

クラスターイオン生成装置の開発2

中井 陽一¹、小島 隆夫¹、日高 宏²、渡部 直樹^{3,4}、藤田 和之⁵、中坪 俊一⁵、
中鉢 健太^{5,6}、森 章一⁵、新堀 邦夫⁵、千貝 健⁵、福士 博樹⁵

1. 独立行政法人理化学研究所
2. 低温科学研究所宇宙雪氷学分野
3. 低温科学研究所共同研究推進部
4. 低温科学研究所宇宙物質科学分野
5. 低温科学研究所技術部
6. 工学院工学系技術センター

背景と目的

微粒子が生成する際の凝結核となるナノスケールの原子や分子の集団（クラスター）は、地球大気におけるエアロゾルや雲粒子の生成過程に深く関与しており、大気科学において重要な研究対象である。微粒子の凝結核の生成過程としては複数のシナリオが考えられているが、近年、注目を集めているシナリオの一つとして、イオン誘発核生成過程がある。これは、大気中に生成されたイオンが電荷を持っているために、大気中の分子を引き寄せ凝集することにより、帯電したクラスター（クラスターイオン）を生成するという過程である。大気中では、宇宙線などの自然現象や人為的要因による分子の電離によってイオンが生成されており、イオン誘発核生成が微粒子生成に果たす役割は無視できないと考えられている。しかしながら、核生成過程は、熱力学的アプローチによる古典核生成の理論[1]をもとに研究されることが多く、結合分子数が比較的少ないクラスターイオンに関する成長過程は定量的に十分な理解がなされていない。現在のイオン誘発核生成の実験的研究は、放射線源や高エネルギーイオンによって、実際の大気または疑似大気（試料大気）の中で電離現象を引き起こし、生成された微粒子の数密度やサイズの試料大気の化学組成に対する依存性などを調べるものがほとんどである[2, 3]。この種の実験では、様々なイオンや反応性の高い中性の原子団（ラジカル）が同時に生成されるため、反応経路の絞り込みが困難であり、クラスターイオンの生成過程をクラスターイオン種ごとに詳細に研究することが難しくなる。

このような背景をふまえて、比較的結合分子数の少ないクラスターイオンの生成過程を詳細に研究するために、イオン誘発核生成の引き金になるイオン（種イオン）の生成領域とクラスターイオンが成長生成する領域を分離し、種イオンを選別してクラスターイオン生成を行うための装置の開発を行っている。

実験装置の概略と装置開発の現状

現在、テスト実験を行っている実験装置の概略図を図1に示す。実験装置は、昨年度の技術報告[4]に記載されている通り、真空容器内部で、イオン源部、移動管部、分析管部に分かれている。イオン源部は、種イオンを生成・選別し、移動管部に入射する役割を

