

## 科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 27 日現在

機関番号：24403

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011 ～ 2012

課題番号：23654195

研究課題名（和文）正負イオン衝突による再結合反応を用いた、星間塵の生成に関する実験的研究

研究課題名（英文）Experimental research about production of interstellar dust using the mutual recombination reaction by a positive/negative ion collision

研究代表者

岩本 賢一（IWAMOTO KENICHI）

大阪府立大学・大学院理学系研究科・助教

研究者番号：00295734

研究成果の概要（和文）：

正/負イオン衝突による再結合反応を観測するための移動管分析装置を開発した。新規な移動管はポール電極と板状電極からなる新しい電極形状を有している。正/負イオンを効率よく移動管に打ち込むために、イオンファンネル型イオントラップを考案した。イオン軌道シミュレーション結果において、この移動管は高い分解能と通過効率を有していることを確認した。

研究成果の概要（英文）：

An ion mobility apparatus for observing the recombination reaction by positive/negative ion collision was developed. The new ion mobility has the new electrode form which consists of a pole electrode and a vane electrode. In order to inject positive/negative ion into an ion mobility at high efficiency, the ion funnel trap was designed. It has high resolution and high transmission efficiency in the ion simulation result.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,300,000	990,000	4,290,000

研究分野：低温イオン反応

科研費の分科・細目：惑星地球科学・地球宇宙化学

キーワード：再結合反応・低温イオン分子反応・移動管

## 1. 研究開始当初の背景

星間物質は一般に地球上に持ち帰って分析することが困難であるため、組成などの情報は分光観測によって得られている。さまざまな波長での観測結果から、星間物質は気体として存在する星間分子と固体として存在する星間塵に大きく分けられる。星間塵は無機物質（アモルファス氷やシリケートなど）や多環芳香族炭化水素（PAH）などで構成されていると考えられている。PAHが候補物質となる波長が観測されているが、実験室で得

られた PAH の赤外吸収スペクトルと完全には一致していない。星間空間の PAH は、単一の物質ではなく、多くの構造変化した物質であることが示唆されている。

星間空間のような低温領域での PAH の生成系路は、室温の生成経路と異なると考えられるが、その生成過程や生成物の構造は明らかにされていない。

星間空間のような極低温領域での反応は、室温で進行する反応とは異なり、エネルギーバリアーが存在しない反応が主となると考えられており、反応の候補として、イオン分

子反応、ラジカル反応、正/負イオンの再結合反応がある。中でも、衝突断面積が大きい正/負イオンの再結合反応は星間塵の生成過程として重要であると考えられるが、イオン分子反応や原子ラジカル反応に比べて、その報告例は非常に少ない。その理由のひとつとして、測定装置の特殊性や測定技術の困難さが問題となっていると考えられる。

正イオン負イオンの再結合反応を測定するための装置として、ビーム衝突によるマージング法とガス流を利用するフローチューブ法の2種類の方法がある。国内では M.Tuji らが Flowing afterglow 法を用いた中性化反応の研究を行っている。国外では A.Viggiano (2007, Int. J. Mass Spectrom.) が Flowing afterglow Langmuir probe (FLAP) 法を用いて再結合反応を観測している。

我々の研究室では、移動管装置を用いて、低温領域のイオン分子反応の研究を行っている。移動管装置の開発過程において、移動管の両端から正イオンと負イオンを同時に入射することにより、容易に移動管の内部で再結合反応が起こることを見出した。移動管の利点はイオンの運動エネルギーを電場により容易に制御でき、数十 meV から eV オーダー領域の低エネルギービームを生成することができる。また、反応温度を容易に制御でき、絶対圧力が容易に測定できるため、速度定数の絶対値が取得できる。

## 2. 研究の目的

正/負イオンの再結合反応を観測できる移動管装置を開発し、今までに報告されていない、低温領域における正/負イオンの再結合反応を観測するとともに、その速度定数を測定する。これらを観測するためには、新たな装置の開発が必須である。観測対象としては P A H の低温における生成過程を探索する。

