

戦略的創造研究推進事業 CREST
研究領域「ナノ科学を基盤とした革新的製造技術
の創成」
研究課題「ソフトナノマテリアル3D 分子イメージング
法の開発」

研究終了報告書

研究期間 平成 19年 10月～平成 25年 3月

研究代表者：松尾 二郎

京都大学大学院工学研究科
附属量子理工学教育研究センター 准教授

§ 1 研究実施の概要

(1) 実施概要

本研究は、有機物や生体高分子などのソフトナノマテリアルを、高速重イオンによる電子励起や巨大クラスター衝突励起を用いた2次イオン質量分析法(SIMS)により分子イメージングすることを目的としている。高速重イオンを用いる分子イメージング法は、固体内で核衝突をほとんど起さずに電子的に分子を脱離・イオン化させる原理に基づいており、これまで困難と考えられてきた原子衝突によるソフトなイオン化を実現する画期的な手法である。さらに、有機物を破壊することなくエッチングすることのできるクラスタービームと組み合わせて、有機物や生体高分子などのソフトナノマテリアルの3D分子イメージング法を確立し、ナノ・バイオテクノロジー分野に画期的な評価手法を提供する。

分析時間を短縮するため、入射ビームをパルス化することなく飛行時間法(ToF 法)で2次イオンの質量を測定できる新しい2次イオン計測システムを構築した。小型質量イメージング装置の設計およびその試作を行い、新開発の2次イオン計測システムを用い2000Pa 程度の低真空でも測定が可能な“Wet-SIMS”装置を実現し、含水有機材料や揮発性分子の SIMS スペクトルの取得に成功した。さらに、壊れやすく変質しやすい生体組織切片や細胞の分子イメージングに必要な急速冷凍法や薄片化法等の前処理技術や組織内部の露呈を行う加工技術を開発した。これらの技術を組み合わせ培養細胞1個を数ミクロンの空間分解能でイメージングすることに成功し、本手法が生命科学分野に応用可能であることを示した。

等価的に低エネルギーのクラスターイオンビームを用いた有機分子低ダメージエッチング技術を開発し、有機分子の深さ方向分析を実現する“Molecular Depth Profiling”法を確立した。有機半導体薄膜や生体高分子薄膜などの深さ方向分析を行い、本手法の有用性を明らかにした。クラスターイオンを用いる本手法は、デファクトスタンダードとして、広く利用され始めた。また、分析装置メーカーから、XPS や SIMS に取り付けるクラスターイオンビーム装置が市販された。さらに、数ミクロンまで集束できるクラスターイオン源を開発し、本プロジェクトで開発した新しい2次イオン計測システムと組み合わせ走査型クラスターイオン SIMS 装置を開発した。この装置を使い組織切片の質量イメージングを行い、良好なイメージを測定することにも成功した。

(2) 顕著な成果

1. 高速重イオンを使った質量イメージング法を開発

概要: 高速重イオンを使った質量イメージング法を開発し、培養細胞・組織切片などの生体高分子の分布の測定をミクロンオーダーの精度で行った。質量数が数百 Da の脂質などの分布を可視化することができ、SIMS 法によるバイオイメージングへの道を拓いた。

2. 有機分子の深さ分布を測定する“Molecular Depth Profiling”法を実現

概要: 等価的に超低速のイオンビームであるクラスターイオンビームを用いて有機材料にダメージを与えることなくエッチングできる技術を開発し、有機分子の深さ分布を測定する“Molecular Depth Profiling”法を実現した。この手法は、複数の分析装置メーカーで実用化された。

3. 高性能かつ高い汎用性を有する新しい SIMS 装置を開発

概要: 垂直引き出し型 ToF 法とクラスターを1次イオンとして用いる新しい SIMS 装置を開発した。数ミクロンまで集束したクラスターを用いる走査型質量イメージング装置として、最も高性能かつ高い汎用性を有している。

§ 2. 研究構想

(1) 当初の研究構想

本研究は、有機物や生体高分子などのソフトナノマテリアルを、高速重イオンによる電子励起や巨大クラスター衝突励起を用いた2次イオン質量分析法(SIMS)により分子イメージング(分子の空間分布を取得)することを目的としている。高速重イオンを用いる分子イメージング法は、従来とは異なり電子的に分子を脱離・イオン化させる原理に基づいており、ソフトなイオン化を実現する画期的な手法である。さらに、有機物を破壊することなくエッチングすることのできるクラスタービームと組み合わせて、有機物や生体高分子などのソフトナノマテリアルの3D分子イメージング法を確立し、ナノ・バイオテクノロジー分野に画期的な評価手法を提供する。

分析時間を1桁程度短縮する新しい2次イオン計測システムの構築や、等価的に低エネルギーのクラスターイオンビームを用いた有機分子低ダメージエッチング技術を開発する。ソフトマテリアルを用いたデバイス・プロセス開発に役立てることできるサブミクロンの空間分解能で質量イメージングが可能である画期的な分析手法を提供する。

(2) 新たに追加・修正など変更した研究構想

高速重イオンを用いる新しい SIMS 装置を開発する中で、試料室を低真空にできるようになり水などの揮発性物質を含む試料の分析が可能となり、“Wet-SIMS 法”と命名した。この手法を活用すると分析が難しかった固液界面の評価が可能となる。また、集束が難しいとされてきたクラスターイオンビームの集束を実現し、数ミクロンまで集束することができた。これにより、クラスターを1次イオンとして用いる走査型クラスターSIMS装置を開発することができた。さらに、高速重イオン用の高精度な静電型四重極レンズを実現する自己整合型の構造を持つレンズを開発した。

§ 3 研究実施体制

氏名	所属	役職	参加期間
松尾 二郎	京都大学大学院工学研究科附属量子理工学研究実験センター	准教授	H19.10～
柴田 裕実	京都大学大学院工学研究科原子核工学専攻	准教授	H19.10～
瀬木 利夫	京都大学大学院工学研究科原子核工学専攻	講師	H19.10～
青木 学聡	京都大学大学院工学研究科電子工学専攻	講師	H19.10～
羽田 真毅	京都大学大学院工学研究科原子核工学専攻	特定有期職員	H19.10～H.23.3
市木 和弥	京都大学大学院工学研究科原子核工学専攻	D4	H20.4～H.24.3
中川駿一郎	京都大学大学院工学研究科原子核工学専攻	D2	H23.4～
Py Matthiu	京都大学大学院工学研究科原子核工学専攻 京都大学大学院工学研究科附属量子理工学研究実験センター	研修生 特定有期職員	H19.10～H.20.3 H24.1～H.24.9
山田 英丙	京都大学大学院工学研究科原子核工学専攻	M2	H19.10～H.22.3
山野辺 貴文	京都大学大学院工学研究科原子核工学専攻	M3	H21.4～H.24.3
山本 恭千	京都大学大学院工学研究科原子核工学専攻	M2	H21.4～H24.3
若松 慶信	京都大学大学院工学研究科原子核工学専攻	M2	H21.4～H24.3
本谷 友作	京都大学大学院工学研究科原子核工学専攻	M2	H22.4～
志戸本 祥	京都大学大学院工学研究科原子核工学専攻	M2	H23.4～
二宮 啓	京都大学大学院工学研究科附属量子理工学研究実験センター	特定有期職員	H20.4～H22.3
鳥居 聡太	京都大学大学院工学研究科附属量子理工学研究実験センター	M1	H24.4～
藤井 麻樹子	京都大学大学院工学研究科附属量子理工学研究実験センター	特別研究員	H24.10～
茂上 正恵	京都大学大学院工学研究科附属量子理工学研究実験センター	技術補佐員	H19.10～H24.8
伊吹 幸	京都大学大学院工学研究科附属量子理工学研究実験センター	技術補佐員	H20.7～H24.2
裏野 恵美	京都大学大学院工学研究科附属量子理工学研究実験センター	技術補佐員	H24.1～
高松 里奈	京都大学大学院工学研究科附属量子理工学研究実験センター	技術補佐員	H24.7～

大川 克也	協和発酵キリン(株)次世代創薬 研究所	グループリーダー	H19.10～
-------	------------------------	----------	---------

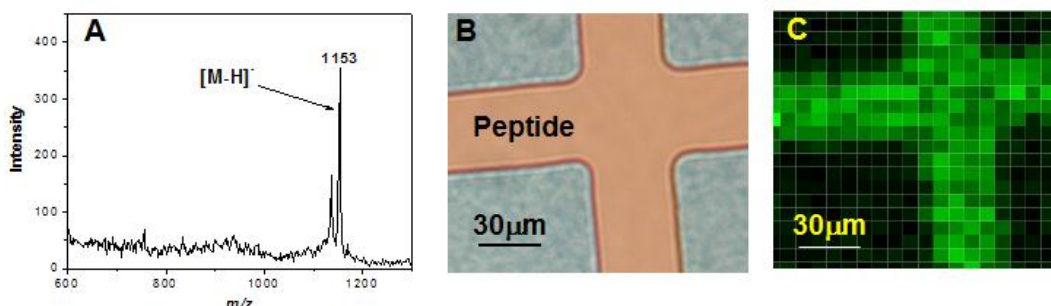
§ 4 研究実施内容及び成果

4. 1 3D 分子イメージング分析手法開発

(1)研究実施内容及び成果

有機物や生体高分子のイオン化効率が、入射イオン種やそのエネルギーに大きく依存していることをこれまでの研究で明らかにしている。高い空間分解能で質量イメージングを実現するためには、イオン化効率だけでなく、損傷断面積を低くすることも必須である。アミノ酸、ペプチド、脂質などの生体高分子に対し、様々な入射イオンを用いてイオン化効率と損傷断面積を測定し、重イオンの加速エネルギーが高いほど質量イメージングに有利であるということを明らかにした。さらに、実サンプルを測定したときに妨害イオンとなるイオン衝突によって生じる分解片(フラグメントイオン)の低減にも、エネルギーの高い重イオンが効果的であることを明らかにした。

そこで、質量イメージング法を確立するために不可欠なパターンのある生体高分子の標準試料として、質量数1000Da を超えるペプチドを市松模様に配置した試料を作成した。6MeV の Cu イオンをパルス化し、通常のリニア型の ToF(飛行時間法)を用いて、この試料の質量イメージングを行い、図1に示すようにミクロンオーダーの空間分解能で分子イメージ像を得ることができた。この試料を用い空間分解能を決めている要因についても検討し、空間分解能向上に必要な課題が、コリメータを使った場合にはビームの発散角が、集束レンズを使った場合には球面収差が大きな要因であることを明らかにした。



6MeV Cu イオンで測定した 2次イオン質量スペクトル 試作したパターン付き標準試料の光学顕微鏡像 ペプチド分子(1153Da)の質量イメージング像

図1 ペプチド(MOCAC)分子の質量スペクトルとパターンニングした標準試料の光学顕微鏡像と1153Da イオンによる分子イメージング像。質量数 1,000Da を超える生体高分子の質量イメージング像を世界で初めて取得するのに成功した。

さらに、培養細胞など生命科学で用いられる実際のサンプル評価を行い、本手法を生命科学に応用したときの課題抽出を行い、培養液に由来する表面汚染や表面形状効果など天然由来の試料特有の問題があることを明らかにした。細胞培養後の基板洗浄法など前処理の工夫を行い、ITO 基板上に培養した細胞 1 個をリン酸イオン(PO_3^-)の信号により分子イメージングすることができた。分子イメージ像のクオリティーは2次イオンの信号強度だけでなく表面汚染によるバックグラウンドにも依存している。このため、2次イオン質量分析計の質量分解能を向上させバックグラウンドを低減することは、分子イメージ像のクオリティー向上には必須であり、10,000 以上の高い質量分解能を持った2次イオン検出系の開発が必要であることを明らかにした。

さらに、生命科学で広く用いられているサンプルである培養細胞の評価を行い、実サンプルにおける課題抽出を行った。新たに確立した培養細胞の急速凍結・切断乾燥法を用いて培養細胞1個の質量イメージングを行った。細胞内部を露呈させるために、Si 基板上に培養した細胞を別のSi 基板で挟み込みサンドイッチした試料を急速凍結し、その後 Si 基板を用いて細胞を劈開し内部を露呈させた。このプロトコルで作成した培養細胞を蛍光顕微鏡法で観察したところ、細胞内部の小器官の構造や形態を維持したまま試料作成が可能であることが分かった(図2-a)。開発したこのプロトコルでは、細胞からのシグナルを妨害しないように、培養液由来のノイズを低減する様々な工夫を行った。

図2-b,c,d に示した質量イメージング像は蛍光顕微鏡像と良く一致し

ており、細胞レベルの質量イメージングが可能であることがわかる。質量イメージング像を詳しく見ると蛍光像では観察されない2つに分裂した細胞の間からも2次イオンシグナルが観察されている。これは、蛍光像と2次イオン像の検出感度の違いによるものであると考えられる。SIMS法は極めて高感度であり、表面数層程度の分子が存在しても検出することができる。このため、蛍光像では見えない少量の分子が表面に存在するだけでもシグナルとして十分検出できる。フォスファチジルコリンやフォスファチジルイノシトールなど様々な脂質分子の2次イオン質量イメージング像から、細胞中の特定の分子分布の計測が可能である。

