

冷却八重極線形イオントラップによる 低温イオン - 分子反応の研究

原子物理研究室

B0576024

安田和弘

星間分子雲

•水素(H₂, H) が豊富

宇宙に存在する全原子数の95%以上を占める

•極低温環境

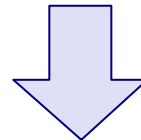
環境温度 $T = 10 \sim 100 \text{ K}$

•希薄な気体

粒子数密度 $n = 10^2 \sim 10^4 \text{ molecules/cm}^3$

ex. 1atm, 300K : $n \sim 10^{19} \text{ cm}^{-3}$

UHV (10^{-8}Pa) : $n \sim 10^6 \text{ cm}^{-3}$



•吸熱反応は起こりにくい

ラジカルや分子イオンが重要な役割をしている

•極低温環境下なので反応の“量子効果”が重要

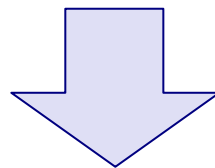
観測天文学による研究方法

マイクロ波や赤外線吸収スペクトルの観測による
星間分子の探索

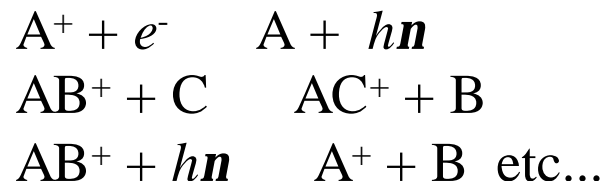
実験による分子の吸収スペクトルと照合

星間分子雲の分子進化過程の解明

理論計算による分子雲中の分子存在比を
観測で得られたデータと比較

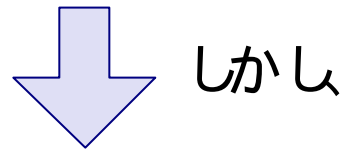


極低温における原子・分子・イオンの反応速度定数データが必要

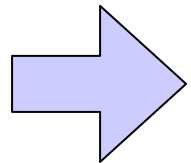


星間空間イオン - 分子反応の反応速度定数

分子雲モデルの理論的計算のための
データベースがある (UMIST data base)



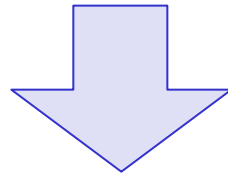
- 極低温・低圧力下で直接測定されたものは少ない
- 反応速度定数の温度依存性を考慮していない
- 観測技術の向上



極低温・低圧力下で測定された反応速度定数
反応速度定数の低温における温度依存性

本研究の目的

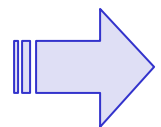
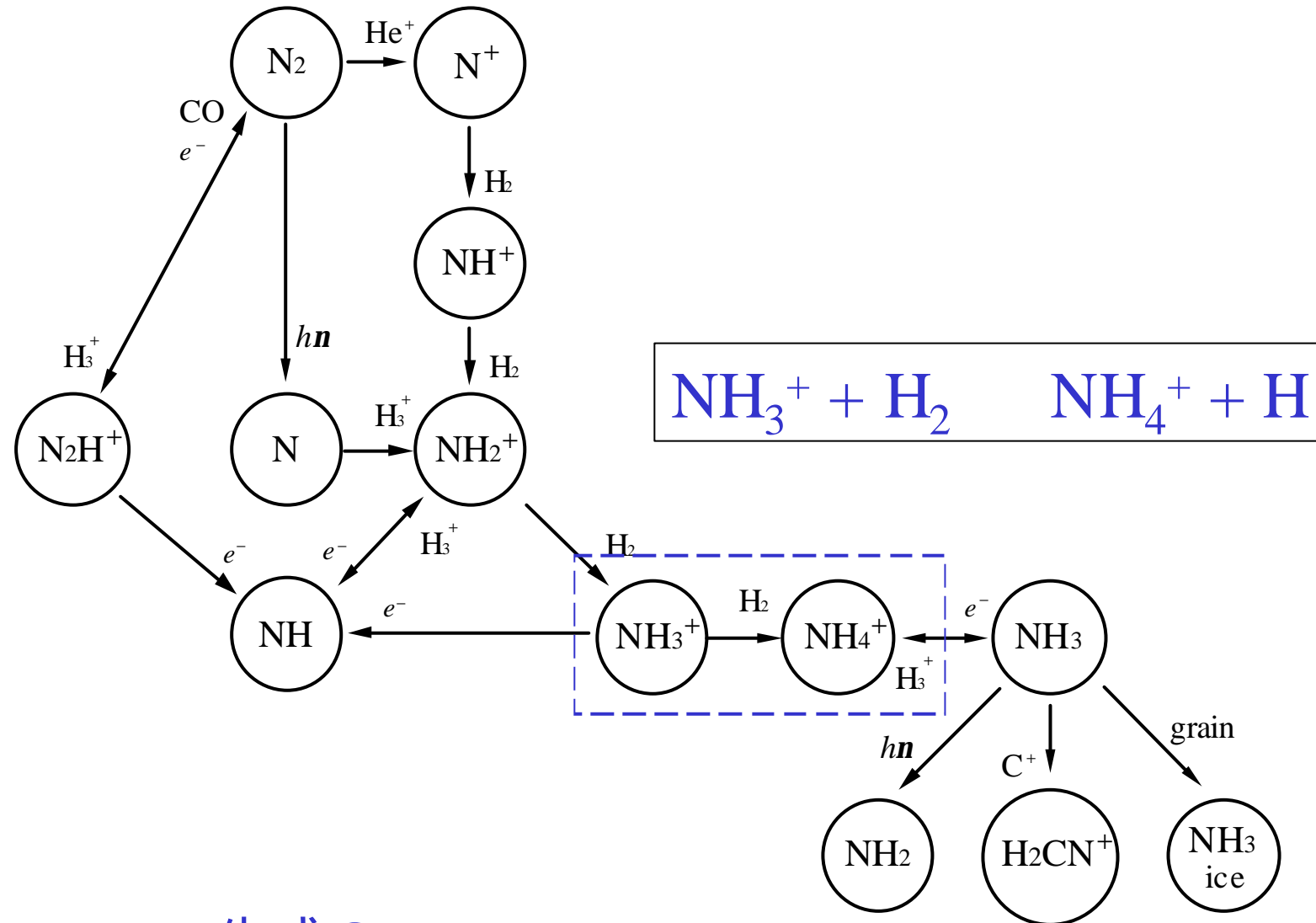
- ・極低温・低圧力下における
イオン-分子反応速度データの測定
- ・未知のイオン-分子反応・衝突の系統的測定



冷却八重極線形RFイオントラップから成る
低温イオン-分子反応測定装置の開発

低圧力下における低温での
 $\text{NH}_3^+ + \text{H}_2$ $\text{NH}_4^+ + \text{H}$ 反応速度定数測定

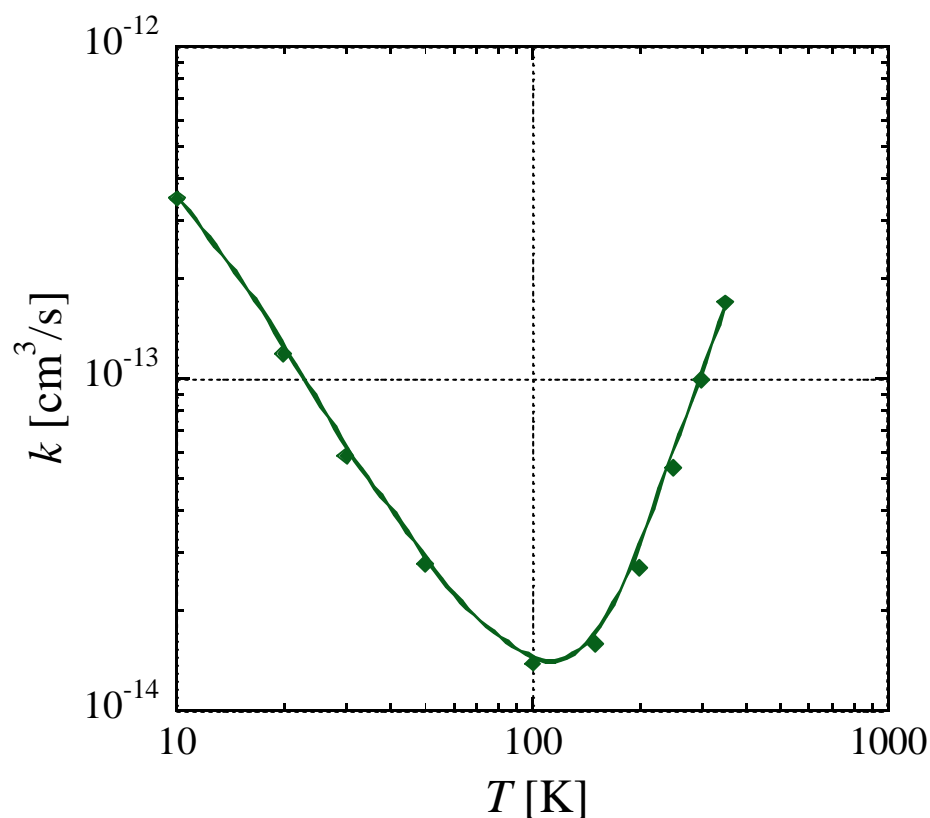
星間分子雲でのアンモニア(NH₃)生成過程



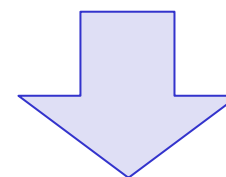
NH₃生成のBottle neck?