## 3. 研究の方法

・種々の正イオンと負イオンの両イオンを生成可能するイオン源の作製。

従来のイオン源は気体状のイオンだけをイオン化することが可能であったり、水溶性の溶液をイオン化するのに適していたりする。今回、気体と液体の区別なく試料をイオン化できるイオン源を開発する。イオン化法としては、バリア放電を利用する。

・移動管の両端からイオンを打ち込む機構を有した移動管の開発。

移動管内部では、イオンは軸方向と径方向に拡散しながら下流に進む。移動度の測定においては、径方向に拡散しても比較的問題にはならない。しかしながら、今回行うイオン

の衝突において、イオンが径方向に大きく拡散すれば、イオンの衝突確率が低下する。そのため、径方向の拡散を抑制した新たな移動管を開発することが必要となる。

・移動管の実験条件で動作するイオントラップの開発。

正イオンと負イオンを連続ビームの状態でも移動管に入射させた場合、再結合反応が起こる場所が特定できず、再イオン化を行うことが困難となる。そのため、正/負イオンを一旦蓄積し、同じタイミングで移動管に打ち込むことで、再結合の場所が特定できる。そのため、連続ビームを効率よく蓄積するイオントラップを開発する。従来用いられている、イオントラップは、高真空下で利用されているため、移動管と結合することは困難である。そのため、圧力の高い領域でイオンがトラップできる装置を新たに開発する。

・反応により生成した分子を高い分解能で測定するための、質量分析計の開発。

飛行時間型質量分析計は分解能が高く、パル化したイオンを高い効率で分析が可能である。今回、リフレクトロン型質量分析計を開発する。

## 4. 研究成果

新しい移動管 (イオンモビリティ) 装置の構築を行った。径方向の拡散を抑制可能とする、新規なイオンモビリティ装置を考案した。各開発項目で得られた結果を個別に記載する。

・正負イオン源の開発。

誘電体バリア放電を用いたイオン化は不安定な試料について、正イオンおよび負イオン共効率よく生成が可能である。これは Low-Temperature-Plasma probe (LTP probe) と呼ばれ、生体分子のイオン化に利用され、

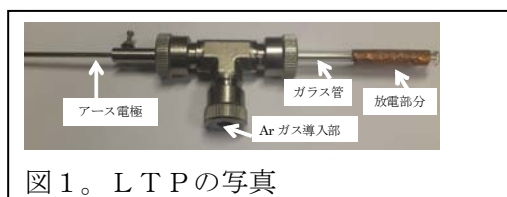


図1. LTPの写真

気体、液体試料のイオン化が可能であり、質量分析計に用いられている。誘電体バリア放電をおこなうためには、数 kV の交流電圧を出力する必要がある。今回、タイマー555 と自動車の点火プラグを用い、安価で放電を可能とする回路を設計し、LTPを製作した。LTPの全体像を図1に放電時の写真を図2にそれぞれ示す。

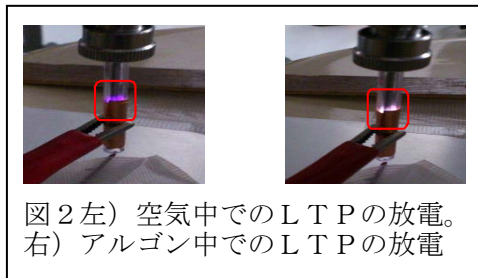


図2左) 空気中でのLTPの放電。  
右) アルゴン中でのLTPの放電

新たに作製したLTPプローブの放電を確認し、イオン量を測定した。イオン量はpA程度と非常に弱いため、イオン化の条件の最適値を探索し、改良する必要がある。

・新しい移動管（イオンモビリティ）装置の開発。

径方向の拡散を抑制できる新しい移動管の開発を行った。径方向のイオンの拡散を抑制する従来の装置として、オクタポールビームガイドが存在している。これは隣り合うポール電極に高周波を印加することで、イオンの拡散が抑制できる。オクタポールビームガイドを移動管に適用した場合、軸方向にイオンを移動させる電場が存在しないため、電極間でイオンが緩衝ガスと衝突し、失速してしまう問題点がある。そこで、ポール電極の隙間に、分割した板状の電極を設置し、軸方向に電場を形成させ、イオンを下流に移動させる機構を新たに考案した。