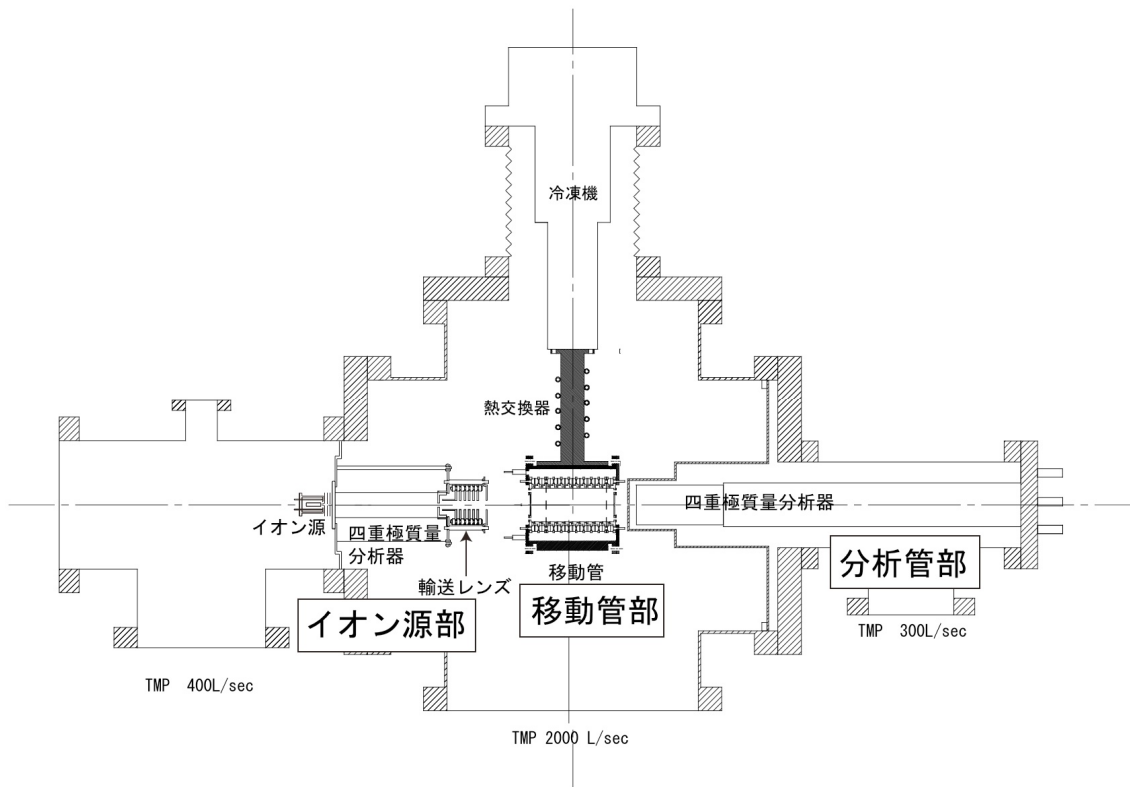


図1 現在の実験装置の概略図。イオン源部のイオン源と四重極質量分析器の間に差動排気用の隔壁を移動した。

持ち、イオン源と四重極質量分析器、イオン輸送レンズで構成されている。移動管部は、ガスで満たされた容器の軸に沿った方向へ一様な電場が加えられている移動管と、移動管の温度を調節する冷凍機とヒーター、および熱電対からなる。移動管内部では、イオンはガス分子と衝突し、ある確率で結合反応を起こし、クラスターイオンを形成していく。クラスターイオンは移動管内部の電場によって移動管内を通過し、移動管から出ると分析管部へ入射される。分析管部では、移動管部から入射して来たクラスターイオンなどの各種イオンの質量分析を四重極質量分析器を用いて行う。

イオン源部は昨年度の技術報告[4]の段階からいくつかの変更を行った。一つ目は、イオン輸送レンズの下流にあったイオン源部と移動管部の真空差動排気の隔壁を、イオン源と四重極質量分析器の間に移したことである。以前の隔壁の位置では、差動排気のための小さな孔にイオンを効率よく通過させるためには、どうしてもイオン輸送レンズと隔壁との間で非常に大きな加速を要した。この場合、質量分析後にイオン源に導入された気体との衝突によるイオンの解離を誘発する恐れがあった。そのため、隔壁を移動させることにより、イオン輸送中での大きな加速部分を取り除いた。また、その際に、隔壁をイオン源が格納される真空クロス管側に取り付けることにより、イオン源部を簡単に装置から切り離すことができ、メンテナンスが容易となった。

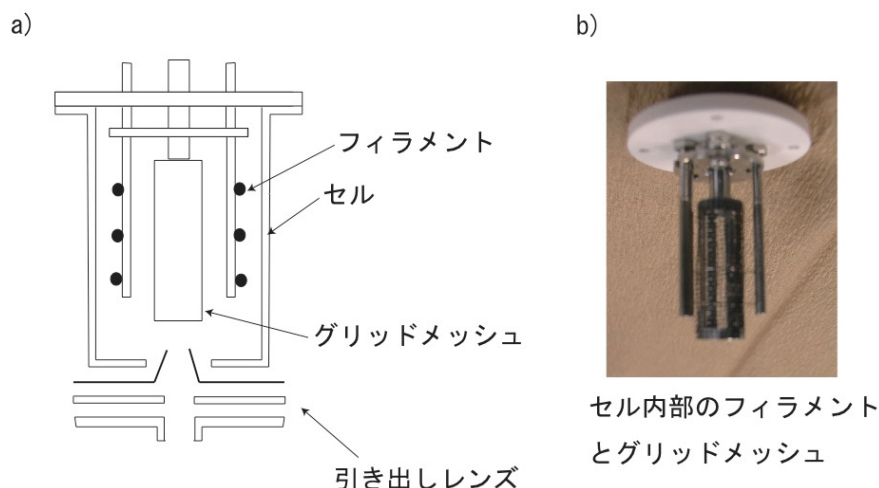


図 2 新しく製作・導入したイオン源。a) イオン源の概略図。フィラメントから放出された熱電子がグリッドメッシュに向かって加速され、グリッドメッシュ内部および周辺を飛び回り分子を電離することにより、イオンを生成する。b) セル内部のフィラメントとグリッドメッシュの写真。