反応速度が遅いため、生成速度を決める重要な反応

理論計算による $\text{NH}_3^+ + \text{H}_2 \rightarrow \text{NH}_4^+ + \text{H}$ 反応速度定数の温度依存性

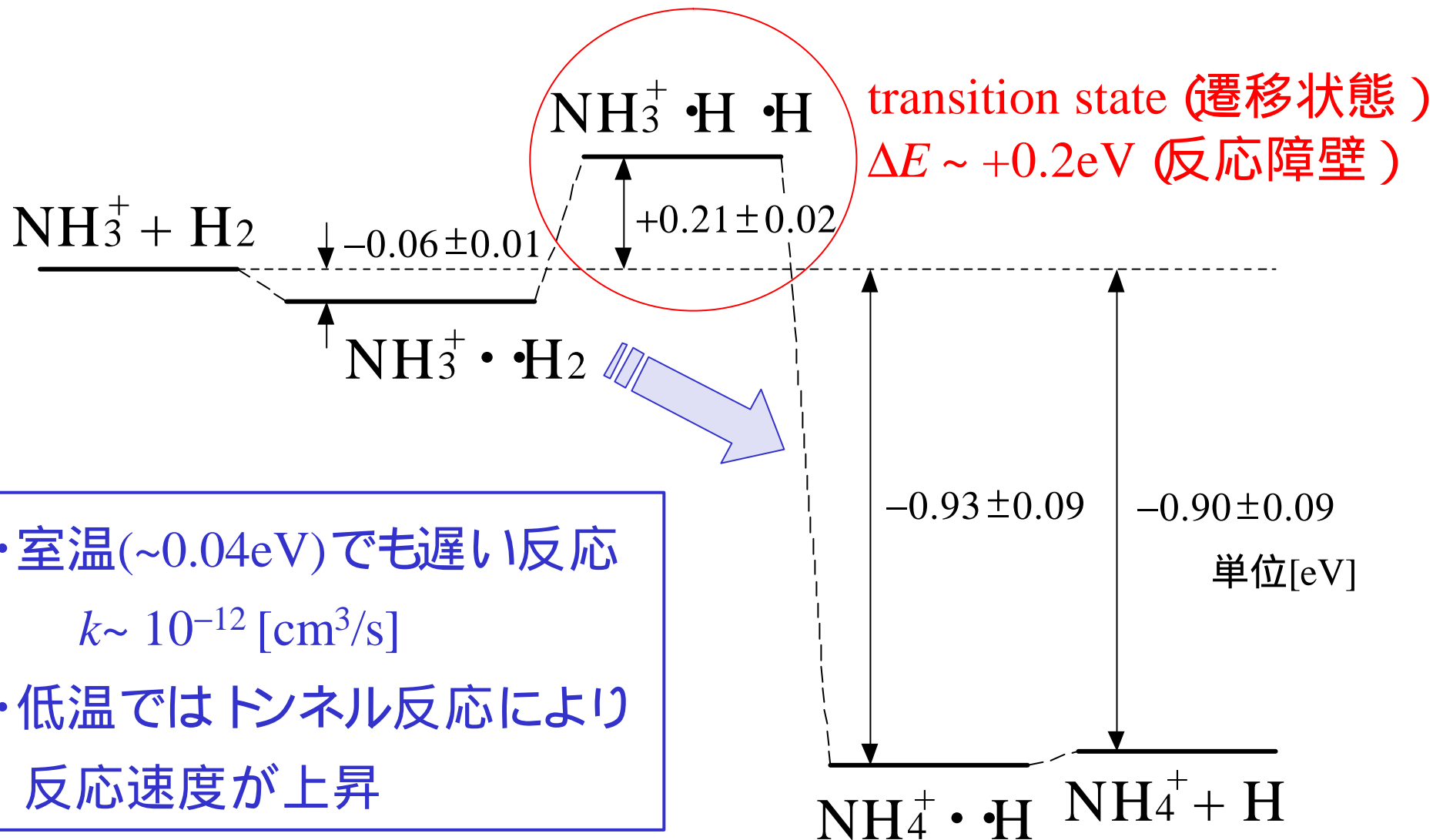


低温側と高温側で
反応速度定数が上昇
・100K付近での極小



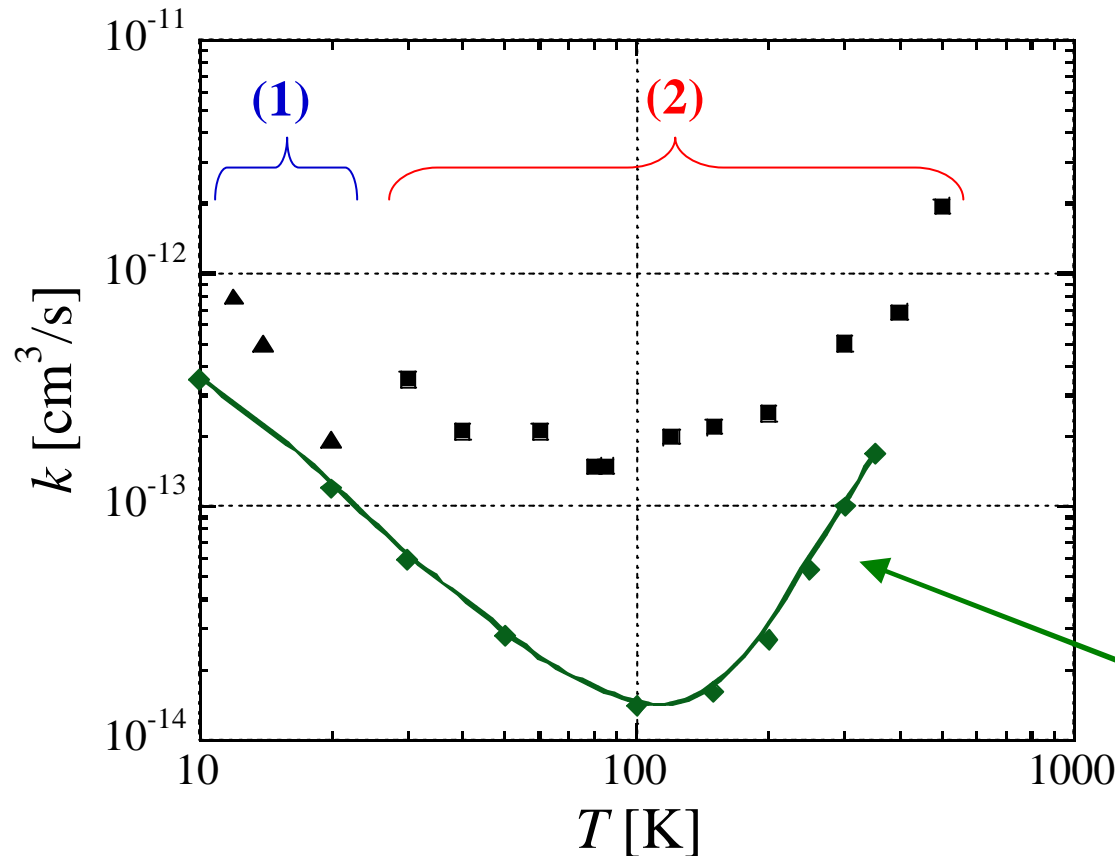
通常のイオン-分子反応には
ない特徴

$\text{NH}_3^+ + \text{H}_2 \rightarrow \text{NH}_4^+ + \text{H}$ 反応



- ・室温($\sim 0.04\text{eV}$)でも遅い反応
 $k \sim 10^{-12} [\text{cm}^3/\text{s}]$
- ・低温ではトンネル反応により
 反応速度が上昇

$\text{NH}_3^+ + \text{H}_2 \rightarrow \text{NH}_4^+ + \text{H}$ 反応速度定数の 理論計算値と過去の実験結果



(1) ペニングトラップによる測定
ガス圧力 $P \sim 10^{-9}$ [Pa]
[APJ299(1985)L67]

(2) Selected-Ion Drift Tube法
による測定
ガス圧力 $P > 70$ [Pa]
[CPL122(1985)185]

理論計算値

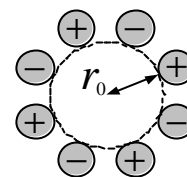
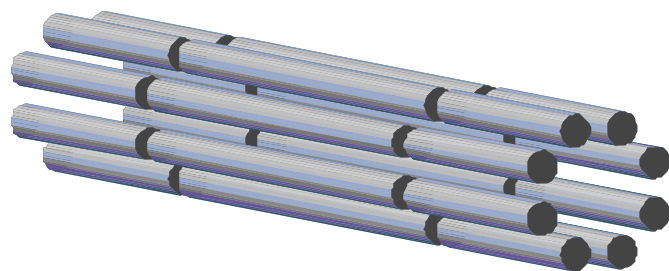
$T = 30 \sim 100$ Kでは1桁以上のずれ

低圧力下での測定による検証

研究内容

- 低温イオン - 分子反応測定装置の開発
 - 冷却八重極線形RFイオントラップ
 - 外部イオン源
- 実験装置の性能評価
 - レーザー誘起反応を利用したイオン - 分子反応の測定
 - 外部入射イオン源の入射効率評価
 - Ca^+ のレーザー冷却
- $\text{NH}_3^+ + \text{H}_2 \rightarrow \text{NH}_4^+ + \text{H}_2$ 反応速度定数測定
低圧力下 ($p < 10^{-3}$ [Pa])、温度 20 ~ 240K

