

# Ion-beam manipulation and liquid-droplet dynamics in a vacuum explored with the aid of computational approaches

飯田, 岳史

<https://hdl.handle.net/2324/7182302>

---

出版情報 : Kyushu University, 2023, 博士 (理学), 課程博士  
バージョン :  
権利関係 :



氏 名 : 飯田 岳史

論文名 : Ion-beam manipulation and liquid-droplet dynamics in a vacuum  
explored with the aid of computational approaches  
(真空中のイオンビーム制御と液滴ダイナミクスの探究：計算機活用  
による実験支援)

区 分 : 甲

## 論文内容の要旨

原子クラスターは原子数が数個から数十個からなる原子の集合体であり、その物性は原子の数に依存してバルクともナノ粒子とも異なった物性を有する。光解離分光や光電子分光はクラスターの安定性や構造、電子構造に関する知見を与え、レーザー、質量分析、イオンビーム・トラップなどの実験技術に支えられている。特に、気相クラスター分光法の発展は、イオン化技術やイオントラップ、質量分析技術の発展と不離一体である。中でも Gerlich が先鞭をつけた線形イオントラップは、ヘリウムを緩衝ガスとして充填したイオントラップ中での熱交換過程でイオン種の温度制御が可能のほか、リフレクトロン型飛行時間質量分析計と組み合わせて広く光解離分光に使用されるなど、絶えず技術開発が続けられて分子科学分野の発展に大きく貢献している。さらに最近では、小さな分子・クラスター種からミクロンサイズの液滴までが気相研究の対象となり、中でも真空中で急速に蒸発冷却される液体が、過冷却深部の未踏温度領域の探索手法として注目されている。例えば、自由電子レーザーX線回折とOH伸縮振動モードのラマン散乱スペクトルから、過冷却領域での氷形成が報告されている。以上の背景から、本研究は、イオンビーム制御・トラップなど実験装置の開発や、多重光散乱・高速画像測定など大容量の実験データの解析に、コンピュータサイエンスの利点を活用し、これらの気相研究を推進することを狙いとした。学位論文は、イオンの飛跡の数値シミュレーション手法を装置設計・製作に展開した第1部と、真空中の水滴の蒸発冷却過程を先端的な観察実験と計算機科学に基づくデータ解析手法で探究した第2部とで構成されている。

序に続く第1部では、第2章で、イオン光学設計ソフト SIMION を用いた数値計算法を研究手段として装置開発を行った。具体的には、リフレクトロン型飛行時間質量分析計のイオン集束性能を改善し、検出効率を向上することを目的とした。まず、従来のリフレクトロンについてイオンの飛跡を計算して課題を洗い出し、イオンがリフレクトロン開口部の中心から外れた場合に集束性が低下することを突き止めた。そ

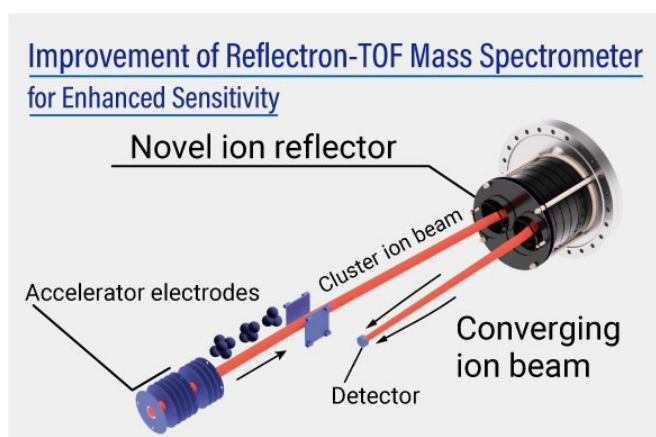


Figure 1. Conceptual graphics of the improved reflectron time-of-flight mass spectrometer.