二つ目は、イオン源を、電子線交差型イオン源から、図 2 に示すような形式のイオン源を製作し、それに変更したことである。フィラメントから放出された熱電子はフィラメントとグリッドメッシュ間の電圧によって加速され、イオン源の構造物のいずれかに衝突するまでグリッドメッシュ内部および周辺を飛び回り、イオン源内部の気体分子を電離する。このイオン源の変更により、希ガスのイオンの場合、質量分析後のイオン量は数倍から 10 倍程度かそれ以上の向上が見られ、移動管部および分析管部のテストが容易になった。

移動管部の構造については、昨年度の技術報告[4]に詳しく述べられているので、ここでは、クラスターイオンの質量分布測定時の移動管内部各電極への電圧供給と、イオンの移動管内部での移動速度測定のための方法を紹介する。クラスターイオンの質量分布測定時の移動管への電圧供給は、図 3 に示すような抵抗分割回路を製作し行っている。この抵抗分割回路による電圧供給と高精度で製作された移動管によって移動管中心軸上に一様電場が形成される。

ガスで満たされた移動管内部での各種イオンの移動速度を測定することが可能なように、図 3 に示した 2 ヶ所のシャッターメッシュ対の片側メッシュに電圧パルスを加えることが可能になるようにしている(図 4)。パルスが加えられていない時は、シャッターメッシュの所に電圧のくぼみが生じるようになっている。イオンはガス中での多数回の衝突により十分エネルギーが低くなっているため、このくぼみに捕まえられてシャッターメッシュなどの電極に衝突し、ほとんどのイオンはなくなる。そこに電圧パルスを加えることで、シャッターメッシュの電圧が上昇している間だけ移動管内に一様電場が