これらの研究成果は、Rutherford が原子核を発見した著名な実験を開始して 100 年を記念して 2009 年に英国ケンブリッジ大学で開催されたイオンビーム分析では最大の国際会議である 19th International Conference on Ion Beam Analysis で基調講演として発表した。Rutherfordが発見したイオンの後方散乱法は、その後元素分析技術として広く用いられてきたが、我々の研究成果は元素分析から化学状態分析(分子分析)へ、無機材料分析だけでなく有機材料分析へという新しい可能性を示す成果として高い評価を得た。

この発表を契機に、高速イオンのマイクロビームラインを保有している複数の研究機関から共同研究の依頼があり、ヨーロッパでの研究もスタートした。高速イオンの集束技術を持つ英国のサリー大学と共同で磁場型四重極レンズにより高速重イオンを集束し、2次イオンスペクトルを取得する研究を共同で実施した。10MeV の酸素イオンビームを2マイクロメートルまで集束し、図3に示すように

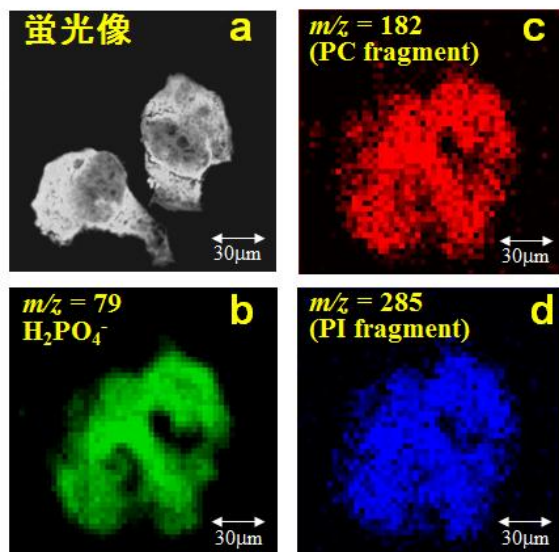


図2 ラット 3T3 細胞の蛍光顕微鏡像(a)と質量イメージング像 (b) $m/z=79$ Da:リン酸イオン(c) $m/z=182$ Da:フォスファチジルコリンのフラグメントイオン(d) $m/z=285$ Da:フォスファチイノシトールのフラグメントイオン

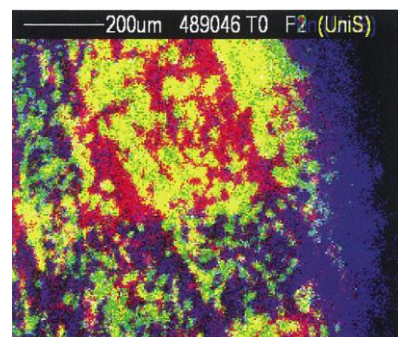
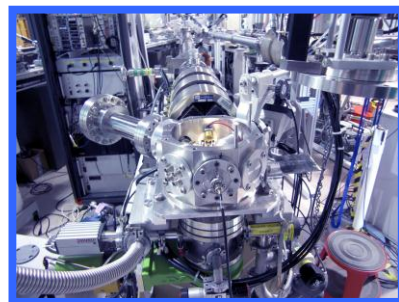


図3 サリー大学に設置した MeV-SIMS 装置と指紋の質量イメージ像。2μm に集束した 10MeV 酸素イオンを用いた。

指紋や DNA チップなどの分子イメージ像を取得した。磁場型四重極レンズを用いることにより、現在のコリメータ方式と比較すると、1000倍以上のイオン電流が得られており計測時間の短縮が可能であること、ミクロンオーダーの空間分解能が実現できることを実証した。

この共同研究成果は、その後ヨーロッパ内の 11 箇所の加速器を保有するイオンビーム研究センターの連携研究である SPIRIT(Support of Public and Industrial Research using Ion beam Technology:2009年開始)の研究課題として採択された。生体材料への応用だけでなく、考古学、犯罪捜査学など新しい分野への応用を試み大きな成果を挙げている。さらに、IAEA(International Atomic Energy Agency)が新しい加速器の利用法として本技術を取り上げ、専門家による諮問会議(ウィーンで2011年11月開催)と MeV-SIMS ワークショップ(ドブロブニクで2012年6月開催)に対する支援を得ることができた。これらの会議の成果をまとめ Technical Memo として IAEA に答申書を提出している。このように日本から発信した MeV-SIMS 法は各国の研究者から興味をもたれ、公表されているだけでも現在5カ国の研究機関で MeV-SIMS の研究開発がスタートした。今後さらに多くの研究機関が本技術に取り組むと期待され、次世代の分析技術として高い注目を集めている。

これらの研究で明らかにしたように、高い質量分解能や測定時間の短縮を実現する新しい分析システムの開発が不可欠となってきた。これまでは入射イオンをパルス化する測定手法を用いており、入射イオンの大半が測定に利用されていなかった。そこで、入射イオンをパルス化することなく全ての質量数にわたって測定することのできる質量分析手法として直交引き出し型飛行時間法[oa-ToF (orthogonal acceleration time of flight)]を用いた MeV-SIMS 装置の開発を行った(図4)。このような質量分析法はこれまで SIMS 装置には全く用いられておらず新しい試みであり、どのようにして1次イオンを試料に導くか、どのように2次イオンを効率的に引き出すかなど様々な課題があった。oa-ToF 装置では、検出効率を向上させるためには分析する2次イオンの速度分散を抑えることが必須であり、そのためにコリジョンクーリングと呼ばれるトラップ中でのガス衝突による冷却が必要である。このため、トラップ中のガス圧力を数 Pa から数十 Pa に保つ必要があり、高真空、もしくは超高真空を

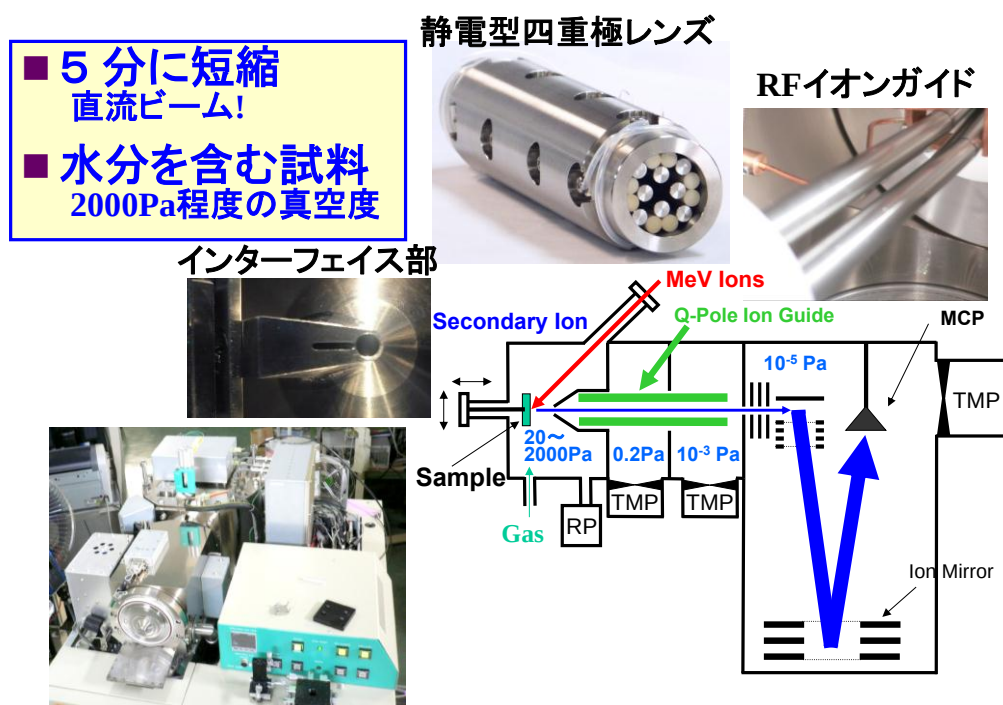


図4 新たに開発した垂直引き出し型 MeV-SIMS 装置 高い質量分解能(10,000 以上)、測定時間の短縮(5 分以内)、低真空(2,000Pa)などのこれまでにはない特徴を有する。培養細胞、組織切片など生命科学で広く用いられている試料の測定が可能となった。

前提としている既存の SIMS 技術とは全く異なる技術開発が必要となる。

2次イオンの引き出しは最も難しい課題であり、様々なシミュレーションや試行錯誤の末、試料室に He ガスを数百 Pa 程度導入し、導入した He をガス流として引き出すことで、効率的に2次イオンをイオントラップ部の RF ポール内に導くことに成功した。イオントラップ部にインジェクションされた He ガスは、コリジョンクーリング用のガスとしての役目も持っている。2次イオンがいったんイオントラップに捕獲されると He ガスとのコリジョンクーリングにより速度分散がなくなり、全ての2次イオンが直交型質量分析部で分析される。2次イオンを効率的に検出するために、ガス流量やサンプリングコーンの形状などを工夫し、質量分析計との間に新たなインターフェイスを開発した。また、1次イオンは試料直前まで差動排気により可能な限り高真空を通過するようにした。試料の移動をステップモーター駆動に変更し、組織切片など 1mm 以上の大きな試料の分析も可能となるようにサンプルホルダーを設計した。

このようにして開発した新しい MeV-SIMS 装置は、10,000 以上と極めて高い質量分解能を持ち、入射イオンをパルス化することなく2次イオンを質量分析できるので短時間測定が実現できるなどの優れた特徴を有している。さらに、この装置では試料室の真空度を高く保つ必要がないため、数百 Pa 以上の低真空でも2次イオン計測が可能であり、細胞や組織切片などの生体試料を含水状態(濡れた状態)で計測できるなどこれまでの2次イオン質量分析法にはない特徴を有しており、“Wet-SIMS”と命名した。質量分析部とのインターフェイスの口径をさらに小さくすることにより、大気圧下での計測も可能である。

新しく開発した2次イオン質量分析装置の特徴を列挙すると、

- 質量分解能が高い($M/\Delta M$: 10,000以上)。
- 入射イオンをパルス化する必要がなく計測時間の短縮が可能。
- 分析環境を高真空から低真空まで自由に設定でき、水分を含む試料の分析が可能。などこれまでの2次イオン質量分析法にはない特徴を有している。

生体試料で多く用いられる水を含む試料を観察するためには、水の蒸気圧が 10℃で 1200Pa あるため、1000Pa 以上の低真空中に試料を設置した状態で分析を行うことが必要である。通常低速イオンをこの真空度で輸送することは困難であるが、高速重イオンを用いることにより低真空中でのイオン照射を可能にした。この手法を用いて、テストサンプルや組織切片や培養細胞など生命科学で用いられる実際の試料評価を行い、本手法を生命科学に応用したときの課題抽出を行った。ラットの脳や脊髄などのイメージングを行い、脂質やコレステロールのイメージングに成功した。

このイメージング装置を用いてラット小脳組織切片中の生体高分子分布の分子イメージング像観察を行った結果を図5に示す。ラットから摘出した脳組織を急速凍結し、クライオマイクロームで切片化した試料を用いた。ラットの脳小脳中にあるコレステロール [m/z : 369.5]、フォスファチジルコリン (PC (32:0)) [m/z : 772.5]、フォスファチジルエタノールアミン [m/z : 716.5]を分子イメージングした。小脳は白質層、顆

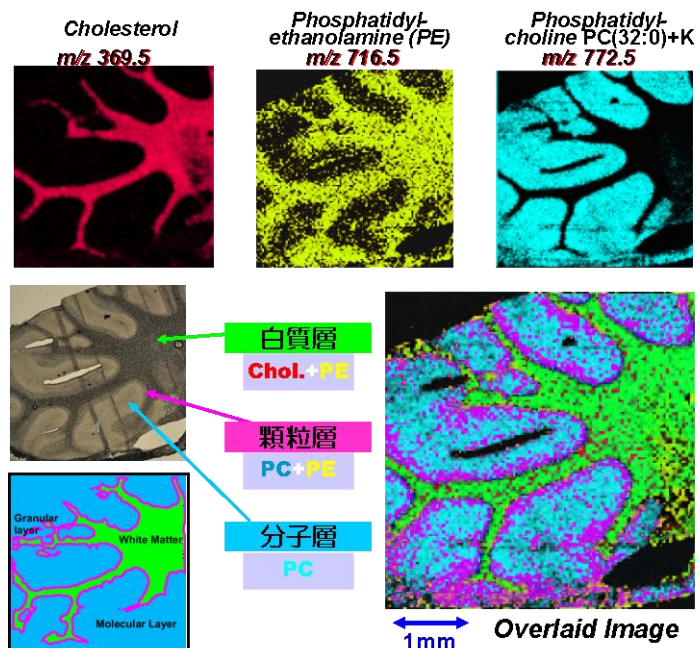


図5 ラット小脳の質量イメージング像 様々な分子の分布は異なっており、その様子が明瞭に観察されている。脂質分子の分布は解剖学的な知見や光学顕微鏡像と良く一致している。

