

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)			
論文調査委員	主 査	九州大学	教授	寺寄 亨
	副 査	九州大学	教授	中野 晴之
	副 査	九州大学	教授	加納 英明
	副 査	九州大学	准教授	大橋 和彦
	副 査	九州大学	准教授	堀尾 琢哉

論 文 審 査 の 結 果 の 要 旨

近年、計算機を駆使した科学の発展が目覚ましく、化学の分野においても、大規模な量子化学計算や分子動力学計算、さらには機械学習を取り入れた種々の探索・解析など、計算化学・情報化学が新たな研究手法として重要性を増している。このような背景のもと、飯田岳史氏は、計算機を活用して実験研究を高度化することに着眼し、計算機シミュレーションに基づいた新たな実験装置の開発と、画像観察など大容量のデータを扱う実験とその解析に基づく化学現象の解明を研究テーマとした。具体的には、(1)質量分析計に関連するイオンビーム・イオントラップの制御性を解明するイオン軌道シミュレーション、(2)真空中という極限環境下で過冷却領域の水液滴の挙動を解明する観察実験とそのデータ解析に取り組み、前者を第 1 部、後者を第 2 部として学位論文を構成した。

序に続く第 1 部では、イオン光学設計ソフトウェア SIMION による数値計算法を研究手段として、イオンビームの制御およびイオントラップの特性解明を行った。第 2 章では、イオンを静電場で折り返す方式のリフレクトロン型飛行時間質量分析計について、反射後のイオンの集束性能の改善を具体的なテーマとした。まず、従来のリフレクトロンについて種々の初期条件でイオンの飛跡を計算し、リフレクトロン開口部の中心から外れたイオンが集束性の低下を引き起こすことを突き止めた。そこで、入射、出射の両者が開口の中心を飛行するように、2つの開口を設けた斬新なリフレクトロンを提案し、線形イオントラップから引き出した空間的に大きく広がった Ag_3^+ イオンを想定したシミュレーションを行って設計を最適化した。その設計に基づいて実際に装置を製作し、イオンビーム集束性能と質量分解能を評価した結果、 6.3 cm^3 の空間に広がった Ag_3^+ イオンを、検出器上で 10 mm 以下のビーム径に集束できることを実証した。また、実測した飛行時間質量スペクトルで、 Ag の同位体 (^{107}Ag と ^{109}Ag) の組み合わせに由来する 4 本の質量ピークを明瞭に分離することができ、検出効率の向上とともに十分な質量分解能を有する質量分析計の開発を成し遂げた。

第 3 章では、自身でのプログラミングも交えて 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シミュレーション手法の構築に取り組んだ。交流電場内のイオンの運動に加え、イオン間の静電反発の効果や緩衝 He ガスとの衝突による温度制御の過程も取り入れて、実際の実験と同等の条件でシミュレーションを行い、長時間にわたって計算し

たイオンの飛跡を積算してイオンの空間分布を得た。先行研究で線形イオントラップ中の Ag_2^+ イオンの断層分布が測定されており、この実験データとの比較で、シミュレーション手法の有効性を検証した。その結果、八極子線形イオントラップ中では、イオン間反発の効果が強く影響し、トラップ中央部よりもむしろ周縁部にイオンが分布するリング型の分布形状が再現されたとともに、リングの直径、厚み、最大イオン密度などに関して定量的な一致を示し、本手法の信頼性が確認された。さらに、中央部にイオンが分布する四極子型トラップの動作も再現し、今後、実験の目的に応じたイオントラップの設計手段となる高度なシミュレーション手法を確立した。

一方、第2部では、計算機を駆使して新たな化学現象を解明する実験・解析に取り組んだ。具体的な研究対象は、真空中の水液滴である。真空中に発生した水液滴は、急速な蒸発冷却過程の後、過冷却状態を経て凍結に至る。発生から凍結までの所要時間に関しては先行研究での実測例があるが、蒸発の速度、凍結核の生成速度、また液滴の形状変化などが未知だった。

第4章では、まず蒸発速度を時々刻々の液滴径の変化から議論するために、真空中での液滴径の精密測定法を提案し、実験を行った。具体的には、レーザー光照射で誘起される OH 伸縮振動領域のラマン散乱スペクトルに、液滴外周に共鳴する **whispering gallery mode (WGM)** が現れることを利用し、モード間の波長間隔から液滴径を算出した。この方法で初期直径 $40\text{ }\mu\text{m}$ の液滴の蒸発速度を測定し、**Knudsen** の蒸発速度理論と合致する結果を得た。さらに、凍結に至る過冷却深部では、時間を追って撮像したレーザー光の散乱画像に対して、深層学習で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。これらの測定値は、これまで報告のない温度領域 $232\text{--}235\text{ K}$ の均質凍結核生成速度を与える成果となった。

第5章では、液滴の形状変化を捉える実験として、発生直後の液滴を最先端の超高速カメラで撮像した。時々刻々の液滴画像の一つ一つを数値解析して液滴外形のアスペクト比を算出した結果、液滴発生時に誘起された四重極振動を捉えた。振動の周期から表面張力を、振幅の減衰時間から粘性をそれぞれ評価し、大気中に比べ真空中で、つまり室温よりも過冷却領域で、表面張力と粘度がともに増加する結果を得た。さらに、凍結核生成後の液滴分裂過程を観察し、 $40\text{ }\mu\text{m}$ の水液滴が 85% もの高い確率で分裂することを突き止めた。これは、大気中で分裂を起こすことが予測される最小サイズ ($50\text{ }\mu\text{m}$) よりも小さく、真空中に特有と考えられる新たな現象を見出した。

第6章では、第4章で導入した **WGM** による液滴径測定に関して、測定精度をさらに高める手段として、白色光レーザーを **Stokes** 光とする **broadband coherent anti-Stokes Raman scattering (CARS)** の利用が提案されている。直径 $10\text{ }\mu\text{m}$ の球状ポリスチレンを試料としたテスト実験で、**CARS** スペクトルの幅広い非共鳴信号領域に 10 本もの **WGM** が観察された。この結果は、第4章の OH ラマンバンドに現れた **WGM** が 5 本程度だったことに比べ、さらに高精度な測定を可能とする結果であり、この手法の今後の発展性が示された。

以上のように、飯田岳史氏は、真空中の気相化学種を研究対象として、質量分析計におけるイオンビーム集束性能の向上、イオントラップ中のイオン種の空間分布の制御、さらに水液滴の蒸発冷却・凍結過程の観察・解析による過冷却水の物性研究を例に、計算機を活用した実験研究の高度化を展開し、新たな実験装置の開発ならびに化学現象の解明を行った。これらの成果は物理化学分野の研究に独自の方法論を持ち込んだ点で、極めて学術的意義の高い研究成果である。

よって、本研究者は博士（理学）の学位を受ける資格があるものと認める。