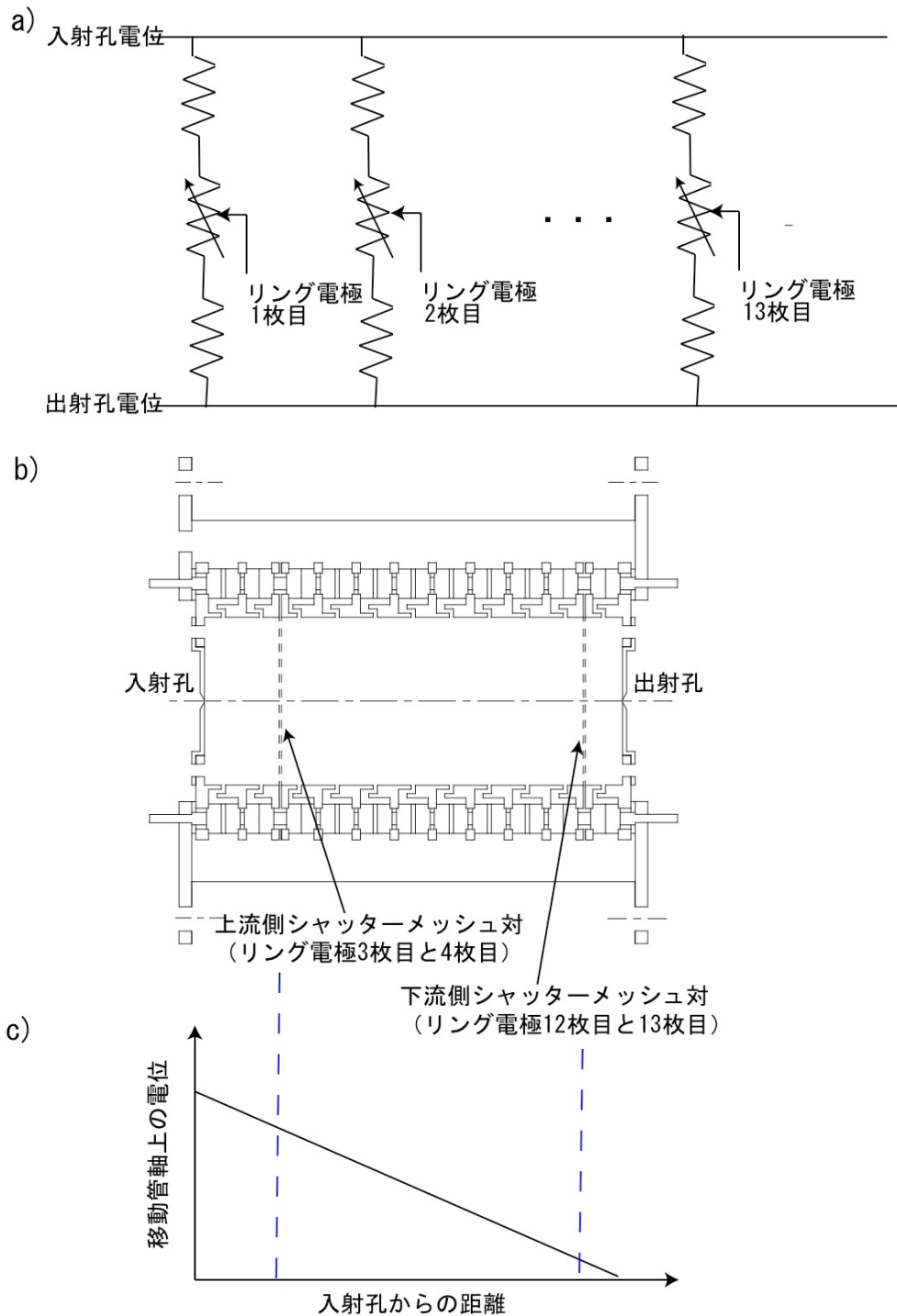


図 3 a) クラスターイオンの質量分布測定時の移動管内部の各電極への電圧供給回路の概念図。移動管軸上付近で一様電場が形成されるように抵抗値を決めている。 b) 移動管内部の断面図。14 枚のリング電極と上流側、下流側にそれぞれ 1 対のシャッターメッシュを備えている。 c) クラスターイオンの質量分布測定時の移動管軸上の電位の概念図。青破線はシャッターメッシュ位置を表す。