粒層、分子層からなることが解剖学的に知られており、図5に示すように光学顕微鏡像からも明確にこれらの領域が区別されている。脳の中には様々なリン脂質分子が含まれており、分子種によってその分布は大きく異なっている。質量イメージング分析から、コレステロールは白質層に多く含まれており、フォスファチジルコリン(PC(32:0))は分子層と顆粒層に多く含まれている。また、フォスファチジルエタノールアミンは白質層と顆粒層に多く含まれていることがわかる。このように組織切片においても、高速重イオンを用いる高感度の分子イメージング法で観察することにより組織内の詳細な分子分布を測定することが可能であることを明らかにした。

さらに、ラットの様々な組織切片中の生体高分子分布の観察を行った。組織切片を観察するためには、組織の固定法や切片化の方法、さらには、脱水方法などの開発が必要である。ラットの脳、脊髄、筋肉などの組織を凍結し、マイクロームで数十ミクロンの厚みに切片化した試料を用いた。生体組織の場合には水素原子付加イオンだけでなくアルカリ付加イオンも多く検出されることが明らかになった。イオン化ポテンシャルの低いNaやKなどのアルカリ金属原子が組織内に多く含まれることや、細胞内と細胞外とでNa,Kの比が異なることがデータ解析を複雑にしており、脂質のデータ解析を進めるためにはデータベースの作成なども必要となる。

本イメージング装置の性能を他の装置と比較するため、様々な比較実験を行った。既存のSIMS法として最も生体高分子に高感度であると言われている Bi_3^+ と比較した結果を図6に示す。試料としては生体内で最もよく見られる脂質の一種であるジステアロイルグリセロフォスファチジルコリン(DSPC:1,2-Distearoyl-sn-glycero-3-phosphocholine)をSi基板にスピコートしたものを用いた。2次イオンイールドが1000倍違うだけでなくスペクトル中に見られるフラグメントイオンも大きく異なっていることがわかった。 Bi_3^+ の場合には最も強いフラグメントイオンである184Daに見られるコリン由来のフラグメントイオンと分子イオンとの比は1000倍以上にもなるが、6MeVのCuの場合には10倍程度とフラグメントが大幅に低減されており、2次イオンイールドだけでなくスペクトルの質も大きく改善されることが明らかになった。フラグメントの抑制は、多種の複雑な生体高分子からなる生体試料を分析するためには必須であり、MeV-SIMS法の有利な点である。さらに、同じときに切り出した組織片を、 Bi_3^+ を1次イオンに用いるSIMS装置を用いて測定した。100倍以上の高感度化が高速重イオンを用いることで実現できることを、実サンプルである組織切片の質量イメージ像を用いて従来法と比較することにより、明らかにした。

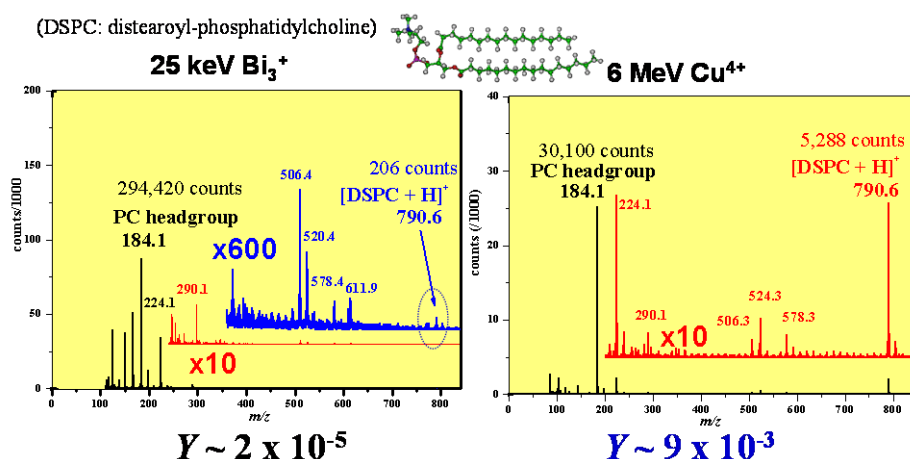


図6 25keVの Bi_3^+ イオンと6MeVのCuイオンで測定した脂質(DSPC)の2次イオンスペクトルの比較。 Bi_3^+ で取得したスペクトルに比べてMeV-SIMSで測定したスペクトルは790.6Daに観察される分子イオンの強度が高く(1000倍)、スペクトル複雑にするフラグメントイオンも少ない。フラグメントが少ないことは多様な生体高分子からなる実サンプルを測定する際に有利であり、MeV-SIMS法の特徴の一つである。

さらに、MeV-SIMS 法とイメージング MALDI 法との比較も試みた。ラット小脳はイメージング MALDI 法でよく分析されているサンプルであり、過去に 3 件の報告があり比較対象としてはよいサンプルである。実際の組織切片は極めて多くの分子からなるため、図7に示すように極めて複雑なスペクトルになる。質量数 700Da から 850Da の範囲には多くの脂質分子によるピークが見られ、これらのピークを使い様々な分子のイメージング像を得ることができる。その中で強い強度を示した質量数 772.6Da と 798.4Da の 2 つの脂質分子に由来するピークのイメージ像を図7に示す。772.6Da はリン脂質 PC32:0, すなわちリン脂質の親水基がコリンでリン酸結合を介して繋がっている 2 個の脂肪酸の長さ(炭素数)が 32(16+16)で脂肪酸中の 2 重結合の個数が 0 個, であると同定されている。同様に、798.4Da のリン脂質は PC 34:1 と脂肪酸の直鎖が少し長く(34:16+18) 2 重結合が 1 つある極めて似たリン脂質分子である。

MeV-SIMS 法による測定結果では、この 2 つのリン脂質分子は極めて似た分布を有していると観測された。しかし、MALDI 法では 772.6Da の分子に対しては MeV-SIMS 法と似た結果が得られているが、質量数 798.4Da の分子については、MALDI 法では全く分布が異なり、脳切片全体に均一に分布しているように見える。この結果は、2008 年の米国の Caprioli (イメージング MALDI 法の発明者)のグループの結果でも同様である。試料の作成に問題があるのであれば、772.6Da の分子の分布も観測されないはずであり、試料そのものの問題ではない。MeV-SIMS 法との最大の違いはマトリックスの塗布の有無であり、マトリックスを塗布したことによる影響であると考えるのが妥当である。MALDI 法ではマトリックスは単にイオン化を促進させるだけでなく、試料中の分子を溶かし込む効果を持っているとされており、溶かし込むときに分子分布が大きく変化してしまった可能性が高い。しかし、この 2 つの分子は極めて似た分子構造を有しており、マトリックス塗布が試料の分子分布に与える影響は極めて複雑であることを意味している。不飽和脂肪酸は飽和脂肪酸に比べて融点が低くなることは知られているが、その影響が現れているとすると MALDI 法によるイメージ像の解釈は極めて難しいと考えざるを得ないと言える。それに比較して MeV-SIMS 法ではマトリックスの塗布なしに高い感度が得られるのでイメージング法には適しているといえる。

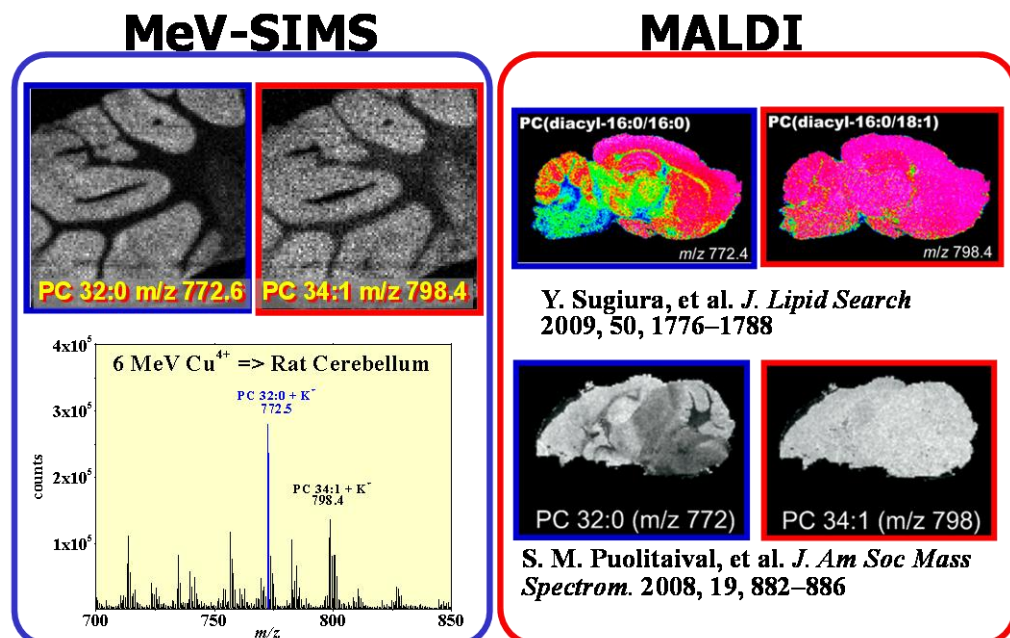


図7 MeV-SIMS 法 MALDI 法によるラット小脳の分子イメージング像の比較 質量数 772.6Da の分子は MeV-SIMS 法、MALDI 法とも同じ結果が得られているが、質量数 798.4Da の分子については全く異なっている。マトリックス塗布による影響で MALDI 法では均一に分布しているように見えている。マトリックス塗布が必要ない MeV-SIMS 法の優位点である。

これらの実験を通して MeV-SIMS 法の優位性は明らかになってきたが、空間分解能の改善や測定時間の短縮などの課題も明確になってきた。そこで、高速重イオンを集束できる静電型四重極レンズシステムの開発を行った。高精度なレンズシステムを導入することで空間分解能を向上させ、また電流密度を高くすることで測定時間も短縮できる。まず、静電型四重極レンズのシミュレーションを行い、集束精度を決定する要因について検討した。その結果、2 つの 4 重極レンズ同士を1度以下の精度で 90 度に配置することがもっとも難しい部分であることが明らかになった。レンズ電極の加工精度、組み立て精度、集束電源の安定性などを考慮した静電型のダブレットレンズを新たに設計、製作した。

試作した四重極レンズは、金属ロッドとレンズを支持する絶縁体を高精度に NC 加工したものであり、構造が単純であるという特徴を有している。静電型四重極レンズはこれまで試作例がほとんどないため、簡単な構造を持つレンズをまず試作しシミュレーションとの比較検討を行った。レンズを組み上げて3次元形状測定器を用いて精度の評価を行ったところ、四重極ロッドや支持絶縁体の加工精度(数ミクロン程度)よりも組み上げ精度(数十ミクロン程度)に課題があることが明らかになった。試作した静電型四重極レンズを、テストビームラインにおいてイオンビームの集束特性を調べたところ、事前のシミュレーション等から予測された通り、組み上げ精度に由来する誤差のために所望の性能が得られないことが判明した。しかし、この設計においても1桁以上の電流密度の向上が可能となるため、加速器に組み込み 6MeV の Cu イオンを用いてこのレンズの集束性能の評価を行った。コンデンサースリットを 500 μm としたときに、X, Y 軸の縮小率として 8.5 倍、6.9 倍、また、このときにビーム電流密度を 75 倍に向上することができた。ビーム集束後の電流密度としては、約 2 $\mu\text{A}/\text{cm}^2$ (1.5 $\times 10^{13}\text{ions}/\text{cm}^2$) が得られ、Static Limit を 10¹²ions/cm² とすると 0.1 秒以内に 1pixel の測定が終了できることになる。100x100 pixel のイメージング分析を 1000 秒以内に行うという初期目標をこのレンズを用いることで達成することができた。

図8に 4 mm x 4 mm を 100 x 100 pixel で走査したときのイメージング像を示す。この質量イメージは 5 分で取得したにもかかわらず良好なイメージング像が観察されており、これまで数時間掛かっていたイメージング測定を大幅に短縮させることに成功した。しかし、集束後のビーム径は数十 μm であり、レンズ性能自身は設計目標より一桁悪い値となってしまった。

さらに高精度な四重極レンズを実現するため、新しい構造を持つ静電型四重極レンズとして、産総研の岡山氏が電子顕微鏡の収差補正レンズとして提案している自己整合型四重極レンズの設計製作を行った。このレンズの特徴は全ての部品が円筒形であるため加工精度が優れていること、四重極レンズの位置が自己整合的に決まること、レンズ同士の回転ずれがほとんど無いことなどが挙げられる。

岡山氏の協力をあおぎ、実際にレンズ部品を試作したところ、絶縁物(セラミクス)の加工精度が最も悪い(難しい)ことが明らかになった。このため、複数本のロッドを研削し加工精度を測定し、最も良い組み合わせを選ぶこととした。さらに、数ミクロンの精度で組み上げるための治具や組み上げ手法についても検討を加えた。数ミクロンのごみが入っても組み上げることができないのでクリーンルームで組み上げること、一部の部品を加熱し熱膨張率の差を利用してクリアランスのない高精度の部品を組み立てることなどの工夫を行い自己整合型四重極レンズを試作した。