八重極線形RFイオントラップの原理



$$r_0 = 7.5\text{mm}$$

< 動径方向の閉じ込め >

隣り合う電極に位相が180度異なる高周波電圧をかけ、
トラップポテンシャルを形成する

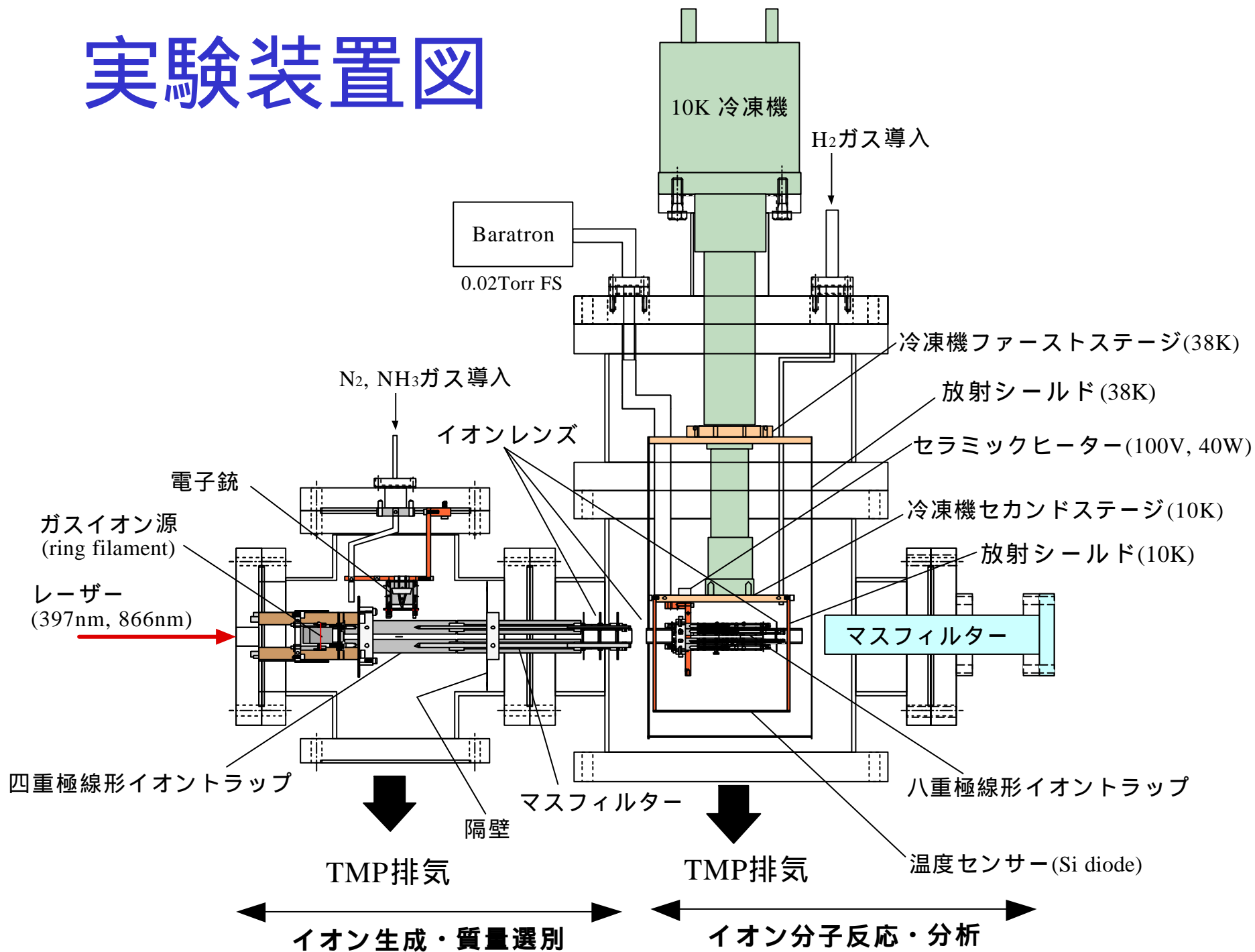
< 軸方向の閉じ込め >

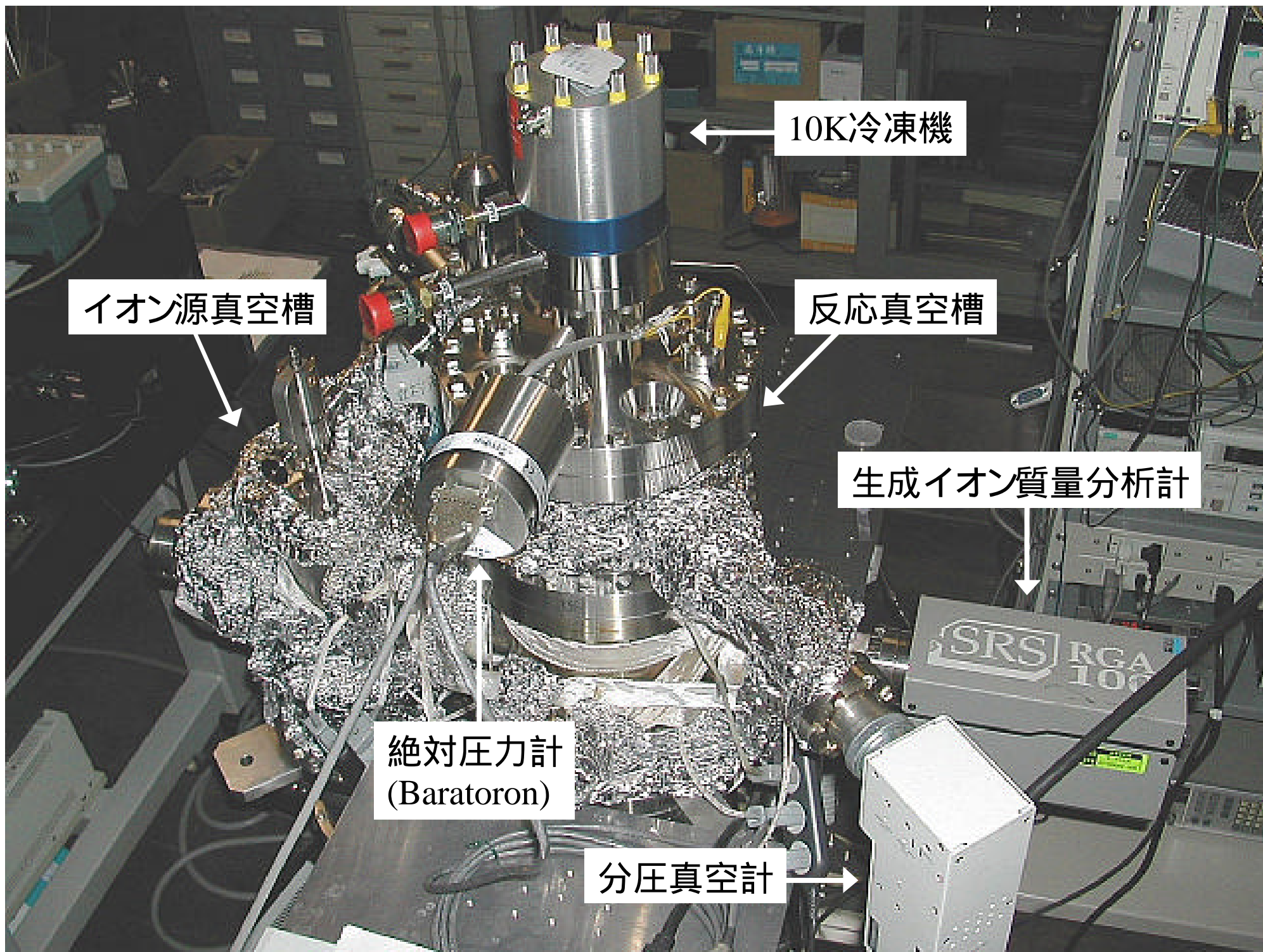
電極を分割し、分割した電極の両端に静電場をかけ、
井戸型ポテンシャルを形成する

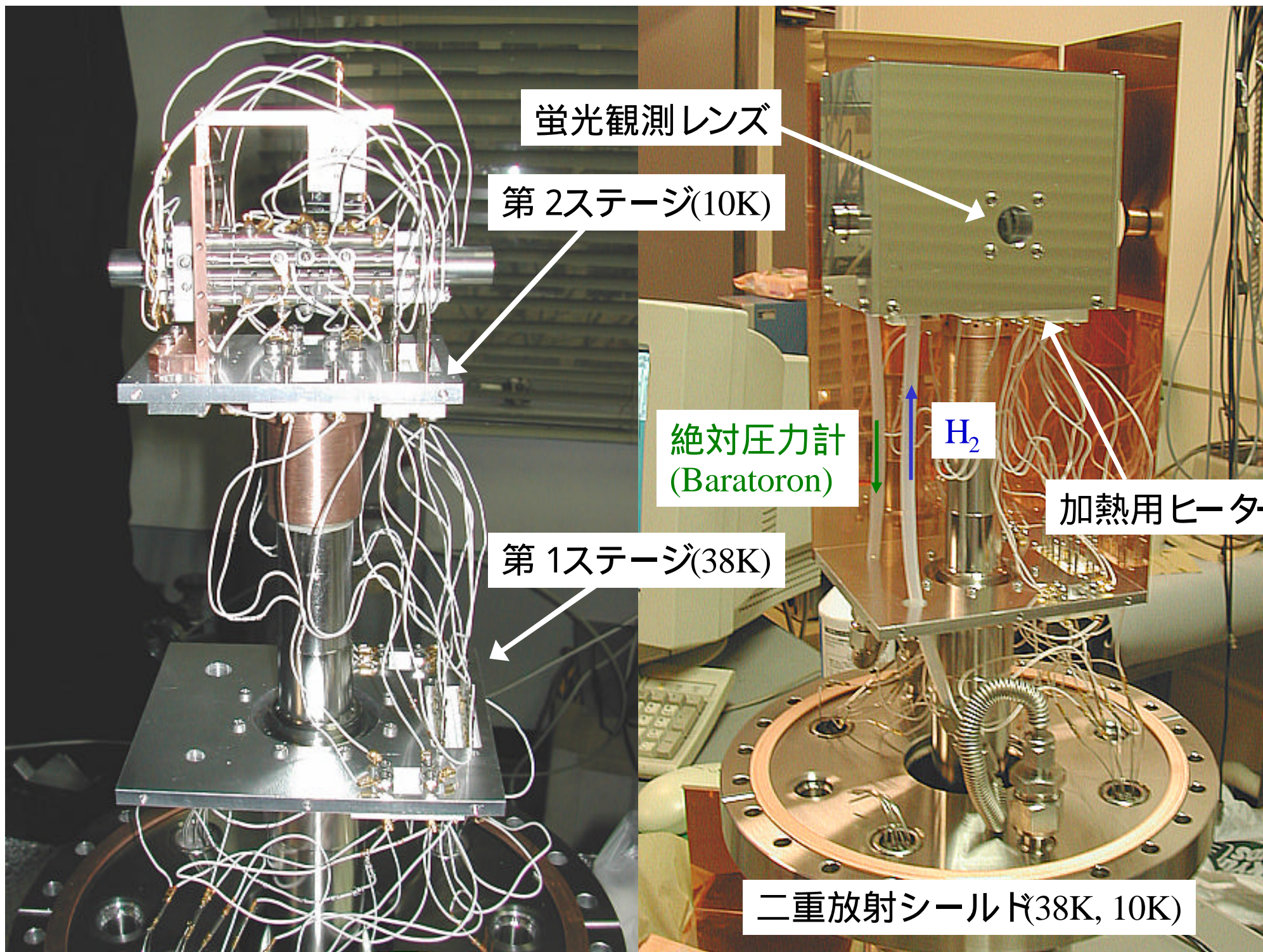
< 特徴 >

- 有効ポテンシャルに対するトラップ容量が大きい
- 断熱近似が成り立つ限り、トラップに質量選択性がない
- 四重極線形イオントラップに比べてRF加熱効果が小さく、
温度制御が容易である

実験装置図







蛍光観測レンズ

第2ステージ(10K)

絶対圧力計
(Baratoron)