の上で、入射、出射のそれぞれに開口を設けた新たなリフレクトロンを考案した。線形イオントラップから引き出した  $\text{Ag}_3^+$  を想定したシミュレーションで設計を最適化し、実機の製作までを行って、イオンビーム集束性能と質量分解能を評価した。その結果、線形イオントラップから引き出した空間的に比較的大きく広がった  $6.3 \text{ cm}^3$  の気相イオンを、検出器にて  $10 \text{ mm}$  以下のビーム径に集束させることに成功した。また、飛行時間スペクトルを測定し、 $\text{Ag}$  の同位体 ( $^{107}\text{Ag}$  と  $^{109}\text{Ag}$ ) の組み合わせに由来する 4 本のピークを明瞭に分離する質量分解能を有することを実証した (Figure 1)。

第 3 章では、SIMION をさらに高度に活用し、線形イオントラップに捕捉されたイオンの空間分布を予測するためのシミュレーション手法の構築に取り組んだ。交流電場内を飛行するイオンの飛跡を計算してイオンの空間分布を得るとともに、緩衝  $\text{He}$  ガスの温度や捕捉する総イオン量の効果を取り入れた計算を行った。実験値との比較には、光解離分光で測定した線形イオントラップに捕捉した  $\text{Ag}_2^+$  イオンの断層分布を用いた。八極子および四極子型の線形イオントラップに対して、種々の条件で実験データを定量的に再現する結果を得て、トラップ内のイオン分布のシミュレーション手法を確立した。

第 2 部の 4、5 章では、真空中で蒸発冷却される水滴を実験対象とし、各種計測法で測定するとともに (Figure 2)、計算機を駆使したデータ解析を行った。まず第 4 章では、液滴径の精密計測法となる **whispering gallery mode** をラマン散乱スペクトルの  $\text{OH}$  伸縮振動領域で検出し、初期直径  $40 \mu\text{m}$  の水滴の時々刻々のサイズ変化を測定した。真空導入後の蒸発による水滴径の減少が観測され、**Knudsen** の蒸発速度理論と一致した。過冷却深部では、時間を追って撮像したレーザー光の散乱画像に対して、深層学習により自動化された画像判定を適用して樹状結晶の形成時刻を特定し、凍結核生成速度を算出した。得られた測定値はこれまで報告のない  $232\text{--}235 \text{ K}$  での均質凍結核生成速度を与え、 $235 \text{ K}$  以上の測定値の外挿値と概ね一致した。

第 5 章では、最先端の超高速カメラを用いて撮像した水滴画像の一つ一つを数値解析し、算出した水滴外形のアスペクト比から生成時に誘起された四重極振動を捉えた。振幅の減衰時間から粘性を、振動の周波数から表面張力を、それぞれ評価した。さらに、凍結核生成後の分裂過程を観測し、 $40 \mu\text{m}$  の水滴が 80% もの高い確率で分裂することを突き止めた。この水滴は、大気中観測で予想されている分裂の最小サイズ ( $50 \mu\text{m}$ ) よりも小さく、真空中に特有と考えられる新たな分裂現象を見出した。

以上、第 1 部のイオンの飛跡・分布の数値解析では、質量分析のほか光解離分光など気相分光法を高度化する成果を、第 2 部では過冷却領域の水の物性のいくつかを明らかにする成果をそれぞれ上げ、気相物質の物理化学の発展に寄与する研究を展開した。

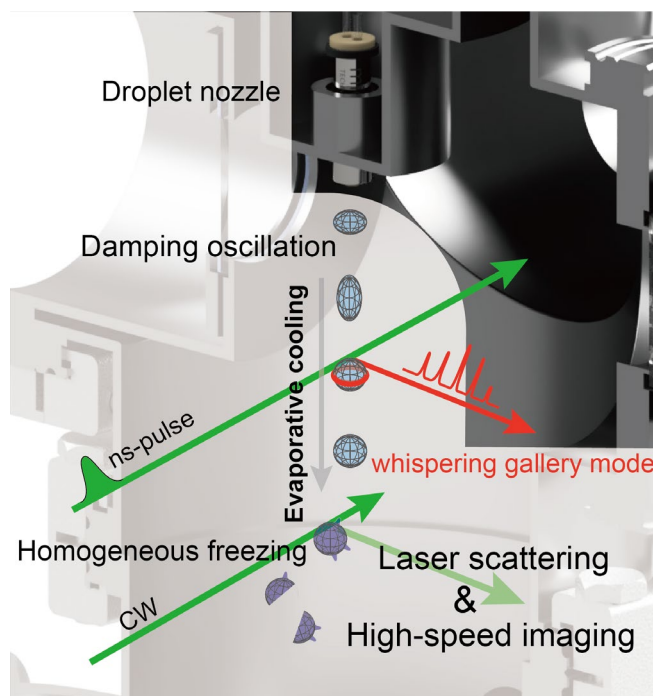


Figure 2. Conceptual graphics of evaporative cooling of water droplets in vacuum.