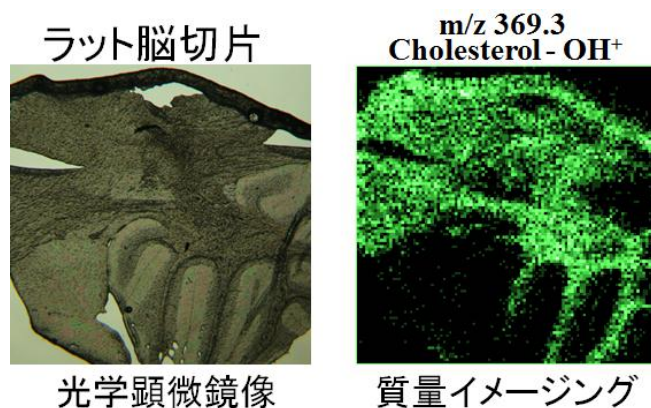


図8 集束レンズを用いて5分で測定したラット小脳の分子イメージング像 四重極レンズより電流密度向上させることができたので、短時間にもかかわらず良好な質量イメージング像が得られた。

この新しい静電型集束レンズシステムを使い、その特性を評価した。これまでの収束レンズの評価にはナイフエッジを用いイオン電流量の変化を測定してきたが、イオン電流量が1pA以下となってきたため、イオン電流でのビーム径評価が困難になってきた。そこで、2次イオンや2次電子を使ったビーム径評価を行うため、2次電子増倍管 (SEM) をターゲットチャンバーに組み込んだ。10⁶ 倍増幅を持つ2次電子増倍管を使うことにより、ビーム径の評価が容易になった。現在様々な調整方法を使ってビーム径を収束させているが、投影アパチャー径、レンズ電圧、ダイバージェンスアパチャーなど極めて多くのパラメータがあるため、それぞれの最適化アルゴリズムを検討している。今のところ、最もよい収束条件で8 μ mのビーム径が得られた。今後さらに調整を進め、ビーム径の改善を試みる。

4. 2 ソフトマテリアルエッチング技術

(1) 研究実施内容及び成果

高分子の2次元分布の情報だけでなく3次元的な空間分布情報を得るためには、深さ方向にソフトマテリアルをエッチングしながら2次元イメージング像を取得することが必要である。特に有機多層膜を使う有機エレクトロニクスデバイス・プロセスの研究開発においては、高精度の有機物深さ方向分析技術の確立が欠かせない。しかし、有機分子の深さ方向分布情報を得るためには、イオン衝撃に極めて弱い有機物や生体高分子に損傷を与えることなくエッチングする画期的な技術が必要である。本研究では等価的に低いエネルギーを実現できるクラスターイオンを用いて、PMMA や有機 EL 材料、さらにアミノ酸、脂質などの生体高分子薄膜のエッチングを行った。エッチングしたこれらの有機薄膜の表面状

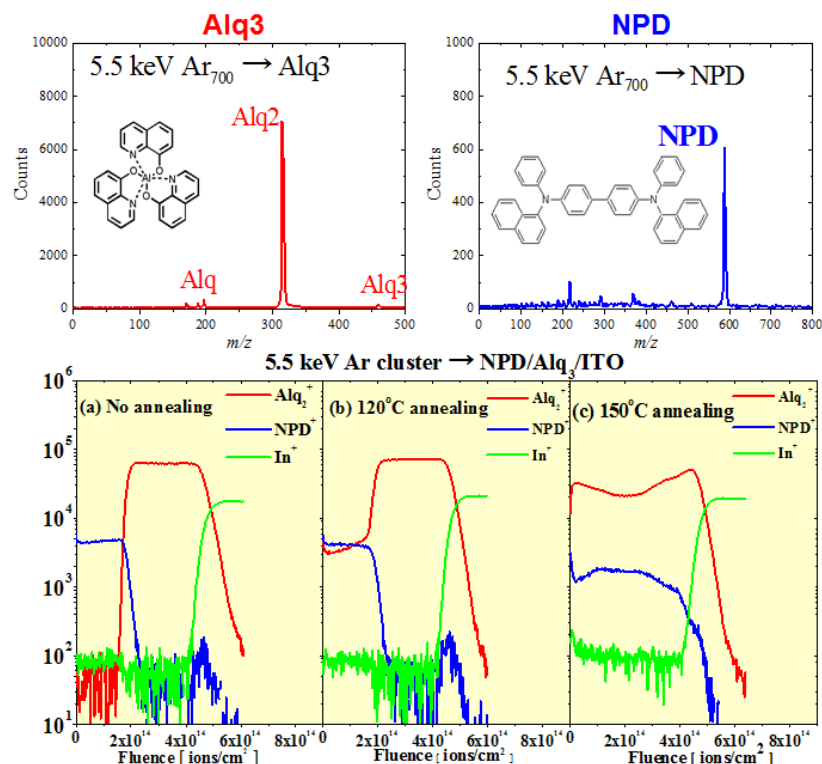


図9 有機半導体の2次イオンスペクトルと有機発光ダイオード(OLED)多層膜の深さ分析結果 従来は不可能であった壊れやすい有機半導体分子からなる積層膜の深さ分析を可能とし、デバイスの熱安定性の主因を特定することができた。今後ますます応用の拡大が見込まれる有機デバイスの研究開発に本技術が極めて有効であることを示すことができた。

態は、イオンの入射エネルギーやクラスターサイズに依存しており、クラスターイオンのエネルギーが低くクラスターサイズが大きいほど低損傷でエッチングが可能であることが分かった。

クラスターサイズが100を超えるような大きなクラスターイオンの場合には、表面損傷がクラスターイオンの入射速度 (eV/atom) によって決まっており、数 eV/atom 以下の極めて低速のイオンビームを用いる必要があることを明らかにした。数 eV/atom 以下の入射速度が適しているという結果は、最新の分子動力学シミュレーションの結果とも一致している。さらに、C₆₀ などの小さなクラスターイオンでは加工の難しい有機 EL 材料のエッチング加工も行い、ガスを原料とする巨大なクラスターイオンを用いることで他のクラスターイオンでも困難な壊れやすい有機分子のエッチングが可能であることを明らかにした。

実際の応用例として有機半導体として実用化されている有機発光ダイオード (OLED) の有機多層膜構造 (NPD, Alq3 膜) を低エネルギーのクラスターイオンビームを用いた2次イオン質量分析法 (SIMS) により深さ分析を行った。有機半導体分子に由来する特徴的なピークが2次イオンスペクトルに見られる。Ar クラスターイオンによるエッチング法により、これらの分子イオンを用いた深さ分析が可能であることを明らかにした。さらにこの手法を用いて、有機半導体デバイスの熱安定性について調べた。図9-(a)に示すように成膜直後は NPD 層と Alq3 層は綺麗に分離しており、設計どおりのデバイス構造になっている。しかし、この膜を120℃窒素中でアニールすると Alq3 分子がNPD膜中に拡散している様子が観察された図9-(b)。NPD分子は Alq3 層には拡散していないこと、Alq3 分子の分布が拡散方程式に従わないことなどから、Alq3 分子が拡散しているのではなく、ガラス転移温度が低いNPD膜が加熱により流動化したことによるものであることを明らかにした。NPD分子の骨格を維持したまま分子構造を少し変えた分子を使うと耐熱性を向上させることができることも明らかになっており、材料開発やプロセス開発に有機多層薄膜分析技術が極めて有用であることを示すことができた。

低損傷エッチングを実現できるガスクラスターイオンを用いるとポリマーや生体高分子などのソフトマテリアルの深さ方向分析が可能となる。様々な材料の深さ分析を行い、これまで有機物の深さ分析に用いられてきた C₆₀ イオンと比較して、ダメージが少ない、エッチング時の表面荒れが抑えられる、スパッタ率の変動がないなど優れた特徴を有していることを明らかにした。光電子分光法やエリプソメーターを使ったポリマー表面のダメージ評価から、ダメージ層は 1nm 以下と極めて薄く C₆₀ のようにポリマー組成比の変化は見られなかった。さらに、加工条件を最適化することにより化学結合状態 (ケミカルシフト) も照射前後でほとんど変化させることなくエッチング可能となった。これらの結果よりクラスタービーム照射

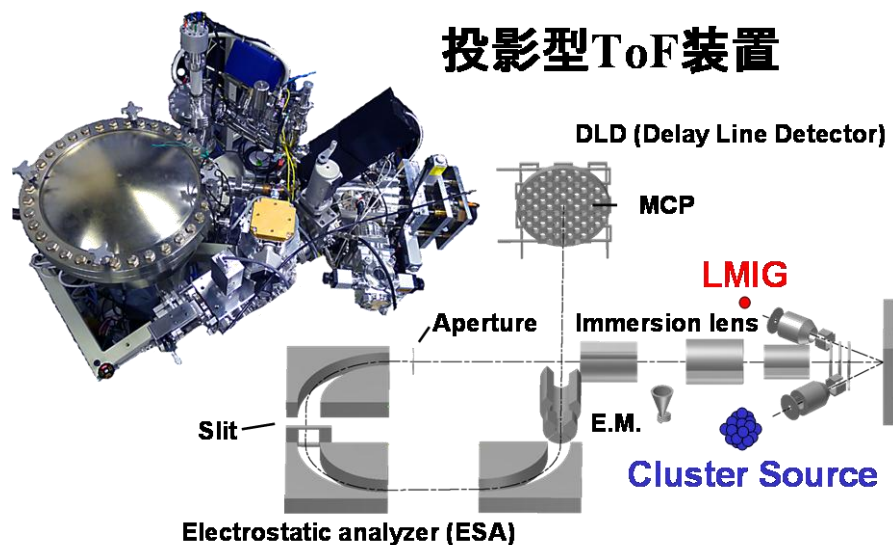


図 10 小型クラスターイオン源を備えた投影型クラスターSIMS装置 2次イオン像を静電レンズ系で拡大投影することにより質量イメージングを取得する。2次イオン検出にDLDを用いることにより、位置と時間を高精度に計測することができる。

は2次イオン質量分析法のプロープとしてだけでなく、光電子分光法のエッチングビームとしても有用なことが明らかとなり、深さ方向や埋もれた界面などの化学結合状態を計測できる新しい光電子分光法として実用化することができた。光電子分光装置を販売している主要なメーカーから Ar クラスターイオン銃を搭載することがアナウンスされており、有機物の深さ分析を実現できる新しい手法として活用が期待されている。

有機半導体だけでなく他のソフトマテリアルにも、入射クラスターイオンのクラスターサイズやエネルギーを最適化することにより、ダメージをほとんど与えることなく高速にエッチングできることを明らかにした。さらに細胞膜の主な構成分子であるリン脂質の薄膜や培養細胞のエッチング加工も行い、クラスターイオンによるエッチングが表面汚染除去や細胞内部の露出などに効果的であることを明らかにした。有機材料の深さ分析を実現するこの手法は、Molecular Depth Profiling と呼ばれ、SIMS 法の新しい分野として有機半導体だけでなく、機能性ポリマー、バイオフィルム、ドラッグなどの分野での応用が進んでいる。Ar クラスターイオンビームによるスパッタリング法はこの分野で既にデファクトスタンダードとなっており、これからも多くの応用分野が開拓されると期待できる。

既存の SIMS や XPS 装置にも取り付け可能な小型クラスターイオン源の試作を行い、 $100\mu\text{A}/\text{cm}^2$ 以上のビーム電流密度を実現した。このイオン源は小型であるだけでなく 2 段のディフレクターによるパルス化も可能な機構を有しており、100ns 以下のパルスビームを発生させることが可能である。このクラスターイオン源を1次イオンに使った SIMS 分析装置を実現するために、図 10 に示すような投影型の二次イオン光学系とクラスターイオン銃を組み合わせたイメージング装置の開発を行った。この装置のために開発した新型イオン銃は極めてコンパクトであり、既存の分析装置に容易に設置できる。エッチングビーム・プローブビームの両方に利用可能なクラスターイオン源は極めて汎用性が高く、深さ分析用小型クラスターイオン銃の基盤を確立した。

この装置を使いクラスターイオンによる2次元投影イメージ像の測定を行った。アミノ酸の一種であるアルギニン薄膜に 10keV のGaイオンを一点照射しダメージを形成した。その表面を Ar クラスターイオンを1次イオンに用いた SIMS イメージング測定を行った(図 11)。アルギニンの分子イオンである 175Da の分布はイオンが照射された中心部分の強度が弱くなっていることがわかる。同様にアルギニン分子が少し壊れたフラグメントイオンである 70Da の質量イメージ像でも中心付近が弱くなっているが、その領域は少し狭くなっている。