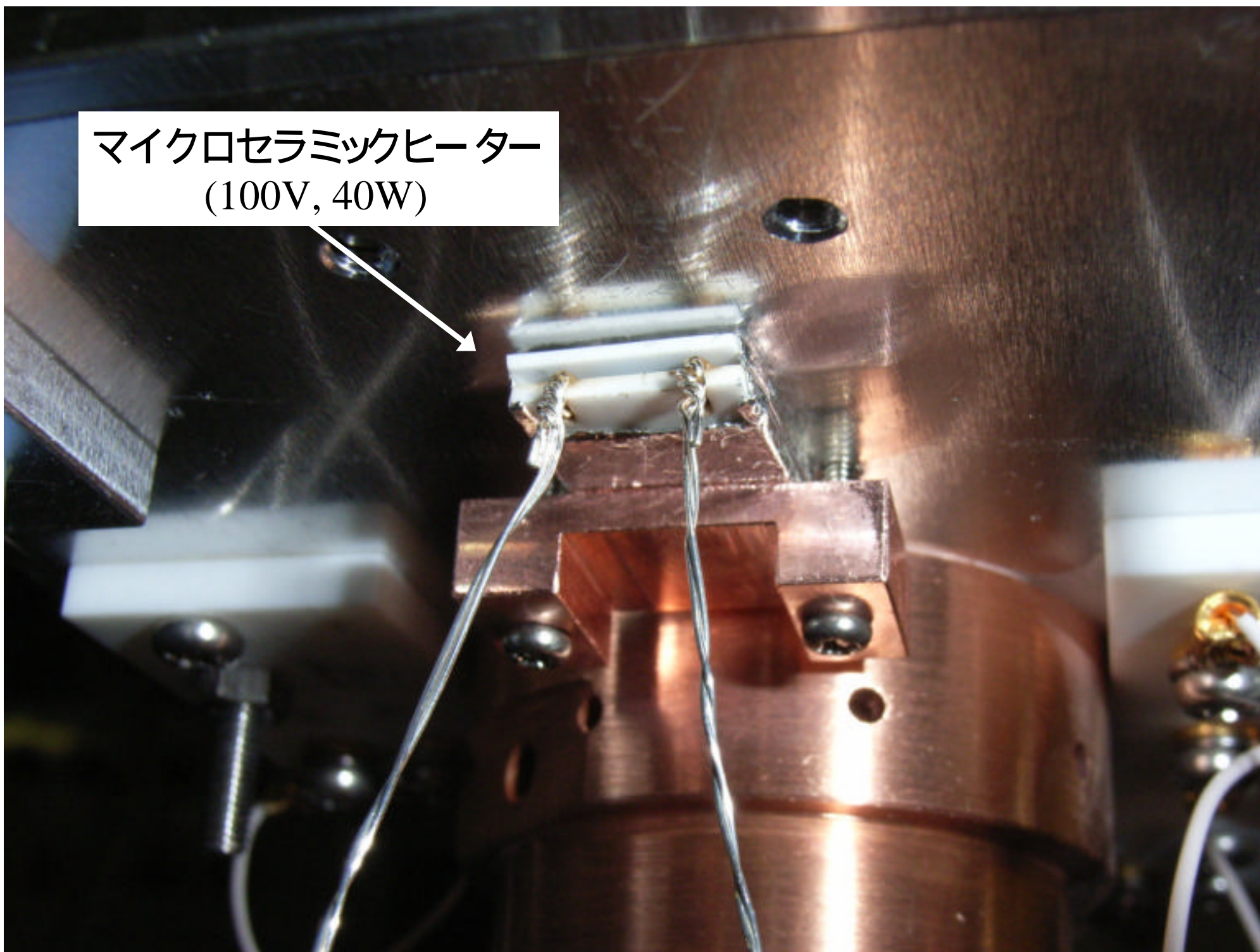
第1ステージ(38K)

H₂

加熱用ヒーター

二重放射シールド(38K, 10K)

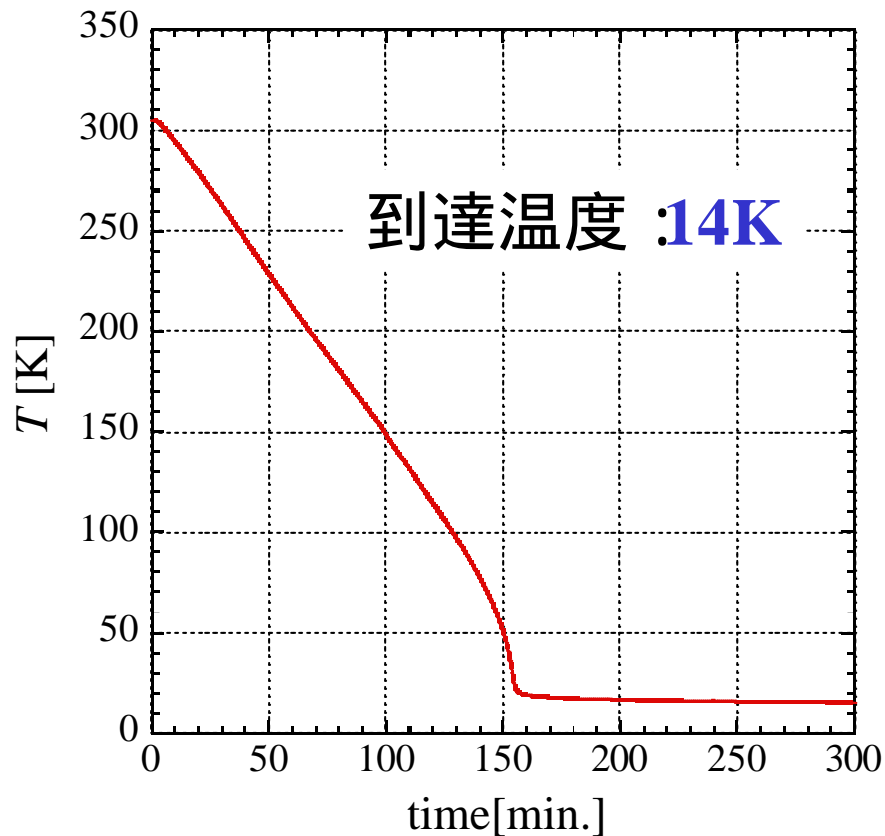
マイクロセラミックヒーター
(100V, 40W)



トラップ領域の温度制御

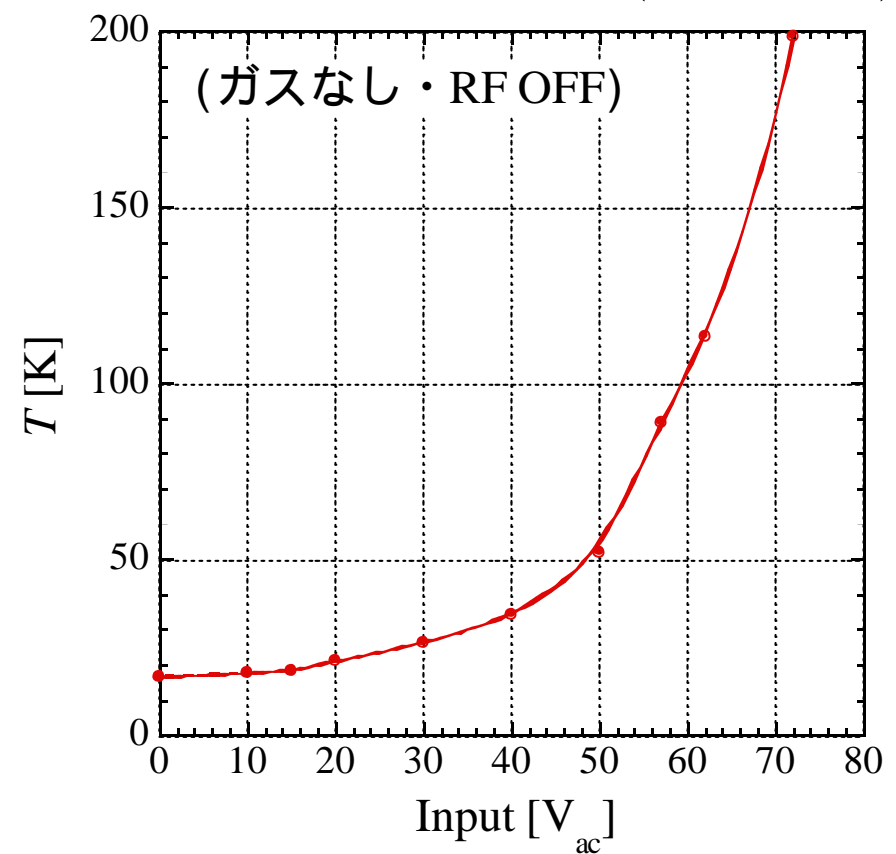
放射シールド内部に取り付けたSiダイオードにより温度測定

冷凍機稼動

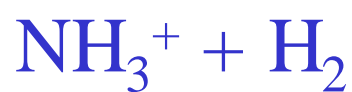


ヒーターによる温度変化

マイクロセラミックヒーター(100V, 40W)