図3には今回採用したポール電極と板状電極の模式図を示す。

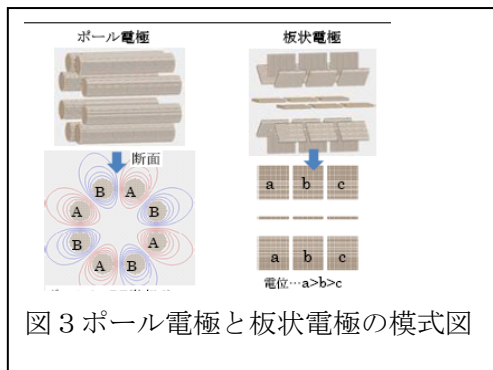


図3 ポール電極と板状電極の模式図

今回新たに考案した、マルチポール型イオンモビリティの模式図と電極内部のイオン軌道のシミュレーション結果を図4に示す。

イオン軌道シミュレーション結果より、イオンの径方向の拡散が抑制されていることがわかる。

板状電極の枚数が多くなると、ポール電極と板状電極の電位差が大きくなり、放電する問題点が発生する。今回、これを回避するために、板状電極3枚で構成されたイオンモビ

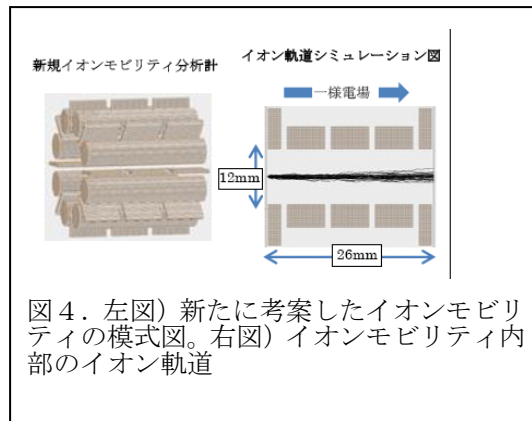


図4. 左図) 新たに考案したイオンモビリティの模式図。右図) イオンモビリティ内部のイオン軌道

リティを1単位とし、これを複数接続することで、装置の全長を長くした。9単位接続することとで、30cmの全長でありながら、イオンの拡散が抑制され、イオンが電極にほとんど衝突しない新規なイオンモビリティが考案できた。この設計を活かしたイオンモビリティ装置を作製しており、必要な高周波電源の作製は完了した。

・イオンファンネル型トラップの開発。

圧力の高い領域でのイオンを蓄積するために、イオンファンネル型イオントラップを新たに考案した。イオンファンネルは円筒の板状電極を重ね合わせ、電極内径が徐々に小さくなるように配置する。前後の電極は位相が異なる高周波を印加する。イオンファンネルは主にイオンを集めるために利用されているだけであり、イオンを蓄積する能力を持たせていない。今回、直流の電圧を変更することで、イオンが蓄積できる条件が存在することを、イオン軌道シミュレーションにより確認した。イオンがトラップされたシミュレーション結果を図5に示す。