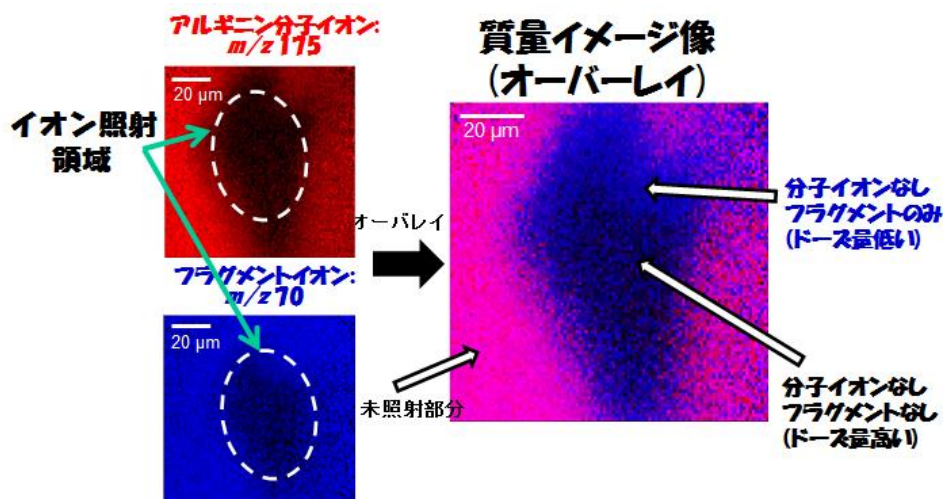


図 11 イオン照射によりアルギニン薄膜に形成したダメージ層の質量イメージ像 試料の中心部にGaイオンをスポット照射しダメージを形成した。アルギニンの分子イオンの分布はイオンが照射された中心部分の強度が弱くなっており、フラグメントイオンの質量イメージ像では弱い領域は少し狭くなっている。中心付近はイオンドーズ量が高く完全に炭化されていることがわかる。この投影型 ToF 装置で5・mの空間分解能を実現することができた。

これは、分子イオンは少量の Ga イオン衝突で壊されるが、フラグメントイオンが放出しなくなるには多数の Ga イオン照射が必要であるためである。この2つのイメージを重ね合わせるとピンクの領域は全くの未照射領域、青い部分はイオンドーズが低く分子イオンは見られないがフラグメントイオンが見られるところ、黒い中心部分はイオンドーズ量が高いため分子イオン、フラグメントイオンとも見られず完全に炭化してしまったところと、Ga イオン照射による分子破壊の空間分布を明確に観測することができた。また、標準試料のイメージング像の観察から約5 μm の空間分解能がこの装置で得られることがわかった。検出器との間にさらに中間レンズをいれると 1 μm 程度の空間分解能が得られると計算されており、空間分解能についてかなり良い結果が得られた。

このように、1次イオンビームを集束させる必要のない投影型 SIMS 装置は、1 μm 程度の空間分解能を実現するには適した装置であると考えられるが、バイオへの応用を考える場合には解決すべき課題がある。一つは、質量分解能の問題であり、もう一つは測定時間の問題である。質量分解能は、バンチング法などにより入射クラスターイオンの短パルス化を図ることで解決可能であると考えられる。現在用いている2次イオン検出器が DLD(Delay Line Detector)という2次元の位置(<100 μm)と時間(<1ns)を高精度に測定できるものを使っているが、測定原理上、同じ時間(同じ質量)に検出器の異なる 2 箇所に来た2次イオンを検出できないという制約がある。このため、1回の1次イオンパルスで同じ質量数を持つ2次イオンが複数放出されると検出できないため、1次イオン電流を低くしなければならない。そのため、1次イオンのイオン電流が制限され測定時間が長くなってしまいう問題がある。これは完全なパラレル検出と ns 以下の時間分解能という 2 つの仕様を満たす検出器が現在世の中に存在しないためである。時間分解能(質量分解能)を優先させると測定時間が長くなり(DLD の場合)、完全並列の検出器を使うと測定時間は短くなるが時間分解能が 100ns 程度まで悪化してしまうという(SIPIX の場合)トレードオフがある。

工業的に利用されている有機材料の場合には材料の純度も高く、質量分解能が 1000 程度あれば、ほとんどの場合には問題がないと考えられる。しかし、生体材料を分析する場合には、様々な生体高分子が入っているため少なくとも 10,000 以上の質量分解能が必要であることをこれまでの研究で明らかにしている。現在、CERN(欧州原子核研究機構)では、素粒子研究のために位置と時間を同時に高精度に計測できる検出器の開発が進んでおり、将来そのような検出器が利用可能となれば投影型でも質量分解能を高くできる可能性はありと期待される。

一方、1次イオンを集束し走査して質量イメージング像を測定するマイクロビーム方式は1次イオンの集束用レンズカラムの開発が必要であるが、質量分析器を比較的自由に選択でき、高い質量分解能を容易に実現できる。集束カラムを開発するために、イオン軌道のシミュレーションを行った。様々なレンズ形状をシミュレーションすることにより、色収差の少ないレンズ系の設計を試み、レンズ径が小さくても加速型のアインツェルレンズもしくはバイポテンシャルレンズを用いることで、数 μm 程度に集束することが可能であることを明らかにした。これらのシミュレーションを基に集束カラムの試作を行ったところ、5 μm 以下のビーム径まで集束させることができた。クラスターイオンの場合にはイオンのエネルギー分散が大きいので集束が困難であると考えられてきたが、レンズカラムの設計次第で良好な集束が実現できることを示すことができた。テストしている収束カラムで得られたクラスターイオンビームは数 μm のビーム径を持っているだけでなく 100 $\mu\text{A}/\text{cm}^2$ と極めて高いイオン電流密度を持っており、クラスターイオンを 1 次イオンとして用いる SIMS イメージング法に適したビームとなっている。

高速重イオンで採用した垂直引出型 ToF 法と新たに開発した集束レンズを使い走査型2次イオン質量分析装置を開発した。この装置は、1次イオンをパルス化することなく ToF 質量スペクトルを取得することができるので、測定時間の短縮や質量分解能の向上などこれまでにない優れた特徴を有するクラスター SIMS 装置である。高速重イオン SIMS で研究してきた垂直引出型 ToF 装置での経験を最大限に活かすことで、半年の短期間で装置開

発を行うことができた。新しく開発した装置(図 12)はフットプリントも 1m 四方と極めてコンパクトになっておりラボユースの質量分析装置と遜色のない大きさになっている。現在のところ、質量分解能 10,000 以上、空間分解能 10 μ m の性能が出ており、Ar クラスターイオンビームを使う装置としては世界最高性能の SIMS 装置を開発することができた。この装置の対物レンズの集束性能は、10 μ m とまだ十分とはいえないが、100 μ A/cm² 以上の高いビーム電流密度を実現している。

この装置を使いラット小脳組織切片中の生体高分子分布の分子イメージング像観察を行った結果を図 12 に示す。ラットから摘出した脳組織を急速凍結し、クライオマイクロームで切片化した試料を用いた。ラットの脳小脳中にあるコレステロール [m/z:369.7] (緑), フォスファチジルコリン(PC(32:0)) [m/z:773.0](青)の質量イメージング像を取得し、オーバーレイした。図中の光学顕微鏡像からもわかるように、小脳は白質層、顆粒層、分子層の3層からなることが知られている。脳の中のリン脂質分子の分布はこれまで明らかにしてきたように局在性が高い。質量イメージング分析から、コレステロールは白質層に多く含まれており、フォスファチジルコリン(PC(32:0))は分子層に多く含まれている。このように組織切片においても、クラスターイオンを1次イオンに用いることで質量イメージング像を観察できることを示すことに成功した。クラスターイオンは分子構造を壊すことなくエッチングできるので、生体高分子の3次元分布測定への道も拓けた。今後は、感度向上やビーム径の更なる縮小などを行い、高感度で高空間分解能の質量イメージング技術として開発を進めていく。

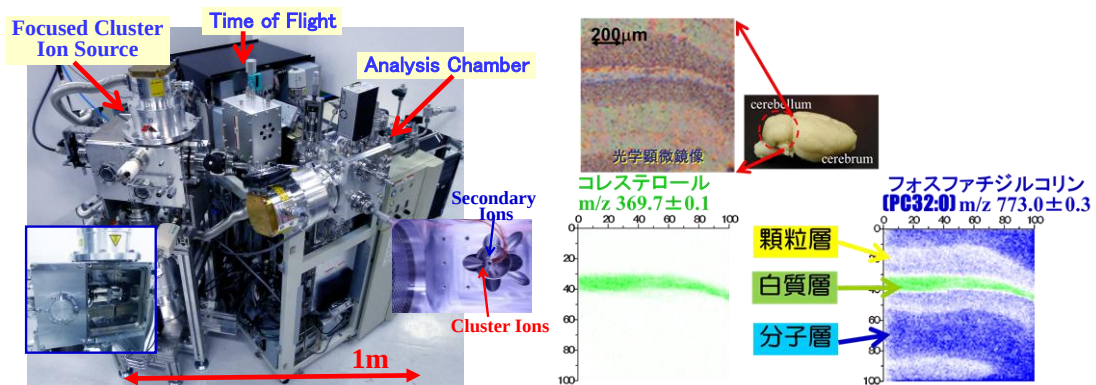


図 12 新たに開発した世界最高性能を持つ Ar クラスターSIMS 装置とこの装置を用いて取得したラット小脳の分子イメージング像 分子イメージング像は光学顕微鏡像と良い一致を示している。

4. 3 ナノ・バイオ材料分析プロトコール

(1)研究実施内容及び成果

質量イメージング法を生命科学の分野で応用していくためには、蛋白質、脂質、糖質など生体内に存在する壊れやすく変質しやすい様々な生体高分子材料の分析プロトコール確立が不可欠である。特に、生体組織切片や培養細胞などは水分を60%程度と多量に含んでおり、細胞内の構造を維持するためには水分子を 1000K/s 以上の速度で急速冷凍しアモルファス状態にする必要がある。さらに、細胞の構造を壊すことなく乾燥させる冷凍乾燥法も必要である。新たに開発した急速凍結乾燥法を用いて作成した培養細胞試料を蛍光顕微鏡法で観察したところ、細胞内部の小器官の構造や形態を維持したまま乾燥することができた。高真空中(<10⁻³Pa)でも大気圧下でも細胞構造を維持したまま乾燥することが可能であるが、高真空中で乾燥したほうが表面の分子汚染が少なく、ノイズの少ない質量イメージング像が得られることもわかった。このように、蛍光顕微鏡による凍結状態における細胞内部構造の観察によりフリーズフラクチャー条件の探査を行い、内部構造を壊すことなく凍結させる条件や切断および冷凍乾燥できるプロトコールを確立した。

このプロトコールを用いて作成した培養細胞のイメージング結果は、図2に示したとおりである。生体高分子の分布が明瞭に観察されている。この測定の場合には培養基板表面

からの汚染を避けるため切断用に後から貼り付けた基板に付着した細胞片を用いた。培養基板上の細胞を観察するためには汚染除去が必要であるが、溶液による洗浄は極めて困難である。そこで、生体高分子を壊すことなくエッチングできるクラスターイオンビームによる汚染除去を試みた。培養中に表面に吸着した汚染分子は極めて薄く、少ないイオンドーズ量で十分除去可能であることがわかった。実際に培養細胞をクラスターイオンビームでエッチングして測定したイメージング像を図13に示す。光学顕微鏡像との対応は極めてよく、良好なイメージ像が観察されている。しかし、これまで報告してきたように光学顕微鏡では観察されていない領域にも質量イメージング像ではシグナルが見られており、光学顕微鏡がバルク評価であること、SIMS法が表面分析であることによる表面感度の違いによる差異が明瞭に見られている。

さらに、水分が少なく強固な細胞壁を持ち乾燥にも強い植物細胞のひとつである花粉を用いて質量イメージングの取得を試みた。花粉はレジンにより固定・含包し、ミクロームによる薄片化を行い、高速重イオンによる質量イメージング法を用いて観察を行った。細胞質に多く含まれる脂質による2次イオンを用いることにより、レジンに含包された花粉細胞1個のイメージングに成功した。植物細胞のように比較的丈夫な細胞であれば、レジン含包による固定化も有効である。

これまでは、脂質や蛋白質などの標準物質をスピンコートやキャスト法により作成し標準サンプルとして測定してきたが、実際の生命科学で用いられるサンプルには様々な生体高分子が存在しているため、純粋な分子からなる標準試料とは大きく異なる。NaやKなどのアルカリ金属は数%の濃度で存在し、それらが付加した2次イオンもSIMSスペクトルには多く見られる。しかし、通常の細胞や切片などの生体試料は、均一な分子分布を持っていないだけでなく、個体ごとの違いがあるため標準試料としては適切ではない。質量イメージング法を生命科学の分野で応用していくために必要なプロトコル開発には、蛋白質、脂質、糖質など生体内に存在する壊れやすく変質しやすい様々な生体高分子を含む標準サンプルが不可欠である。また、クラスターイオンの場合には、生体組織を損傷無くエッチングをすることが可能であるため、深さ方向にも均一な標準試料が求められる。