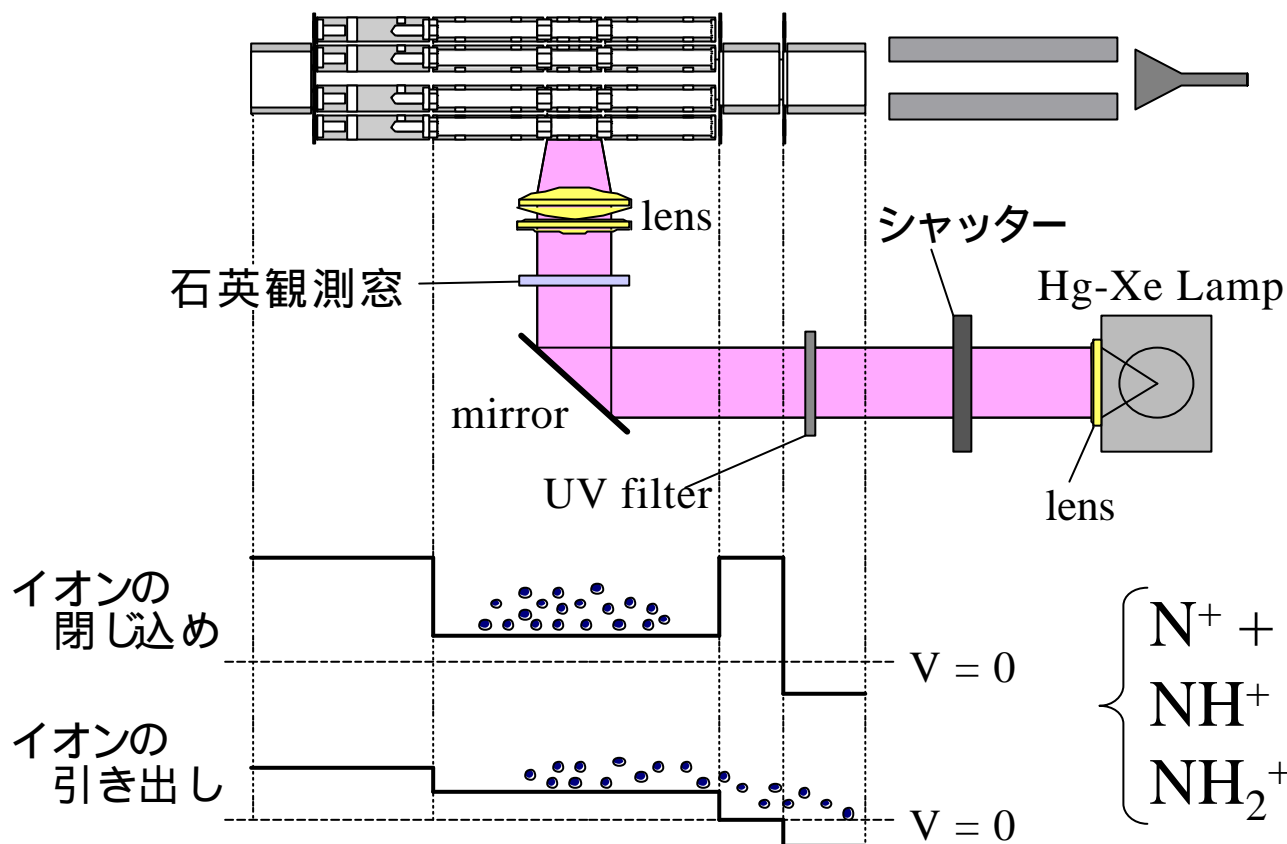
実験方法



八重極イオントラップ

質量分析計

チャンネルترون

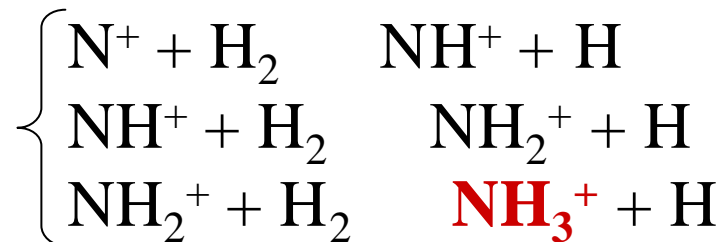


ガス導入

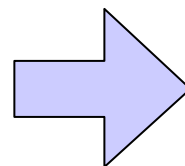
He ($\sim 10^{-3}$ Pa)

H₂ ($10^{-3} \sim 10^{-4}$ Pa)

N₂ ($\sim 10^{-5}$ Pa)



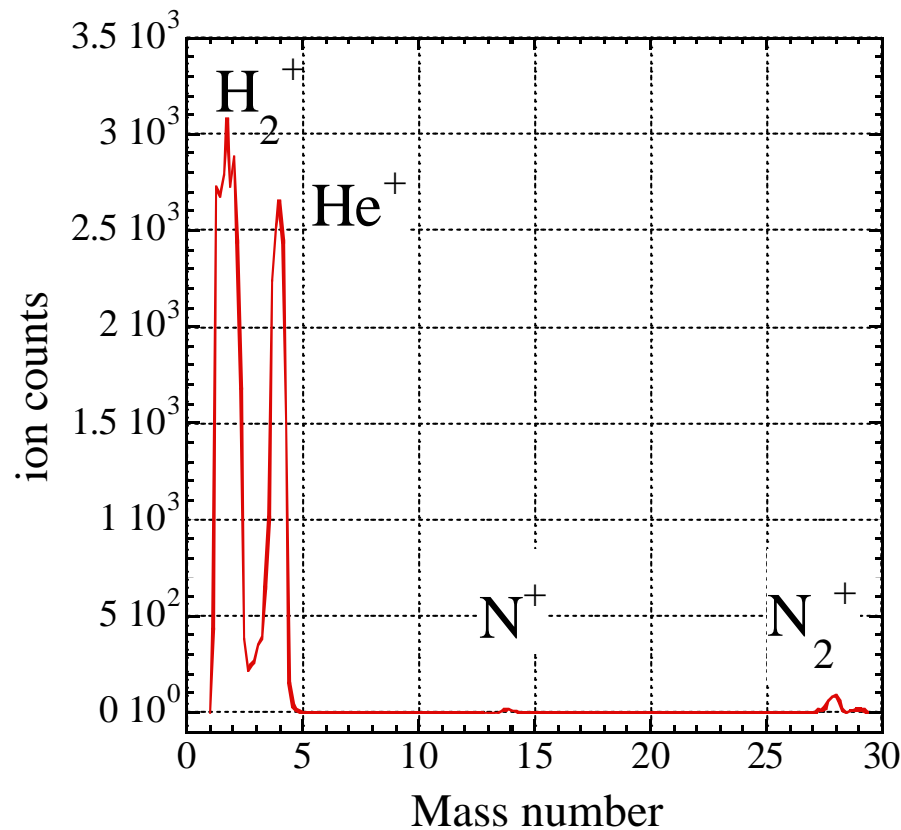
- (1) 光電効果による電極からの電子放出
- (2) RF電場による加速
- (3) トラップ内でのガスのイオン化



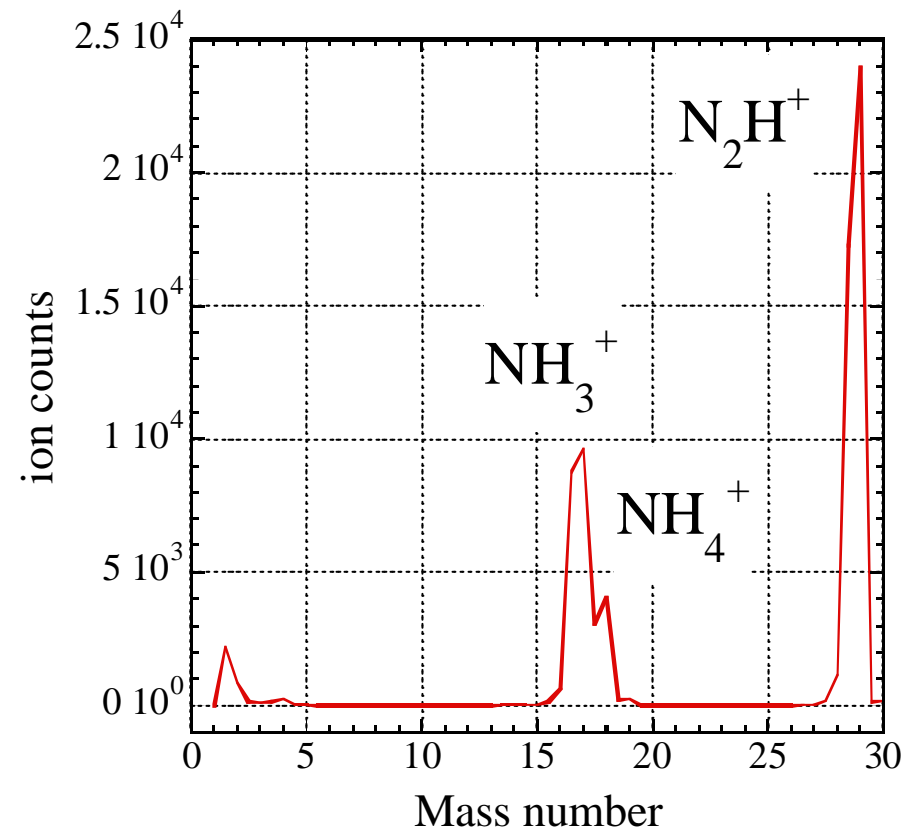
イオンの効率的な
生成とトラップが可能

生成イオンの質量スペクトル

UV光照射時 (ビーム)

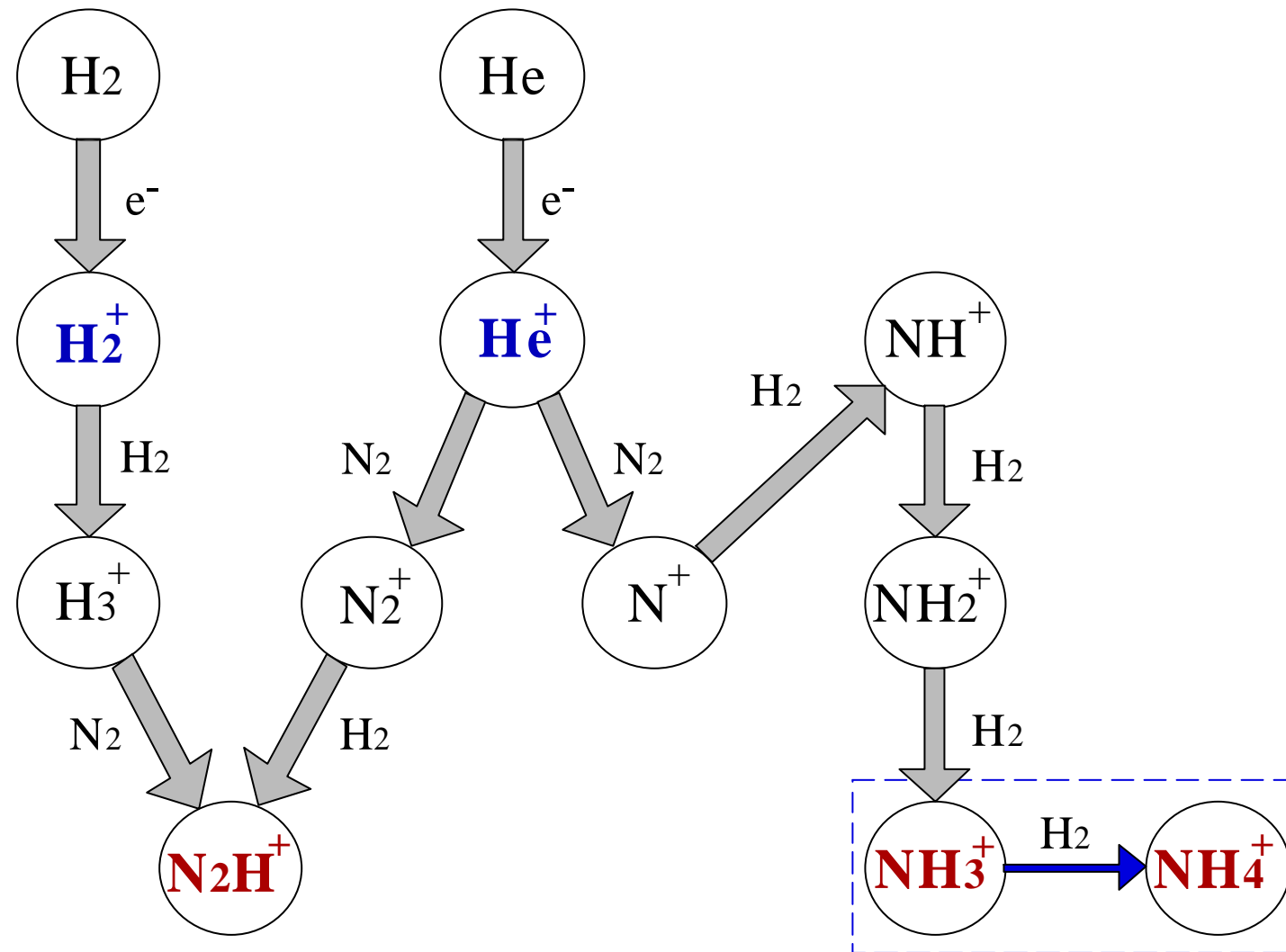


UV光 10秒照射後 (トラップ)

