取り外したときの固有振動数の変化から求める、ということが確かに幾つかの文献に記載されています。しかしこの場合、天秤による質量測定の下限(0.1 μg)を振動原理によってより小さい領域へと外挿することになるので、この外挿がどの程度正しいのかということが問題になると思われます。また、振動子に取り付けたフィルターに粒子がトラップされるので、振動子・フィルター・粒子の系にばねで結ばれた何らかの力学的なカップリングがあれば、粒子の質量が固有振動数に正しく反映されない可能性もあります。このため、本当に10 pgまで正しく外挿できるのか、という意見もあり、振動原理による質量測定の信頼性を疑う声も質量標準の分野では少なくありません。

その一方で、振動原理にもとづく質量計測は感度が極めて高いので、この原理を積極的に応用しようとする動きが特にMEMSの分野を中心にあるのも事実です。

図4にTEOMによる質量測定の範囲が示されていますが、1 pgあたりでTEOMとAPMによる両者の測定結果を比較できると信頼性の向上に繋がると思います。原理の異なる方法によって測定した結果が整合するかどうかを検証した事例は過去にあるのでしょうか。

回答2(榎原 研正)

異なる原理による測定の検証については、EAB(議論2に対する回答参照)で測定した質量値と、別途測定した粒子密度とから算出した粒径の値が、他の原理による粒径測定結果と比較された例があります(Germer, T. A. *et al.*, *Proc. SPIE*. 4779: 60-71, 2002)。同一ロットの100 nmポリスチレンラテックス粒子に対して、EABによる私たちの値(100.8 nm ± 0.67 nm)と微分型電気移動度分析器(DMA)を用いてNISTが得た値(100.7 nm ± 1.0 nm)はよく一致します。APMとEABの間の整合性については議論2に対する回答の通りです。このようなことからEABやAPMは私たちが期待する水準の信頼性を有していると考えています。

EABやAPM等で質量を決定した単分散粒子を気体中に既知濃度で発生し、これをTEOMの測定試料とすることでTEOMの信頼性の検証が可能かも知れません。ただし、私たちはTEOMについて専門的知識を有しておらず、実際にこのような方法が実現可能かどうかは不明です。現時点でTEOMの信頼性がどのように確保されているかの詳細について、残念ながら私たちの調査の範囲で確認することはできませんでした。

議論4 製品化に向けた研究における知的財産の考え方

質問・コメント1(一村 信吾)

新しい計測装置の原理考案から製品化を目指す場合、一般的には、関連する知的財産(特許等)の創出・獲得が一つの大きなターゲットになるはずですが、しかしこの論文では、その観点での記述がありません。

本研究の推進に際して、知的財産をどのように位置づけて展開してきたか(仮に知的財産の獲得をあえて目指さなかった場合はそれに対する考え方)を加えて頂くと、読者の思考を深めるものと思います。ご検討をお願いします。

回答1(榎原 研正)

知的財産については確かに記述していませんでしたので、5.1節に特許取得に関する記述を付け加えました。

質問・コメント2(一村 信吾)

コメント1に対する回答を拝見しました。ご指摘のように、構想段階での知的財産の創出について追記(日米での基本的な特許出願に関して記載)頂いたことを確認しました。但し、本コメントの主眼は、企業との共同研究を進めて装置の改良を重ね、最終的な実用化(製品化)展開を進める上で、公的研究機関の立場としてどのような考え方を持っていたかを明らかにして頂くことにあります。例えば、改訂原稿の記述の中でも、

① 11 ページ

「1995年にAPMの最初の試作機(以下ではプロトタイプ装置と呼ぶ)が完成」

② 12 ページ

「正負電極の絶縁方法を工夫して問題の現象が生じないようにした第3世代装置を2003年に試作」

③ 14 ページ

「電極電圧を時間の関数として階段状でなく連続的に変化させる走査モード運転」

④ 14 ページ

「粒子質量に応じた最適な運転条件を選択するツール“APM operation diagram”を提案」

など、製品化展開に向けての知的財産創出の可能性を示唆する多くの記述を見いだせます。

このような場合に、製品化に向けた知的財産の獲得(場合によってはノウハウとしての秘匿)に関してどのように考えて共同研究を展開したかについて更に記述頂くことは、本格研究を目指す読者にとっても有益だと思います。ご検討をお願いします。

回答2（榎原 研正）

知的財産の扱いは、「構成学」の中で確かに重要なテーマであり、適切な戦略をもって臨むべき課題と考えます。しかし、知的財産について十分な見識と戦略をもって研究を展開してきたとは言えず、残念ながら論文中に記載できるような内容が思い当たりません。

公的機関が得た知的財産は社会で広く活用されるよう、その特許申請は原理特許にとどめるなど抑制的に行うことが適当だと思います。APM についての特許は結果的にそのような状況になりました。一方 DMA (3.2 節参照) は、1950 年代に現在の設計に近いものが開発されましたが、特許権が設定されなかったことで様々な研究者が研究対象として心理的に取り上げやすくなり、その結果、装置の改善や高度化についての研究や普及が進んだという側面があったと思われまます。これを見習って APM についても特許申請をしない選択肢はあったかもしれません。ただしこの場合、複数の企業が市販化を検討する可能性があるため、逆に市販化に踏み出しにくい可能性もあります。知的財産の扱いは、市場規模や様々なリスクを考慮した上で検討する必要があると思われ、今から振り返って分析しても、何が正しい選択枝だったか判然としません。公的機関による知的財産の扱いについて、もし何らかの御提言がありましたらお聞かせ頂ければ、今後の参考にさせていただきますと思います。