生体材料である培養細胞や組織切片を評価したときの課題を明らかにするために、培養細胞をホモジナイズし均一に塗布した標準サンプルを作成した。この標準試料は、ホルマリンなどによる蛋白質の固定化をしていないので、細胞中の酵素などが生理活性状態にあるため、ディープフリーザーでの保存が必須である。さらに、凍結時や解凍時の水分付着を低減するため窒素封入することも必要である。標準試料作成後の凍結・解凍プロトコルも確立しておく必要がある。様々な検討の結果、再現性良く標準試料を作成、保存、解凍、測定できるプロトコルを確立することができた。国内外の研究機関にこれらのサンプルを送付し、他の手法で測定することにより、様々な知見を得ることができた。その結果の一例を図14に示す。既存のSIMS法としては最も高感度で広く使われている Bi_3 イオンを1次イオンに用いたSIMS法と比較すると、高速重イオンを用いるMeV-SIMS法は高感度だということだけでなく、バックグラウンドが極めて低いという特徴を有していることが明

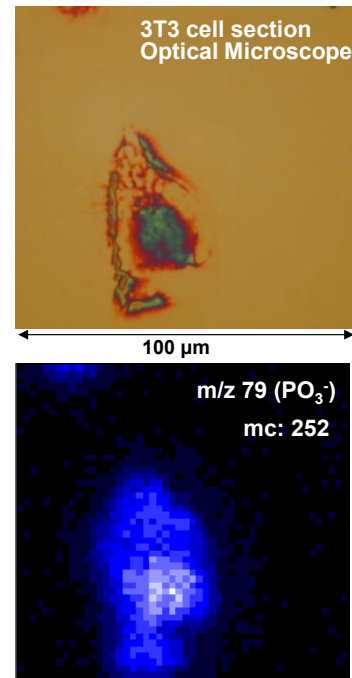


図13 フリーズフラクチャー法により作成した培養細胞にクラスターイオンを照射し表面汚染を除去した試料の光学顕微鏡像と質量イメージング像。表面汚染は除去されており、バックグラウンドは極めて低い。また、分子イメージ像は光学顕微鏡像と良く一致している。

らかになった。これは多様な生体高分子の複合物である生体試料から飛び出す種々の2次イオンフラグメントや準安定2次イオンなどが Bi_3 イオンの場合には多く発生するためである。このため、既存の Bi_3 イオンを用いる SIMS 法ではバックグラウンドが高くなり検出限界が高くなってしまふ。

このように実際の生体材料は複雑な生体高分子からなり、極めて複雑な2次イオンスペクトルとなるためそれらを分別するためには少なくとも 10,000 以上の質量分解能が必要である。このため通常の SIMS 装置で用いられている質量分析装置でも十分とは言えず、さらに高分解能の質量分析装置が必要である。1000Da 程度の質量数を持つ生体高分子を分析すると、この質量分解能でも 0.1Da の精度での測定となるため決して十分とは言えず、FT-ICR やオービトラップのような更に高い質量分析装置が将来必要となると予想される。

さらに、組織切片など生命科学で用いられる実際のサンプル評価を行い、本手法を生命科学に応用したときの課題抽出を行った。組織切片を観察するためには、組織の固定法や切片化の方法、更には、脱水方法などの開発が必要である。ラットから摘出した脳、脊髄、筋肉などの組織を凍結し、クライオミクロームで数十ミクロンの厚みに切片化した試料を用いた。数 cm の大きな組織を正確に切片化するためには、切削温度やサンプル固定方法など様々なパラメータの最適化が必要である。さらに、組織の固定に使われている固定剤からも多くの低分子2次イオンが放出され、妨害イオンとなることがわかった。組織切片作成プロトコルを確立し作成した組織切片の脂質分子の質量イメージングにより灰白質や白質の組成の違いなどが明瞭に確認された(図5)。

さらに、生体組織の場合には図14に示すように極めて多数のピークが2次イオンスペクトルに現れる。水素原子付加イオンだけでなくアルカリ付加イオンも多く検出されることも明らかになった。イオン化ポテンシャルの低い Na や K などのアルカリ金属原子が組織内に多く含まれることや、細胞内と細胞外とで Na, K の比が異なることなどがデーター解析を複雑

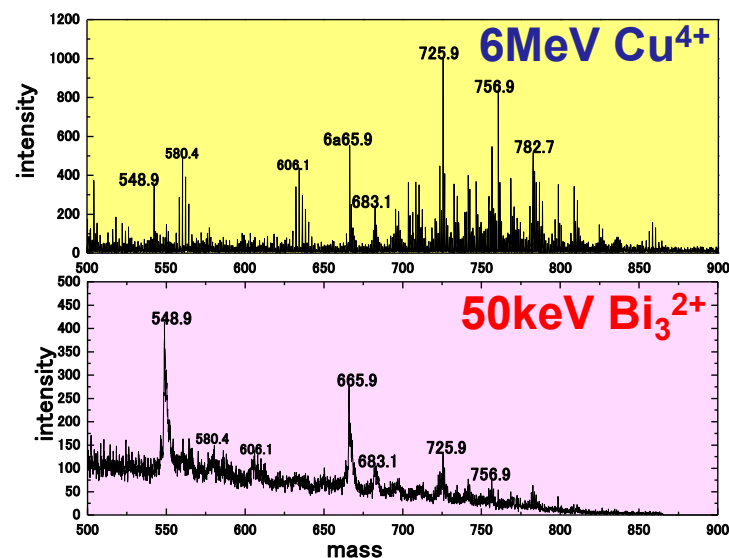


図 14 50keV の Bi_3 イオンと 6MeV の Cu イオンで測定した細胞標準サンプル(細胞ペースト)の2次イオンスペクトルの比較 Bi_3 で取得したスペクトルに比べて MeV-SIMS で測定したスペクトルは感度が高いだけでなくバックグラウンドが極めて低いことがわかる。このため MeV-SIMS 法では検出限界も低くなっており、実サンプルの分析に適していることを示すことができた。

にしている。このようなアルカリ付加イオンは質量スペクトルの解析を複雑にしている反面、質量分解能が高い場合には付加イオン情報をうまく使うことによりデーター解析精度の向上に有効に使うこともできる。正しく測定データーを解析するためには、脂質マススペクトルなどのデーターベースの構築なども必要となる。

また、1回の測定データでも位置情報と質量情報をあわせて保存しているので数 Gbyte の膨大なデータとなる。データハンドリングのためのプラットフォームを MATLAB 上に作成し、測定データを 3 次元データ(質量数を入ると 4 次元データ)として一括して扱うことができ、2次元イメージ像や深さ分布などを容易に可視化できるようにした。しかし、測定データは膨大であるため、どのような質量に注目するか？どのような分子が異なる分布をしているのか？などを人が見て判断するには限界があり、これを助けるため PCA (Principal Component Analysis: 主成分分析法)、MVA (MultiVariate Analytical technique: 多変量解析法) などデータ解析手法の検討も進めている。

(2)研究成果の今後期待される展開

MeV-SIMS が与えたインパクトとその世界的展開

有機分子の分析に広く使われている質量分析法を拡張する質量イメージング法は、空間分布を直接的に得ることのできる画期的な技術であるため、下表に示すようにこれまでも様々なアプローチが行われてきた。

	空間分解能	高分子の検出	感度	マトリックスの必要性	研究開発動向
本手法 (MeV-SIMS)	100nm 以下	可能 (1000Da 以上)	極めて高い	無し	実サンプルの分析 欧州で研究開始
SIMS	10nm	困難 (500Da 以下)	低い	無し	Bi ₃ や C ₆₀ の実用化 有機物分析が注目
MALDI	数 μ m	実用化	高い	有り	イメージングの研究 低質量分子へ

高速重イオンを用いる本手法(MeV-SIMS)は、空間分解能の点では Bi₃ などの液体金属イオン源を使ったSIMSには劣るが、レーザー光を使うMALDIに対しては、格段に有利である。しかも、通常のSIMSは、有機物や生体高分子を破壊してしまうため、生体高分子に対して高い感度を有していないという致命的な問題がある。また、バックグラウンドも高く検出限界も高い。このため、ビームそのものは細く集束できても良好な質量イメージング像を取得することはできない。本研究でも、Bi₃ や C₆₀ など高分子に対する感度が高いといわれている最新のイオンビームと2次イオン感度について直接比較検討を加え、質量数が1000Da 近くなると高速重イオンによる2次イオン収率が 1000 倍程度高いことを明らかにした。また、本手法はMALDIのようにマトリックスと混合する必要がない点も高分解能分子イメージングにとって極めて優位な点であり、今後の発展が期待できる。

無機材料分析を中心にこれまで発展してきた2次イオン質量分析法は、近年極めて活発に有機物や生体高分子への応用を目指した研究が行われている。例えば、2011年にイタリアで開催されたSIMSに関する国際会議(18th International conference on SIMS, 参加者400名以上)では発表の約1/2が有機・バイオへの応用を目指したものであり、SIMS を用いた様々なソフトマテリアル材料に対する研究開発が行われている。本研究は重イオンという「新しいイオンビーム」を用い、「ソフトマテリアルの質量分析」かつ「分子質量イメージング」を実現するという点で、極めて独創性の高い研究と評価され、2007年、2009年に開催されたSIMSに関する第 16 回、17 回国際会議と引き続き、異例の2回会議連続で招待講演に採択された。

本研究は、質量分析技術に限らず、高エネルギー加速器を用いた新しい材料分析技術として、世界的に大きなインパクトを与えた。すでに、高速重イオンマイクロビームラインを保有している複数の研究機関との共同研究がスタートしており、これらの研究機関でも成果が出始めている。特に英国サリー大学は2011年より大気圧中での MeV-SIMS 分析法の

開発プロジェクトに数百万ポンドの予算を獲得し、基本的には本プロジェクトと同様の質量分析法を採用する新しい装置の開発を進めている。高速重イオンの集束技術は英国を中心にして開発が行われており、共同研究を進めることで、研究開発の効率化やスピードアップに繋がると期待される。サリー大学以外にも、高速重イオンのマイクロビームラインを保有している研究機関は国内外で数十箇所にとっており、これらの研究機関に本分析手法が導入されれば、応用分野が飛躍的に拡大するものと期待している。実際、2012 年には SPIRIT (ヨーロッパにおけるイオンビービーム装置相互利用促進プログラム)、IAEA、JST の共催による、MeV-SIMS に関する Technical meeting が開催される等、全世界的な研究協力体制が構築されつつある。

ソフトマテリアル深さ分析手法の発展

本研究を通じて、有機材料、生体細胞に代表されるソフトマテリアル深さ方向の分析技術として、Ar ガスクラスターイオンビームが、従来の C_{60} を用いる有機分子の深さ分析技術の持つ多くの問題点を解決する画期的なビームとして広く認められるようになった。多様なガス分子から大きなサイズのクラスターイオンビームを発生させる技術は、京都大学の独創技術であり、本研究グループが世界をリードしていると自負している。ガスクラスタービームは、イオン種やクラスターサイズを自由に制御することができるため、エッチングや分析に最適なビームを発生させることができるという他にはない優れた特徴を有している。

有機半導体や機能性ポリマー、生体高分子などのソフトナノマテリアルは、ナノテクノロジーに飛躍をもたらすと期待されており、本プロジェクトで推進している革新的な評価技術はデバイス・プロセス開発に役立つだけでなく、製造プロセスをコントロールするツールとしても必須の技術となる。本プロジェクトで開発したクラスターSIMS 装置の完成度はかなり高く、世界で最も高性能の SIMS 装置といっても過言ではない。現時点においても、工業的に作られている材料の分析に関してはほぼ満足のいく結果が得られており、原理的な問題点はほぼ解決している。クラスターSIMS法による有機材料の深さ分析は汎用性の高い分析手法であり、様々な有機分子膜の分析を多くの大学や企業との共同研究を通して実施している。また、装置の市販もスタートしており、国内外の材料分析を専門とする企業、研究所等での導入が進んでおり、ソフトマテリアルに対する深さ分析法のデファクトスタンダードとして、今後さらなる普及・発展が予想される。今後本技術をより複雑な構造を持つ生体材料、複合材料に適用するには、空間分解能や質量分解能、感度の向上において、さらにブラッシュアップが求められる。なお、クラスター衝突によるソフトマテリアルエッチング手法は2次イオンを収集する SIMS に限らず、幅広い深さ分析技術に応用できる。クラスター銃をXPS、FT-IR等様々な表面、界面分析装置にボルトオンできるようなインターフェイスを開発、提供することにより、個々の研究・開発目的に応じた装置の開発が容易になることで、3次元ナノ計測の可能性が広がるものと期待される。