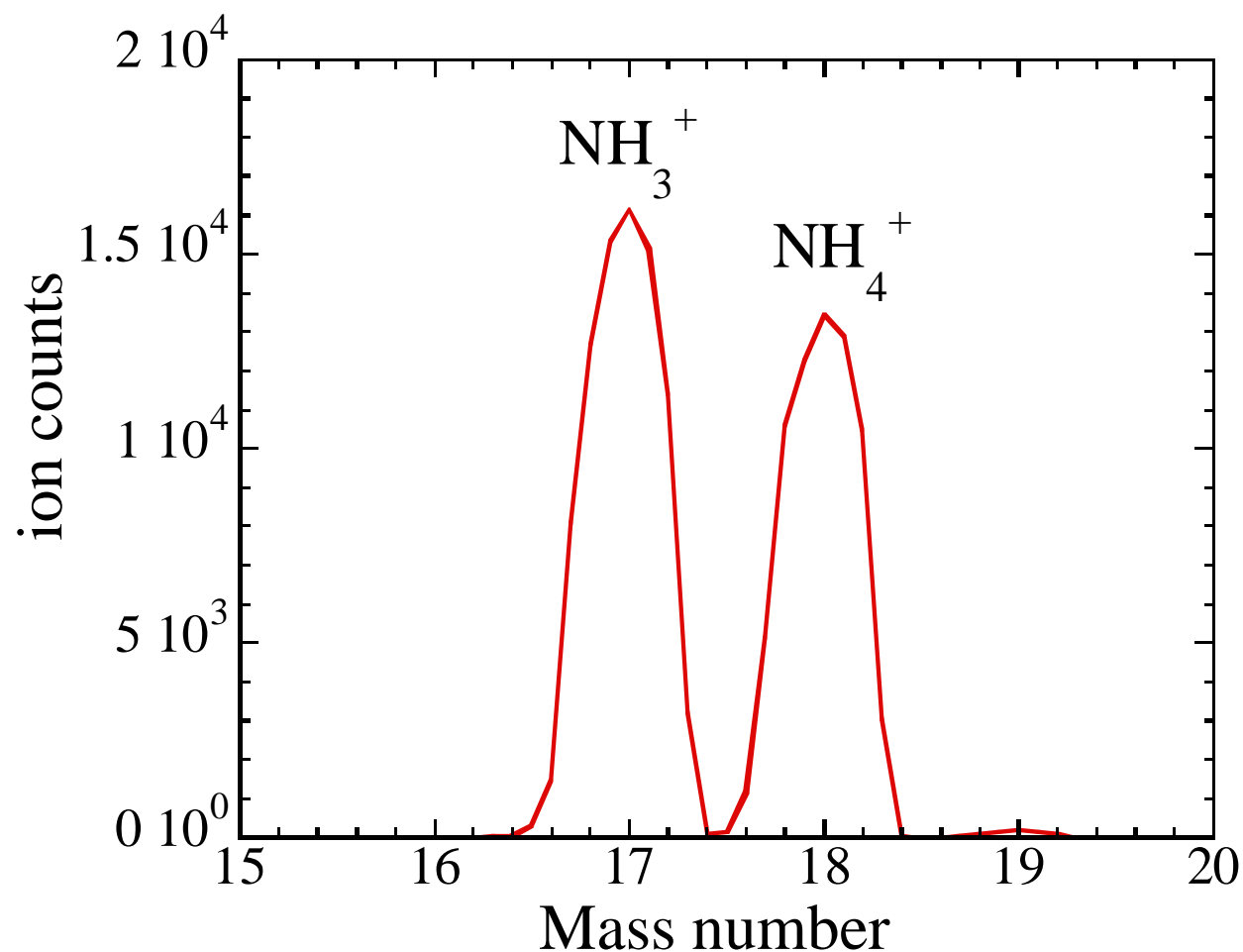


$\text{H}_2 : 6.8 \times 10^{-4}$ [Pa], $\text{He} : 2.9 \times 10^{-3}$ [Pa], $\text{N}_2 : 5.1 \times 10^{-5}$ [Pa] @ $T = 26.6$ [K]

トラップ内でのイオン生成過程



引き出しイオンの質量スペクトル (UV光10秒照射)

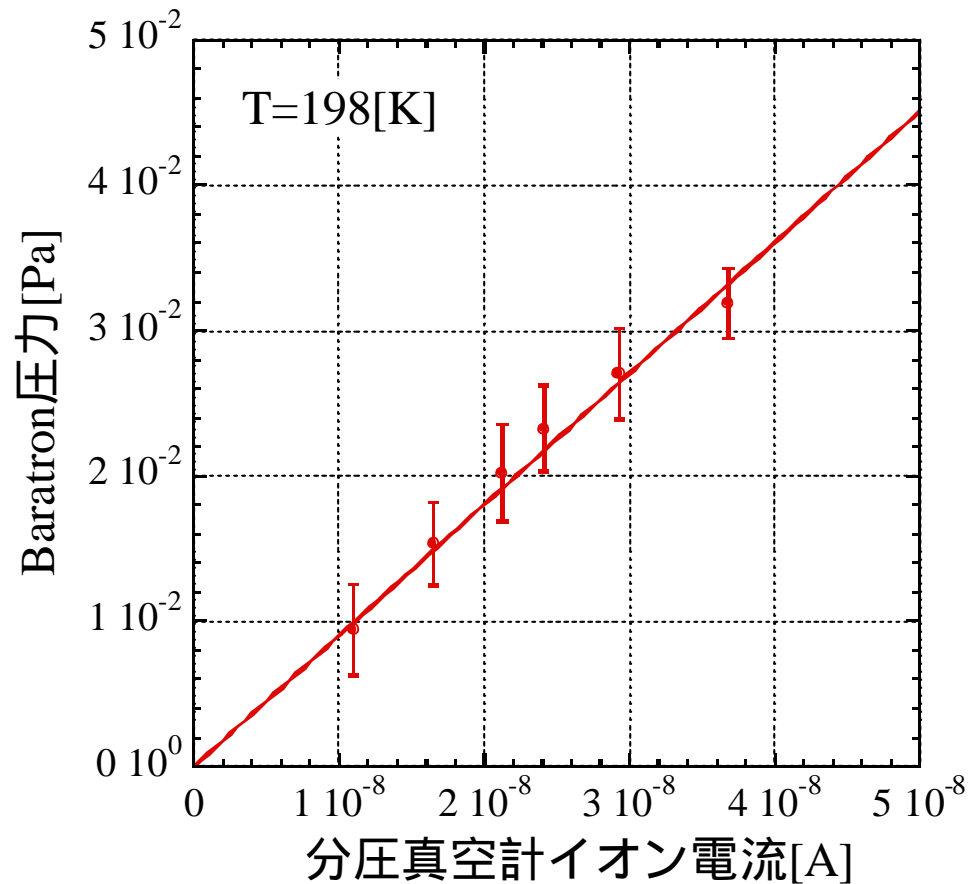


質量分解能

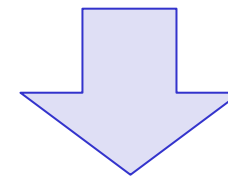
$$\frac{m}{\Delta m} \approx 30$$

$\text{H}_2 : 1.7 \times 10^{-4} \text{ [Pa]}, \text{He} : 1.1 \times 10^{-3} \text{ [Pa]}, \text{N}_2 : 8.6 \times 10^{-5} \text{ [Pa]} @ T = 20 \text{ [K]}$

反応槽内のH₂ガス圧力の測定方法



絶対圧力計と分圧真空計の
圧力の相関関係

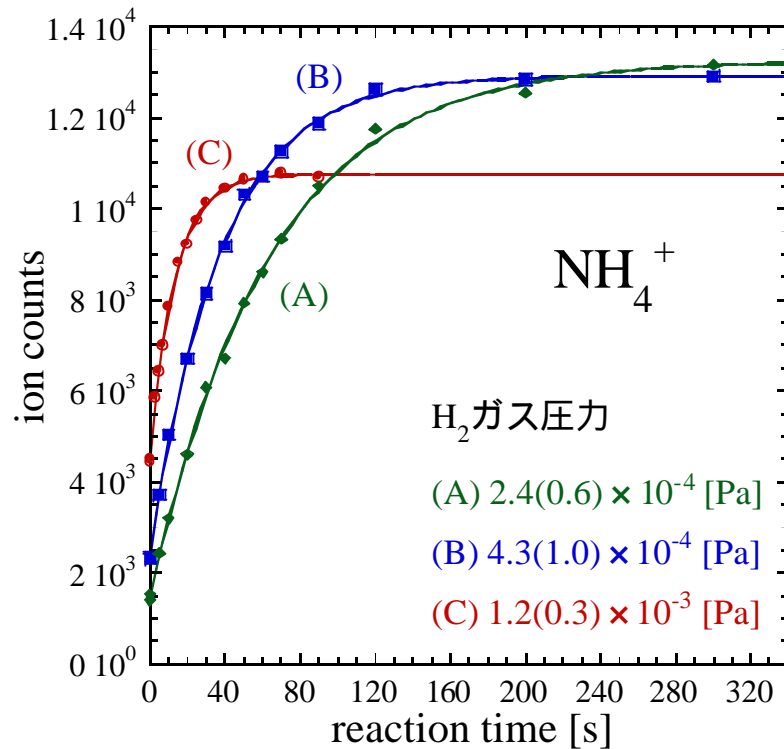
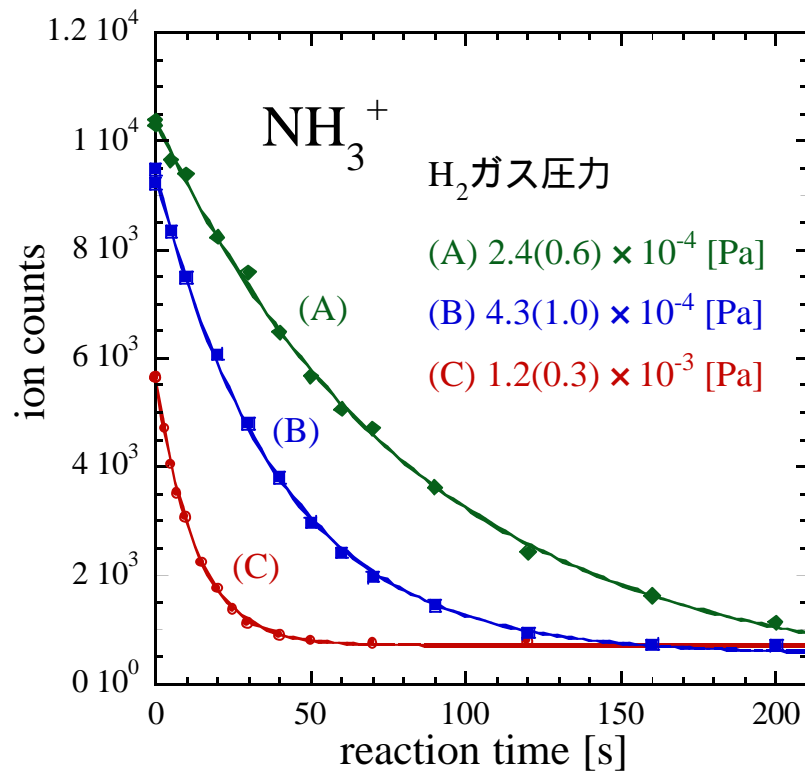