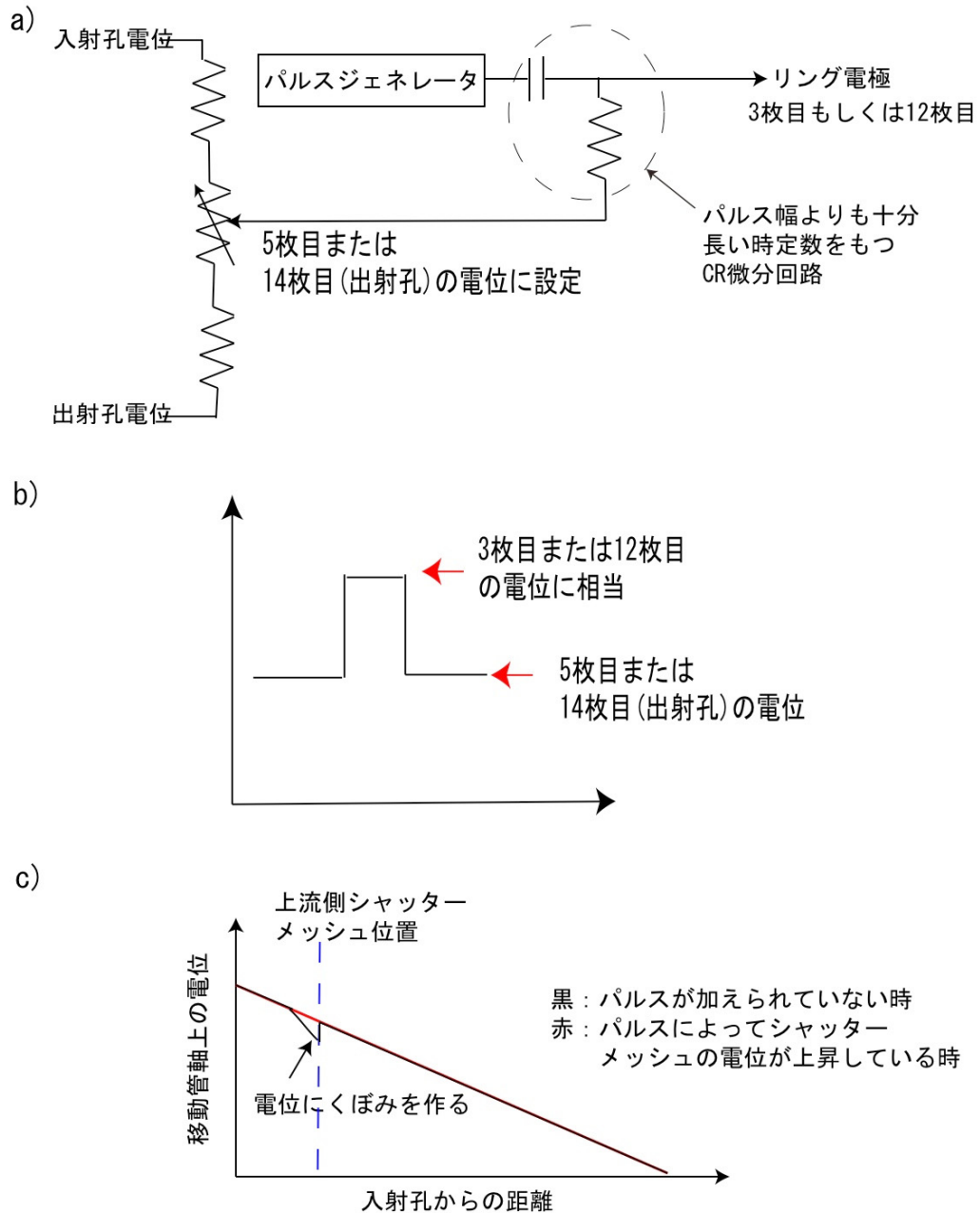


図 4 a) イオンの移動速度測定時のシャッターメッシュへのパルス電圧供給回路の概念図。3 枚目もしくは 12 枚目のリング電極に取り付けられたメッシュへ電圧を供給する。電位にくぼみを作るため、パルスを重畳する DC 電位は、5 枚目もしくは 14 枚目の電極電位とする。パルス幅より十分長い時定数の CR 微分回路を通して重畳するとパルス形状をほぼ損なわず重畳できる。b) シャッターメッシュへ供給されるパルス電圧波形の概念図。c) イオンの移動速度測定時の移動管軸上の電位の概念図。上流側シャッターメッシュにパルス電圧が供給される場合を示す。黒線はパルスが加えられていないときで、シャッターメッシュの付近に電位にくぼみが生じ、イオンは通過できない。赤線は、パルスによりシャッターメッシュの電圧が上昇しているときで、この時だけ一様電場になり、イオンは通過できる。

形成されるようにすると、イオンがメッシュ対を通過することができ、パルスを加えたタイミングと通過したイオンが分析管部のイオン検出器に検出したタイミングとの時間差を測定することができる。上流側のシャッターメッシュにパルスを加えた際の時間差 (t_1) と下流側のシャッターメッシュにパルスを加えた際の時間差 (t_2) の差 ($t_1 - t_2$) を取ることによって、移動管内部でのイオンの移動速度が測定できる。パルスを加えたタイミングは絶縁カプラを通してパルスジェネレータから取得する。現在は、装置全体の信頼性を確かめる目的で、移動管内部に数十 Pa のヘリウムガスを満たし、イオン源部からアルゴンイオンを導入して、ヘリウムガス中のアルゴンイオンの移動速度測定を行っている。

また、移動管の冷却試験を行い、マイナス 200°C 程度までは問題なく冷却でき、この実験の目的には十分な冷却能力をもつことを確かめた。ヒーターによる温度調節を準備しているところである。

まとめ

イオン誘発核生成過程を詳細に研究するために、クラスターイオン生成装置の開発を継続している。現在は、各種テスト実験を行い、装置各部分について問題点の洗い出しと修正を行っている。今年度中もしくは来年度の早期に装置を完成し、来年度には本格的な実験へ移行したいと考えている。

参考文献

1. Thomson, J. J., 1909. *Conduction of Electricity through Gases*, Cambridge University Press, London.
2. Nagato, K., Kim, C. S., Adachi, M. and Okuyama, K., 2005. An experimental study of ion-induced nucleation using a drift tube ion mobility spectrometer/mass spectrometer and a cluster-differential mobility analyzer/Faraday cup electrometer, *Journal of Aerosol Science* **36**, 1036-1049.
3. Imanaka, M., Tomita, S., Kanda, S., Fujieda, M., Sasa, K., Olaf Pepke Pederson, Kudo, H., 2010. Nanoparticle formation in H₂O/N₂ and H₂O/Ar mixtures under irradiation by 20 MeV protons and positive corona discharge, *Journal of Aerosol Science* **41**, 468-474.
4. 日高 宏, 小島 隆夫, 中井 陽一, 渡部 直樹, 中鉢 健太, 藤田 和之, 2009. クラスターイオン生成装置の開発, 北海道大学低温科学研究所技術部技術報告 **15**, 2009, 5-8.