今後の展望と課題

SIMS と加速器という異なった分野を横断的にまたがる本技術は、国際的な競争と協業を同時に進めながら、日本発の新技术ということを強くアピールすることも必要である。このためには、本技術の基礎となる重イオンによる高分子の放出メカニズム、重イオンビーム制御、質量分析技術という関係する諸分野すべてにわたり、リーダーシップをとれるよう研究開発を進めていく必要がある。さらに、“Wet-SIMS”法のように、これまでの SIMS 法では不可能であった揮発性分子の分析という新しい分野も切り開くなど、SIMS 法に新しい応用展開、シーズの開拓を強力に進める必要がある。本研究での研究成果は、高速重イオンやクラスターイオンを複合的・有機的に組み合わせ、高い空間分解能を持つ分子イメージングや有機材料の深さ方向分析など、これまで不可能と考えられてきたソフトナノマテリアル評価技術の確立に向け着実に進歩しており、国際的に見てもレベルの高い独創技術との評価を国内外から得ている。

細胞レベルでの分子イメージングが達成できれば、細胞中の生体高分子の可視化と同

定という生命科学にとって極めて重要な情報を得ることが可能となり、分子生物学のみならず、病理診断、さらには、創薬研究といった分野に飛躍的な発展をもたらすと期待されている。しかし、感度や空間分解能が現状では十分とは言えず更なる研究開発が必要である。

ソフトマテリアルの分子質量イメージング法は多くの関心を集めており、2012年9月に京都で開催された国際質量分析学会では研究担当者がオーガナイズした質量イメージングのセッションは立ち見が出るほどの盛況であった。本手法はすでに、単なる質量分析技術としてではなく、生命科学分野等の研究者との意見交換を通じて、「どのように使うか?」というエンドユーザー視点の議論が必要な状況に達している。そのためには、測定システム安定性、サンプルプロトコル、データ解釈等、質量イメージングツール全体としての完成度を高めることが強く求められている。今後も各方面との緊密な連携のもと研究開発を進め、有機物や生体高分子などを基盤とするナノ製造技術における革新的な評価技術として本技術基盤の確立が待たれている。

§ 5 成果発表等

(1)原著論文発表 (国内(和文)誌 1件、国際(欧文)誌 54件)

1. S. Ninomiya, K. Ichiki, Y. Nakata, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
“The Effect of Incident Cluster Ion Size on Secondary Ion Yields Produced from Si”
Transactions of the MRS-J 32 [4] pp.895-898 (Dec. 2007)
2. Y. Nakata, Y. Honda, S. Ninomiya and J. Matsuo
“Ion-Induced Emission of Amino Acid Molecular Ions from Thin Films”
Transactions of the MRS-J 32 [4] pp.899-901 (Dec. 2007)
3. J. Matsuo, S. Ninomiya, T. Aoki and T. Seki
“Recent progress in cluster ion beam –Toward Nano-Processing and advanced material analysis”
Journal of Surface Analysis Vol.14, No.3, pp196-203 (March, 2008)
4. T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
“Investigation of Damage with Cluster Ion Beam Irradiation Using HR-RBS”
AIP Conf. Proc. Vol. 1066, pp. 423-426 (2008. Nov.) (17th IIT)
5. I. Yamada, J. Matsuo and N. Toyoda
“Summary of Industry-Academia Collaboration Projects on Cluster Ion Beam Process Technology”
AIP Conf. Proc. Vol. 1066, pp. 415 (2008. Nov.)(17th IIT)
6. J. Matsuo, S. Ninomiya, Y. Nakata, Y. Honda, K. Ichiki, T. Seki and T. Aoki
“What size of cluster is most appropriate for SIMS?”
Applied Surface Science 255 (2008, Dec.) 1235-1238
7. T. Aoki, T. Seki, S. Ninomiya and J. Matsuo,
“MD simulation study of the sputtering process by high-energy gas cluster impact”
Applied Surface Science 255 (2008, Dec.) 944-947

8. S. Ninomiya, K. Ichiki, Y. Nakata, Y. Honda, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
 “Secondary ion emission from Si bombarded with large Ar cluster ions under UHV conditions”
 Applied Surface Science 255 (2008, Dec.) 880-882
9. K. Ichiki, S. Ninomiya, Y. Nakata, Y. Honda, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
 “High sputtering yields of organic compounds by large gas cluster ions”
 Applied Surface Science 255 (2008, Dec.) 1148-1150
10. S. Ninomiya, Y. Nakata, Y. Honda, K. Ichiki, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo,
 “A Fragment-free ionization technique for organic mass spectrometry with large Ar cluster ions”
 Applied Surface Science 255 (2008, Dec.) 1588-1590
11. Y. Nakata, Y. Honda, S. Ninomiya, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo,
 “Yield Enhancement of Molecular Ion with MeV-Ion Induced Electronic Excitation”
 Applied Surface Science 255 (2008, Dec.) 1591-1594
12. T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo,
 “High-Speed Nano-Processing with Cluster Ion Beams”
 Transactions of the MRS-J 33 [4], pp. 1019-1022 (2008, Dec.)
13. S. Ninomiya, J. Matsuo, K. Ichiki, H. Yamada, Y. Nakata, Y. Honda, T. Seki and T. Aoki
 “Low Damage Etching and SIMS Depth Profiling with Large Ar Cluster Ions”
 Transactions of the MRS-J 33 [4], pp.1043-1046 (2008, Dec.)
14. Y. Honda, Y. Nakata, S. Ninomiya, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
 “SIMS Analysis of Biological Mixtures with Fast Heavy Ion Irradiation”
 Transactions of the MRS-J 33 [4], pp.1039-1041 (2008, Dec.)
15. 中田由彦, 山田英丙, 本田善郎, 二宮啓, 瀬木利夫, 青木学聡, 松尾二郎,
 “高速重イオンを利用したイメージング質量分析 Imaging Mass Spectrometry with Swift Heavy Ions”,
 Journal of the Mass Spectrometry Society of Japan, 56(4), 201-208 (2008).
16. S. Ninomiya, K. Ichiki, H. Yamada, Y. Nakata, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo,
 “Low Damage Etching of Polymer Materials for Depth Profile Analysis Using Large Ar Cluster Ion Beam”
 Journal of Surface Analysis Vol.15, No.3, pp275-278 (2009, Feb.)
17. Y. Nakata, Y. Honda, S. Ninomiya, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo,
 “Matrix-free high-resolution imaging mass spectrometry with high-energy ion projectiles”
 Journal of Mass Spectrometry 2009, Vol.44, pp128-136 (2009, Mar.)

18. S. Ninomiya, K. Ichiki, H. Yamada, Y. Nakata, T. Seki, T. Aoki, J. Matsuo,
 “Precise and fast SIMS depth profiling of polymer materials with large Ar
 cluster ion beams”
 Rapid Communications in Mass Spectrometry, 23, pp.1601-1606 (2009, April
 27)
19. T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo,
 “High-speed processing with Cl₂ cluster ion beam”
 Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 267, pp.1444-1446,
 (2009, May 1)
20. T. Aoki, T. Seki, S. Ninomiya, K. Ichiki and J. Matsuo
 “Study of crater formation and sputtering process with large gas cluster impact
 by molecular dynamics simulations”
 Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 267, pp.1424-1427,
 (2009, May 1)
21. H. Yamada, K. Ichiki, Y. Nakata, S. Ninomiya, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo,
 “A Processing Technique for Cell Surfaces Using Gas Cluster Ions for Imaging
 Mass Spectrometry”
 Journal of the Mass Spectrometry Society of Japan vol. 57, No. 3 pp.117-121,
 (2009, June)
22. Y. Nakata, H. Yamada, Y. Honda, S. Ninomiya, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
 “Imaging Mass Spectrometry with Nuclear Microprobes for Biological
 Applications”
 Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 267, pp. 2144-2148,
 (2009, June 15)
23. T. Seki
 “Nano-processing with gas cluster ion beams”
 Surface & Coatings Technology 203 Issues 17-18, pp. 2446-2451, (2009, June 15)
24. S. Ninomiya, K. Ichiki, T. Seki, T. Aoki, J. Matsuo,
 “The emission process of secondary ions from solids bombarded with large gas
 cluster ions”,
 Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 267, pp. 2601-2604,
 (2009, Aug. 15)
25. T. Aoki, T. Seki and J. Matsuo
 “Study of density effect of large gas cluster impact by molecular dynamics
 simulations”
 Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 267, pp. 2999-3001,
 (2009, Sep. 15)
26. S. Ninomiya, K. Ichiki, H. Yamada, Y. Nakata, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
 “Molecular depth profiling of multilayer structures of organic semiconductor

- materials by secondary ion massspectrometry with large argon cluster ion beams”
Rapid Communications in Mass Spectrometry, 23, pp. 3264-3268 (2009, September)
27. K. Ichiki, S. Ninomiya, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
“Sputtering Yield Measurements with Size-selected Gas Cluster Ion Beams”
MRS Symposium Proceedings (2009 MRS Spring Meetings) Vol. 1181-DD13-25, (2009)
 28. J. L. S. Lee, S. Ninomiya, J. Matsuo, I. S. Gilmore, M. P. Seah and A. G. Shard
“Organic Depth Profiling of a Nanostructured Delta Layer Reference Material Using Large Argon Cluster Ions”
Analytical Chemistry, Vol. 82, No. 1, pp. 98-105 (2010, Jan.)
 29. T. Aoki, T. Seki and J. Matsuo
“Molecular dynamics simulations for gas cluster ion beam processes”
Vacuum 84, (2010, Mar.) pp.994-998
 30. M. Hada, S. Ibuki, S. Ninomiya, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
“Evaluation of Damage Layer in an Organic Film with Irradiation of Energetic Ion Beams”
Japanese Journal of Applied Physics 49 (2010) pp. 036503_1-5(2010, Mar.)
 31. H. Yamada, K. Ichiki, Y. Nakata, S. Ninomiya, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
“MeV-Energy Probe SIMS Imaging of Major Components in Animal Cells Etched Using Large Gas Cluster Ions”
Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 268, pp. 1736-1740 (2010, June)
 32. S. Ninomiya, K. Ichiki, H. Yamada, Y. Nakata, T. Seki, T. Aoki, J. Matsuo,
“SIMS Depth Profiling of Organic Materials with Ar Cluster Ion Beam”,
Transactions of the Materials Research Society of Japan 35[4]pp. 785-778, (2010)
 33. H. Yamada, K. Ichiki, Y. Nakata, S. Ninomiya, T. Seki, T. Aoki, J. Matsuo,
“Processing Techniques of Biomaterials: Using Gas Cluster Ion Beam for Imaging Mass Spectrometry”,
Transactions of the Materials Research Society of Japan 35[4]pp. 793-796, (2010)
 34. J. Matsuo, S. Ninomiya, H. Yamada, K. Ichiki, Y. Wakamatsu, M. Hada, T. Seki and T. Aoki
”SIMS with highly excited primary beams for molecular depth profiling and imaging for organic and biological materials”
Surface and Interface Analysis (2010), (accepted April 12, 2010)
 35. S. Ninomiya, K. Ichiki, H. Yamada, Y. Nakata, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
“Analysis of organic semiconductor multilayers with Ar cluster secondary ion

- mass spectrometry”
Surface and Interface Analysis Vol. 43[1-2], pp.95-98 (2011, Jan.-Feb.) (DOI: 10.1002/sia.3587)
- 36.S. Ninomiya, K. Ichiki, H. Yamada, Y. Nakata, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
“The effect of incident energy on molecular depth profiling of polymers with large Ar cluster ion beams”
Surface and Interface Analysis Vol. 43[1-2], pp.221-224 (2011, Jan.-Feb.) (DOI: 10.1002/sia.3656)
- 37.H. Yamada, Y. Nakata, S. Ninomiya, T. Seki, T. Aoki, J. Tamura and J. Matsuo
“MeV-Energy Probe SIMS Imaging of Major Components in Washed and Fractured Animal Cells”
Surface and Interface Analysis Vol. 43[1-2] pp. 363-366 (2011, Jan.-Feb.) (DOI: 10.1002/sia.3408)
- 38.K. Ichiki, S. Ninomiya, Y. Nakata, H. Yamada, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
“Surface morphology of PMMA surfaces bombarded with size-selected gas cluster ion beams”
Surface and Interface Analysis Vol. 43[1-2] pp. 120-122 (2011, Jan.-Feb.) (DOI: 10.1002/sia.3444)
- 39.M. Hada, S. Ninomiya, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
“Using ellipsometry for the evaluation of surface damage and sputtering yield in organic films with irradiation of argon cluster ion beams”
Surface and Interface Analysis Vol. 43[1-2] pp. 84-87 (2011, Jan.-Feb.) (DOI: 10.1002/sia.3452)
- 40.B. N. Jones, J. Matsuo, Y. Nakata, H. Yamada, J. Watts, S. Hinder, V. Palitsin and R. Webb
“Comparison of MeV monomer ion and keV cluster ToF-SIMS”
Surface and Interface Analysis Vol. 43[1-2], pp.249-252 (2011, Jan.-Feb.) (DOI: 10.1002/sia.3520)
- 41.M. Hada, K. Ichiki and J. Matsuo
“Characterization of vapor-deposited L-leucine nanofilm”
Thin Solid Films 519, pp.1993-1997 (2011, Jan.) (doi:10.1016/j.tsf.2010.10.011)
- 42.G. Moriena, M. Hada, G. Sciaini, J. Matsuo and R.J.D. Miller
“Femtosecond electron diffraction: Preparation and characterization of (110)-oriented bismuth films”
J. Appl. Phys. 111, 043504 (2012, Feb. 16) (doi: 10.1063/1.3684975)
- 43.H. Gnaser, K. Ichiki and J. Matsuo
“Strongly reduced fragmentation and soft emission processes in sputtered ion formation from amino acid films under large Ar_n^+ ($n \leq 2200$) cluster ion bombardment”