低圧側への外挿値を用いて
実験中のH₂ガス圧力へ換算

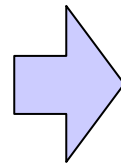
NH₃⁺ + H₂ → NH₄⁺ + H 反応による NH₃⁺, NH₄⁺ の時間発展

$$n_{\text{NH}_3^+} = A \exp(-vt)$$

$$n_{\text{NH}_4^+} = B[1 - \exp(-vt)] + C$$



NH₃⁺, NH₄⁺ の反応速度
がほぼ等しい



NH₃⁺ のみの反応速度データを
20 ~ 240K にわたる6点の温度で測定



(A) 反応速度 v から直接 k を求める

$$k = \frac{v}{n_{\text{H}_2}}$$

k : 反応速度定数 [cm^3/s]

v : 反応速度 [s^{-1}]

n_{H_2} : H_2 ガスの分子密度 [cm^{-3}]

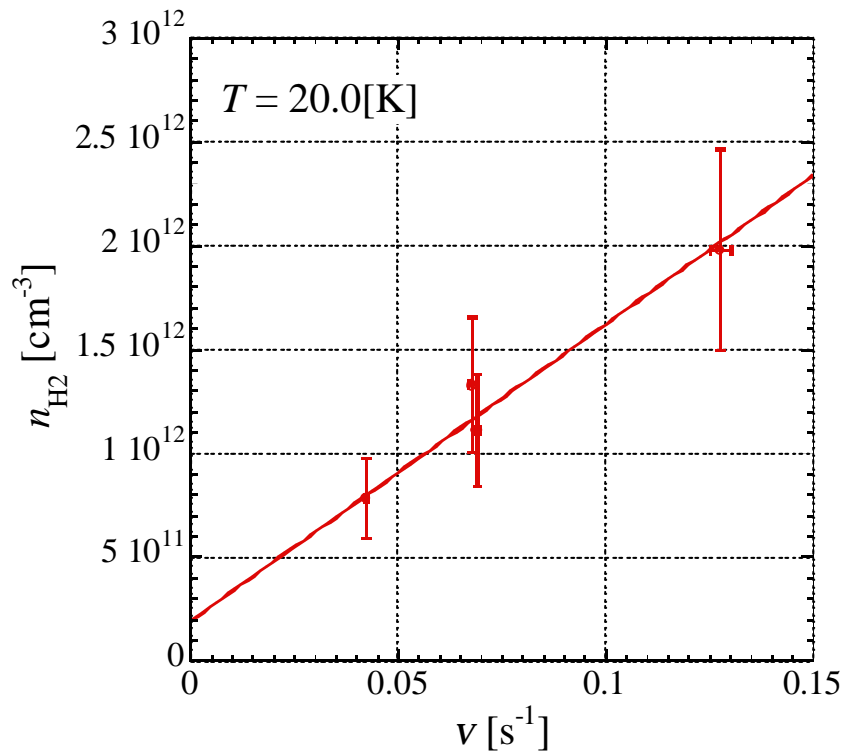
$$\Delta k = \sqrt{\left(\frac{\partial k}{\partial v}\right)^2 \Delta v^2 + \left(\frac{\partial k}{\partial n_{\text{H}_2}}\right)^2 \Delta n_{\text{H}_2}^2}$$

個々の時間発展曲線から v を決定

$\text{NH}_3^+ + \text{H}_2 \rightarrow \text{NH}_4^+ + \text{H}$ 反応速度定数の導出

(B) 反応速度の H_2 ガス圧力依存性から求める

反応速度に対する残留ガスの影響を確認



$$v = n_{\text{H}_2} k + \sum_i n_i k_i$$

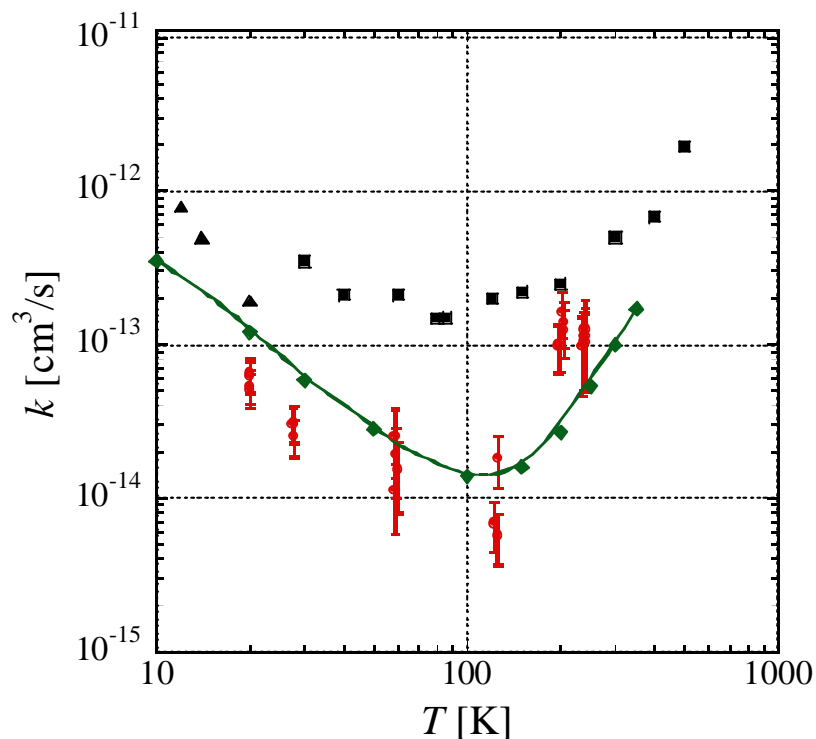
残留ガスによる反応速度

反応速度 v の誤差と比較して
分子密度 n_{H_2} の誤差が大きい

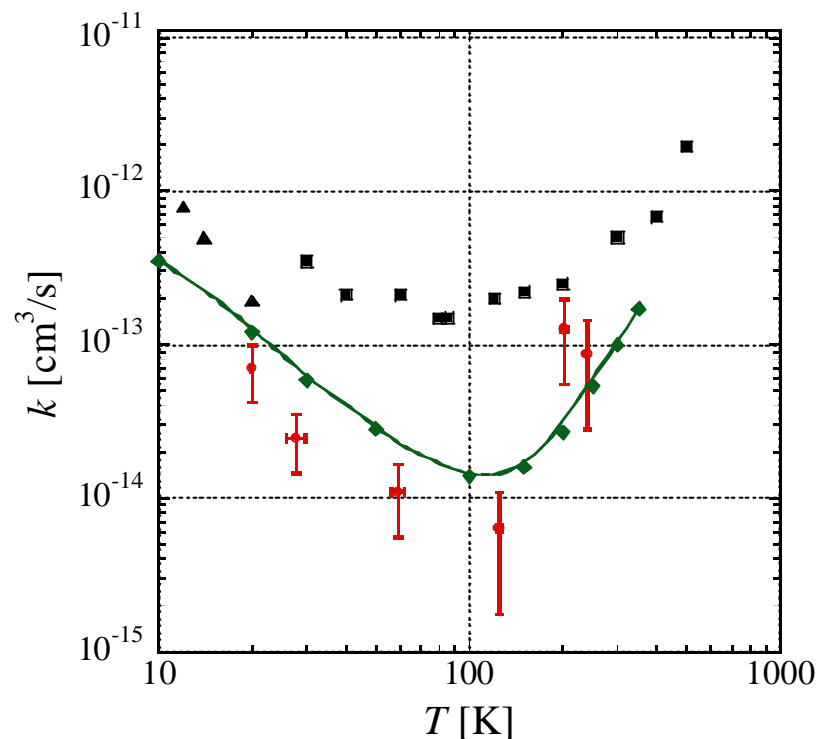
$$n_{\text{H}_2} = vk^{-1} - \sum_i n_i (k_i / k)$$