追加質問・コメント（一村信吾）

質問に対する回答を拝見しました。私としてはそれを本文中に記載頂くことで、構成学的な検討の加わった論文になると考えます。例えば「5.5 節 研究開発における知的財産の考え方」という形で記入頂くのも一案と考えますが、論文の体裁に係りますので、最終判断は著者にお任せします。

回答（榎原研正）

本文中に節を追加する形はとらず、査読者とのコメントの形で経緯を記載する形にさせていただきます。

議論5 将来への発展性について

コメント1（藤井 賢一）

2019 年 5 月 20 日にキログラムの定義がプランク定数に移行しました。質量計測のトレーサビリティは物体の質量 m をプランク定数 h に関係づけることによって実現できるので、国際度量衡委員会 (CIPM) の質量関連量諮問委員会 (CCM) がまとめた「キログラムの新しい定義の実現方法 (mise en pratique)」では、そのための代表的な測定方法として、ワット (キップル) バランス法と X 線結晶密度法が紹介されています。原理的には比 h/m をトレーサブルに測る方法であれば、どのような方法を用いてもよいことがこの mise en pratique に記載されています。APM の場合、どのようなルートをたどって h に繋げることができるのでしょうか。概念的な説明でも結構です。何と何をトレーサブルにする必要があるのでしょうか。

また、SI として新たに定義された電気素量 e やボルツマン定数 k などを活用しても微小質量を測ることができる可能性もあるかと思えます。エアロゾル粒子の場合で結構ですので、測定原理の開発における将来的な方向性や将来有望になると思われる要素技術などがあれば紹介して下さい。

回答1（榎原 研正）

APM より原理が単純な EAB (議論 2 の質問 2 に対する回答参照) のトレーサビリティについてまず説明します。簡単のため、対象粒子がすべて同一の質量 m を有する 1 価帯電粒子であるとの理想的な状況を想定します。EAB は、粒子に働く静電気力 eV/H (e : 電気素量、 V : 印加電圧、 H : 電極間距離) と重力 mg (g は重力加速度) が平衡するときの電圧 V を測定していると考えられます。2 つの力の平衡の式から質量 m は

$$m = \frac{eV}{gH} \quad (\text{A})$$

と求まります (現実の粒子は PSL 粒子であっても有限の質量分布幅を有するため、実際の EAB 測定でこの式を使うわけではありませんが、トレーサビリティの考え方は同じです)。改定後の SI では、 e は定義値、 V はジョセフソン電圧標準を経由して e, h , および $\Delta\nu_{\text{Cs}}$ (セシウム原子基底状態の遷移周波数) に、また H と g はいずれも c (光速) と $\Delta\nu_{\text{Cs}}$ に繋がります。これらから、粒子質量 m は究極的には、 $e, h, c, \Delta\nu_{\text{Cs}}$ の 4 定数にトレーサブルにすることが可能となります。

APM では、式 (A) の重力加速度にかえて電極回転に伴う遠心加速度が入り、また電場強度 V/H が動径座標依存性のある表式にかわりますが、トレーサビリティの遡及先については同じです。

今回の SI 改定が将来的に微小質量測定技術の発展に繋がるかもしれないと安易に予想することはできないと考えています。その理由の一つは旧キログラム原器へのトレーサビリティのありかたです。APM や EAB による粒子質量測定のトレーサビリティは、すでに旧 SI においても、キログラム原器に直接繋がっていたわけではなく、式 (A) で説明したように電圧標準の現示等を通してプランク定数 h や電気素量 e に繋がっていました。SI 改定でこれらの定数の不確かさがゼロになったことは、粒子質量測定の不確かさを低減し原理的には寄与するものの、これら由来の不確かさ成分はもともと無視し得る大きさでしかありません。言い換えると、粒子質量測定において、質量単位が巨視的人工物に依存していることが本質的障碍になっていたという状況は SI 改定以前からすでになかったということになります。

今回の SI 改定は、素粒子等に関わる微視の世界での測定にはすでに大きな恩恵を与えていますが、それは不確かさが小さくなるという点での恩恵であって、これまで測れなかった大きさの質量が測れるようになるわけではありません。将来的に新しい微小質量測定技術が開発され、それが今回の SI 改定に本質的に依存しているということはあり得ると思いますが、それが生じるのはまだだいぶ先のことのように思います。

コメント2（藤井 賢一）

EAB と APM による粒子質量測定におけるトレーサビリティの考え方を示して頂き有難うございました。キログラムをはじめとする今回の SI 定義改定では、プランク定数 h の不確かさがゼロになったので、原子干渉の原理を応用することで原子や素粒子の質量の他に微細構造定数の不確かさが確かに低減しました。SI の定義改定では、現在の不確かさを低減させるだけではなく、将来の技術革新にも通用するような定義しておくことが重要だと考えられています。長さが光速によって定義された結果、その後、光周波数測定の分野においていくつかの技術革新が誕生しました。粒子やエアロゾルの分野でも、今回の APM の開発が引き金となり、更なる技術革新に繋がることを願っています。