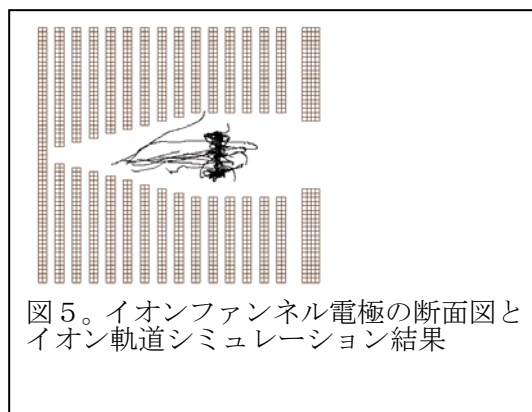
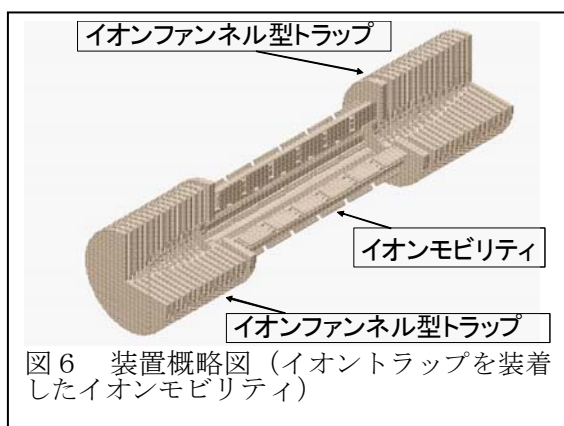


図5. イオンファンネル電極の断面図とイオン軌道シミュレーション結果

図5の黒い実線がイオンファンネル内部のイオン軌跡を表している。黒い塊があることから、イオンが蓄積されていることがわかる。この結果は正イオンであるが、負イオンについても同様の結果を得ている。

現在、新規なイオンモビリティとイオントラップを組み合わせた装置を開発しており、その概略図を図6に示す。イオンモビリティの両端から正と負のイオンを打ち込むイオンガイドを構築している。



再結合反応により中性化した分子は現状では検出できないため、再イオン化し、検出する必要がある。再イオン化には紫外光レーザーが適していると考えられる。

再イオン化後の生成物の分析を行うために、飛行時間型質量分析計の設計、開発を行った。リフレクトロン型質量分析計は分解能も高く、再イオン化したイオンはパルスであるため、今回開発したイオンモビリティとの接続が容易である。リフレクトロン型の質量分析計の開発はイオン軌道計算ソフトを用いて設計を完了し、作製を行っている。

現段階では全装置の構築は完了していないため、速度定数の測定には至っていない。しかしながら、本課題に適した新たなイオンモビリティが考案できた。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計0件)

[学会発表] (計6件)

1) 岩本 賢一, 生田 晴都, 低温移動管/質量分析計を用いた  $C_2H_5^+ + C_2H_2$  の速度定数と温度依存性、第6回分子科学討論会、2012年09月23日、東京大学

2) Kenichi Iwamoto, Haruto Ikuta, Gas phase ion-molecule reactions of  $C_2H_5^+$  and  $C_2H_3^+$  with  $C_2H_2$  using low-temperature drift tube mass spectrometer, 19th International Mass Spectrometry Conference, 2012/09/15, Kyoto International Conference Center

3) 生田 晴都, 岩本賢一, 移動管/質量分析計を用いた  $N_2^+ + C_2H_2$  の速度定数測定、原子衝突研究協会第37回年会、2012年07月28日、電気通信大学

4) 岩本 賢一, 移動管を用いた低温イオン-分子反応、第59回イオン反応研究会(日本質量分析学会) (招待講演)、2012年05月19日、立教大学

5) 岩本 賢一, 生田 晴都, 低温移動管質量分析装置を用いたアセチレンのイオン分子反応、第5回分子科学討論会2011札幌、2011年9月21日、札幌コンベンションセンター

6) 岩本賢一, 生田晴都, 低温イオン分子反応のための移動管質量分析計、第59回質量分析総合討論会、2011年9月13日、ホテル阪急エキスポパーク

[図書] (計0件)

[産業財産権]

○出願状況 (計0件)

○取得状況 (計0件)

[その他]

ホームページ等

#### 6. 研究組織

##### (1) 研究代表者

岩本 賢一 (IWAMOTO KENICHI)

大阪府立大学・大学院理学系研究科・助教

研究者番号：00295734