理論計算値と過去の実験結果との比較

(A) 反応速度 v から直接 k を求める



(B) 反応速度のH₂ガス圧力依存性から求める



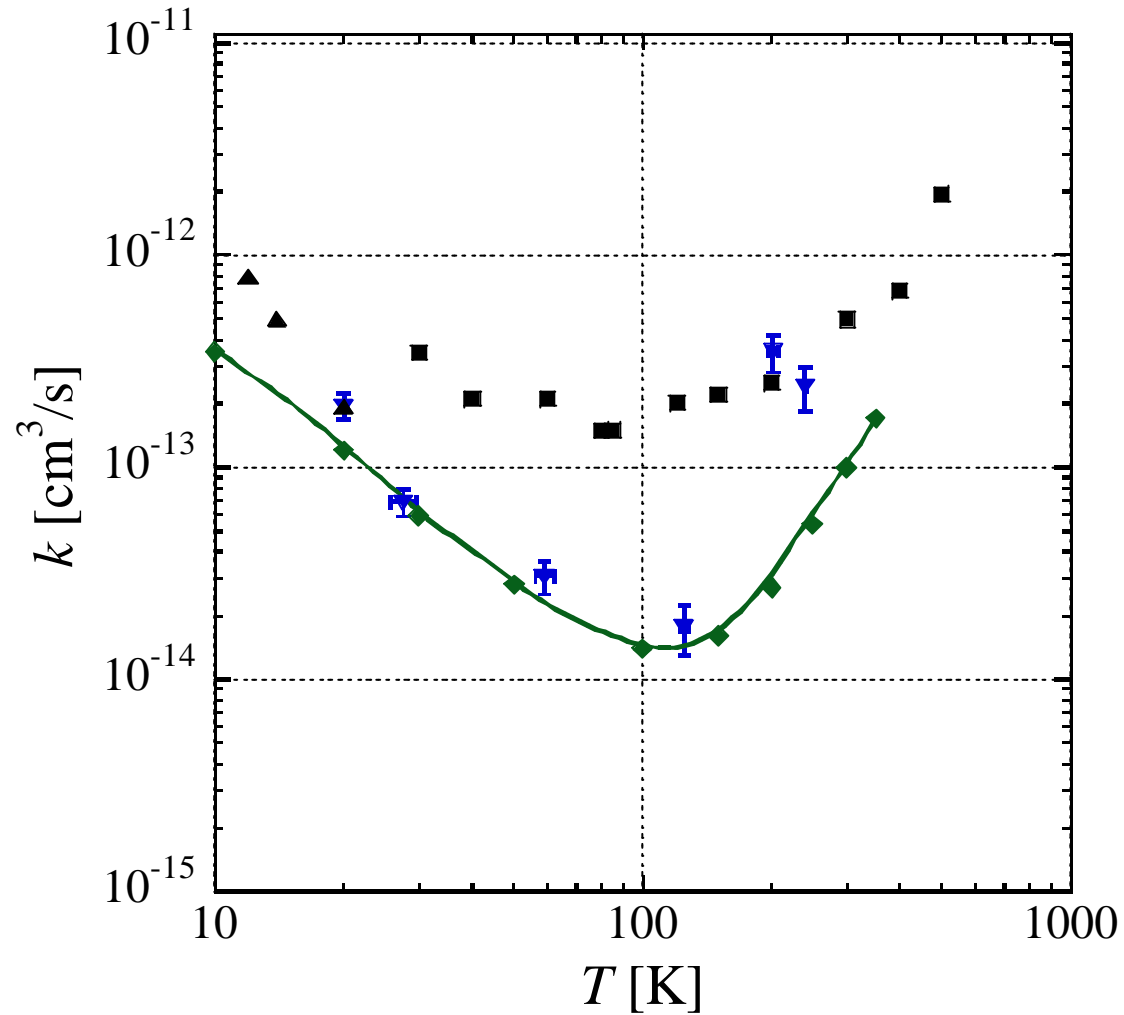
• (A), (B)の値が誤差の範囲内で一致
 残留ガスによる影響はほぼない
 過去の測定と比べ、理論値とよく一致

まとめ

- 低温イオン - 分子反応測定装置の開発
- 低圧力下 ($p < 10^{-3}$ [Pa])、温度20 ~ 240Kにおける
 $\text{NH}_3^+ + \text{H}_2 \rightarrow \text{NH}_4^+ + \text{H}$ 反応の反応速度定数測定
 - 温度20 ~ 125Kにおいては理論値と良い一致

極低温・低圧力下でのイオン - 分子反応の
直接測定的重要性を改めて確認

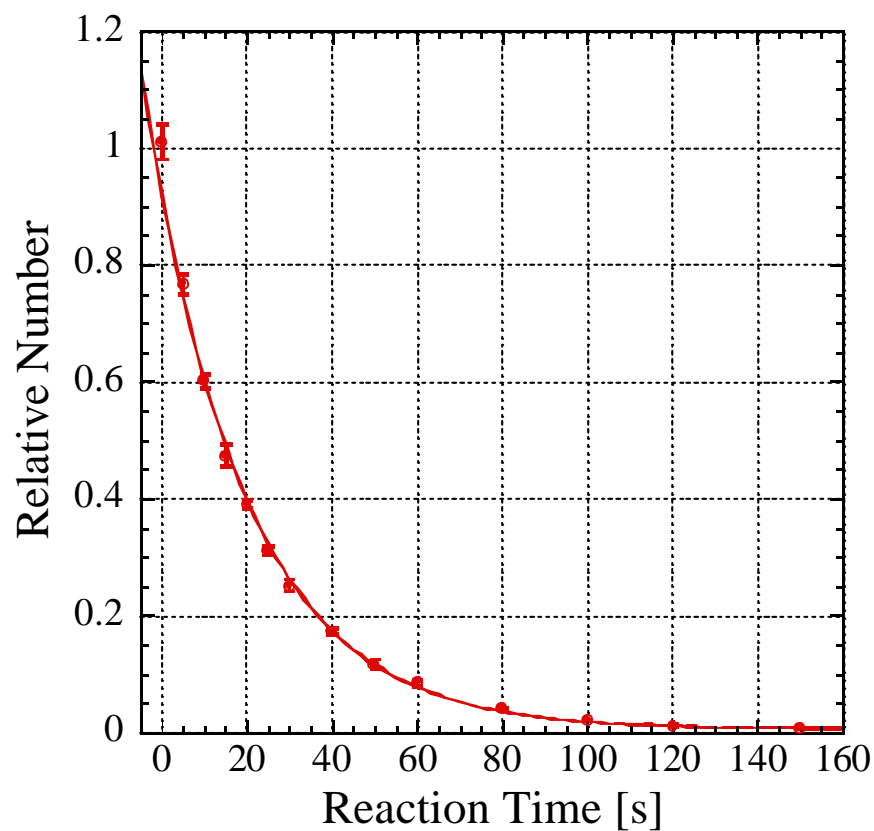
20Kにおいてペニングトラップによる実験結果に 本研究の測定結果を規格化



NH₃⁺の時間発展

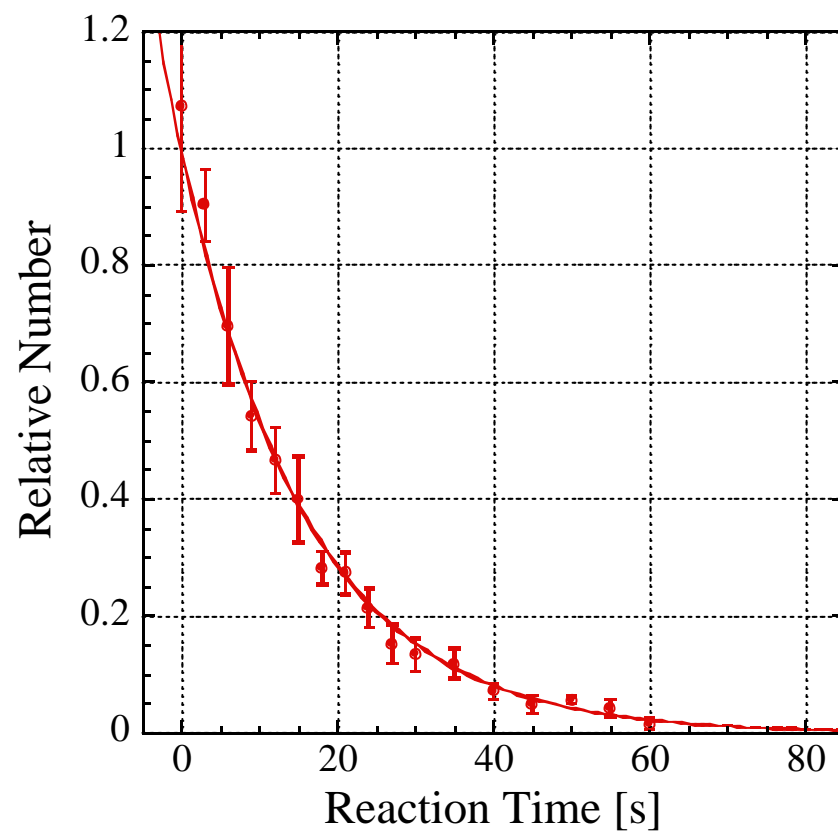
$T = 20[\text{K}]$

$$v = 0.0423(6) [\text{s}^{-1}]$$



$T = 240[\text{K}]$

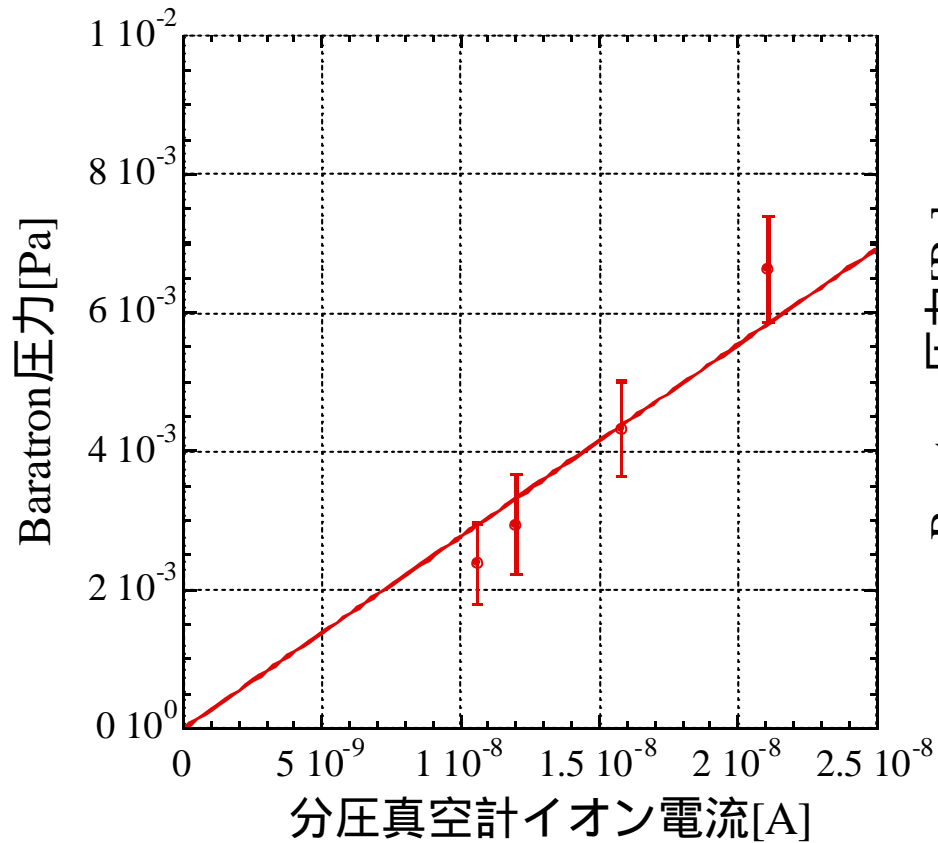
$$v = 0.0624(23) [\text{s}^{-1}]$$



H₂ガス圧力測定

$T = 20[\text{K}]$

誤差 : 24%



$T = 240[\text{K}]$

誤差 : 53%