Rapid Communications in Mass Spectrometry Vol. 26, Issue 1, pp.1-8 (2012, Jan. 15)

44. T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
“Etching of metallic materials with Cl₂ gas cluster ion beam”
Surface & Coatings Technology 206 Issues 5, pp. 789-791 (2011, Nov.)
(doi:10.1016/j.surfcoat.2011.04.054)
45. M. Hada, S. Ibuki, Y. Hontani, Y. Yamamoto, K. Ichiki, S. Ninomiya, T. Seki, T. Aoki, J. Matsuo
“Low Damage Milling of an Amino Acid thin film with Cluster Ion Beam”
J. Appl. Phys., 110, 094701 (2011,)
46. Y. Wakamatsu, H. Yamada, S. Ninomiya, B. N. Jones, T. Seki, T. Aoki, R. Webb and J. Matsuo
“Highly sensitive molecular detection with swift heavy ions”
Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 269, pp. 2251-2253, (2011, Oct.) (doi:10.1016/j.nimb.2011.02.069)
47. K. Ichiki, S. Ninomiya, T. Seki, , T. Aoki and J. Matsuo
“The effects of cluster size on sputtering and surface smoothing of PMMA with gas cluster ion beams”
Transactions of the MRS-J 36[3] pp. 309-312(2011, Sep.)
48. Y. Yamamoto, K. Ichiki, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
“Evaluation of damage depth on arginine films with molecular depth profiling by Ar cluster ion beam”
Transactions of the MRS-J 36[3] pp. 313-316(2011, Sep.)
49. T. Aoki, T. Seki and J. Matsuo
“Molecular dynamics study of crater formation by core-shell structured cluster impact”
Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, *In Press* (2011, Sep.)
50. M. Hada, K. Okimura and J. Matsuo
“Photo-induced lattice softening of excited-state VO₂”
Appl. Phys. Lett. 99, 051903 (2011, Aug.)(DOI: 10.1002/sia.3587)
51. T. Aoki, T. Seki and J. Matsuo
“Molecular dynamics simulations of large fluorine cluster impact on silicon with supersonic velocity”
Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 269, pp. 1582-1585, (2011, July)
(doi:10.1016/j.nimb.2010.12.013)
52. M. Hada, J. Matsuo
“Evaluation of lattice motion in CdTe single crystal using in-air tabletop

time-resolved X-ray diffractometer”

IOP Conf. Ser.: Mater. Sci. Eng. 24 012010 (2011)(doi: 10.1088/1757-899X/24/1/012010)

53.T. Aoki, T. Seki and J. Matsuo

“Molecular dynamics study of crater formation by core-shell structured cluster impact”

Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 282, pp.29-32 (2012, Jul.) (doi:10.1016/j.nimb.2011.08.061)

54.M. Hada and J. Matsuo

“Ultrafast X-ray sources for time-resolved measurements”

X-Ray Spectrom., 41, pp.188-194 (2012, Jun.) (doi: 10.1002/xrs.2401)

55.J. Matsuo, K. Ichiki, Y. Yamamoto, T. Seki and T. Aoki

“Depth profiling analysis of damaged arginine films with Ar cluster ion beams”

Surface and Interface Analysis Vol. 44 [6], pp.729-731 (2012, Jun.) (doi: 10.1002/sia.4856)

(2)その他の著作物(総説、書籍など)

1. 松尾二郎

“高密度励起ビームによる二次イオン質量分析法の有機・生体材料への新展開”
応用物理 第 79 巻 第 4 号 p.326-330(2010)

2. 松尾二郎, 瀬木利夫, 二宮啓, 青木学聡

“クラスターイオンビームによる平坦化加工技術”

砥粒加工学会誌 (Journal of the Japan Society for Abrasive Technology) Vol. 54 No. 5, pp.272-275(2010, May)

(3)国際学会発表及び主要な国内学会発表

① 招待講演 (国内会議 18 件、国際会議 37 件)

1. 松尾 二郎

“ガスクラスターイオンビーム技術の最新の進展”

日本表面科学会第 57 回表面科学研究会 (東京都 2008/2/15, 招待講演)

2. 松尾 二郎

“ジャイアントクラスターイオンビーム(GCI)が拓く新しい世界”

第 31 回表面分析研究会(埼玉 2008/3/6, 招待講演)

3. T. Aoki, T. Seki and J. Matsuo

“Computer modeling of cluster ion implantation process”

8th International Workshop on Junction Technology (Shanghai, China, 2008/5/16, Invited)

4. J. Matsuo

“Molecular imaging with swift heavy ions (MeV-SIMS)”

20th International Conference on the Application of Accelerators in Research

and Industry, (Fort Worth, Texas, USA, 2008/8/12, Invited)

5. J. Matsuo
“Secondary ion emission under large cluster ion irradiation”
20th International Conference on the Application of Accelerators in Research and Industry, (Fort Worth, Texas, USA, 2008/8/13, Invited)
6. J. Matsuo, H. Honda, K. Ichiki, M. Hada, Y. Nakata S. Ninomiya, T. Aoki and T. Seki
“Molecular Imaging of a Single Cell with Nuclear Microprobe”
Workshop of Ion - Insulator Interaction: WIII08 (長野, 2008/9/9, 依頼公演)
7. 松尾 二郎
“新材料の物性を制御するクラスターイオンビーム技術”
JST フォーラム (東京都, 2008/11/10, 招待公演)
8. 松尾 二郎
“量子ビームが作り出す非平衡現象の探索とその応用”
第 4 回励起ナノプロセス研究会 (和歌山, 2008/11/21, 招待公演)
9. 松尾 二郎、大川 克也
“ソフトナノマテリアル 3D 分子イメージング法の開発”
日本質量分析学会関東談話会 (横浜, 2008/12/17, 招待公演)
10. J. Matsuo
Nano Fabrication and Evaluation with Advanced Quantum Beam.
2009 MRS spring meeting (San Francisco, CA, 2009/4/17, Invited)
11. J. Matsuo, H. Yamada, K. Ichiki, M. Hada, S. Ninomiya, T. Seki and T. Aoki
Material processing and evaluation with cluster ion beam
10th International Symposium on Sputtering & Plasma Process (Kanazawa, Japan, 2009/7/8, Invited)
12. T. Aoki and J. Matsuo
Computer simulation of gas cluster ion impact
19th International Conference on Ion-Surface Interactions 2009 (Zvenigorod, Russia, 2009/8/21-25, Invited)
13. J. Matsuo
Molecular Imaging Technique with Swift Heavy Ions
19th Ion Beam Analysis (University of Cambridge, UK, 2009/9/7, Invited)
14. J. Matsuo
SIMS with large size cluster ions: Recent Advances and Challenges
17th International Conference on Secondary Ion Mass Spectrometry (Toronto, Canada, 2009/9/16, Invited)
15. J. Matsuo
Nanoprocessing with Cluster Beams-Challenges and Opportunities
31st International Symposium on Dry Process (Busan, Korea, 2009/9/24, Invited)

16. 松尾二郎
“二次イオンで観るソフトマテリアルの表面・界面”
第 29 回表面科学学術講演会 (タワーホール船堀、2009/10/27、依頼公演)
17. J. Matsuo
“SIMS with Highly Excited Primary Beams”
ALC’09 (Maui, Hawaii, USA, 2009/12/10, Keynote)
18. J. Matsuo and M. Hada
“In-air femtosecond X-ray source”
The Banff Meeting on Structural Dynamics (Banff, Canada, 2010/2/25, Invited)
19. 松尾二郎
“2 次イオン質量分析法の新展開 局所分析、イメージングを目指して”
第 58 回質量分析総合討論会 (エポカルつくば, 2010/6/18, 依頼公演)
20. J. Matsuo, H. Yamada, Y. Wakamatsu, S. Ninomiya, T. Seki, T. Aoki
“Molecular Imaging of Biological Samples with Swift Heavy Ion Microprobe”
12th International Conference on Nuclear Microprobe Technology and Applications (ICNMTA 2010) (Leipzig, German, 2010/07/27, Invited)
21. J. Matsuo
“What Size of Cluster Ion Is Most Appropriate for SIMS? ”
ASTM Workshop on Surface Analysis (New Mexico, USA, 2010/10/17, Invited)
22. J. Matsuo
“Novel primary ion beams for bio-SIMS”
5th International Symposium on Practical Surface Analysis (PSA-10),
(Gyeongju, Korea, 2010/10/5, Invited)
23. J. Matsuo
“Molecular Imaging Technique with swift heavy ions”
The 3rd Workshop on Interaction of Ions with Insulators (WIII2010), (Narita, Japan, 2010/9/4, Invited)
24. J. Matsuo
“Large Size Cluster Ion Beams:from Fundamental Aspects to Industrial Applications”
21th International Conference on the Application of Accelerators in Research and Industry, (Fort Worth, Texas, USA, 2008/8/11, Invited)
25. J. Matsuo
“Biological Material Analysis with Swift Heavy Ions:A Proposal of “Wet SIMS”
21th International Conference on the Application of Accelerators in Research and Industry, (Fort Worth, Texas, USA, 2008/8/11, Invited)
26. 松尾二郎
量子ビームで先導する先端プロセス・計測技術
第 29 回法政大学イオンビーム工学研究所シンポジウム (法政大学, 2010/12/8, 招待講演)

27. 松尾二郎、羽田真毅
 フェムト秒回折法で見る結晶構造のダイナミクス
 第 30 回表面科学学術講演会(大阪大学, 2010/11/6, 招待講演)
28. 松尾二郎, 津山尚宏
 “生体微小域分析とイメージング”
 第 58 回質量分析総合討論会 (エポカルつくば, 2010/6/18, 招待講演)
29. Jiro Matsuo
 “Structure dynamics study on epitaxial VO₂ film by using femto-second X-ray diffraction”
 The 29th International Brand Ritchie Workshop (BRW2011) on Particle Penetration Phenomena and Excitations of Solids (2011/5/13-15, Shimane, Invited)
30. J. Matsuo
 “Bio-imaging with SIMS”
 International Symposium on Surface Science (ISSS-6) (Funabori, Tokyo, 2011/12/13, Invited)
31. J. Matsuo
 “Novel molecular imaging and depth profiling technique -from single cells to organic thin films-” Workshop on Advanced Plasma Technology for Green Energy and Biochemical Applications (Chiang-Mai, Thailand, 2011/8/11, Invited)
32. J. Matsuo
 “Ar Cluster SIMS: What’s next?”
 23rd Annual Workshop on SIMS (Baltimore, USA, 2011/5/18, Invited)
33. J. Matsuo
 “Organic and Biological Material Analysis with Cluster Ion Beams”
 The International Symposium on SIMS and Related Techniques Based on Ion-Solid Interactions at Seikei University (SISS-13) (Nagakute, Aich, 2011/6/24, Invited)
34. J. Matsuo
 “Bio-imaging Technique with Novel Primary Ions”
 ALC’11(Seoul, Korea, 2011/5/23, Invited)
35. 松尾二郎
 超熱エネルギービームによる材料加工・評価技術
 第 8 回 Cat-CVD 研究会(金沢工業大学, 2011/6/18, 依頼講演)
36. 松尾二郎
 2 次イオン質量分析法(SIMS)による質量イメージング法の最前線
 第 38 回 BMS コンファレンス(箱根高原ホテル, 2011/7/12, 招待講演)
37. Jiro Matsuo, Takaaki Aoki, Toshio Seki
 “Cluster Ion Implantation for semiconductors -Prospects and Challenging-”
 International Workshop on Ion Beam Applications of Functional Materials (Jinan, 2012/8/19-22)

38. 松尾二郎
イオンビーム 基礎過程とその産業応用
第 29 回アルバックシンポジウム(2011/12/6, 招待講演)
39. J. Matsuo
“Residual Surface Damage on Soft Materials with Energetic Particle Bombardment”
The 8th EU-Japan Joint Symposium on Plasma Processing (JSPP2012) (Nara, 2012/1/17, Invited)
40. 松尾 二郎
高励起ビームの Bio-SIMS への応用
第 59 回応用物理学会シンポジウム(早稲田大学、2012/3/15、招待講演)
41. 松尾 二郎
Ar クラスターを用いた TOF-SIMS 深さ方向分析の現状と将来
日本表面科学会 第71回表面科学研究会 (東京理科大学、2012/2/2、招待講演)
42. J. Matsuo
“Femtosecond X-Ray Diffraction of VO₂(100): Structural Dynamics during Phase Transition”
2012 MRS Spring Meetings (USA, 2012/4/10, Invited)
43. Jiro Matsuo
“MeV SIMS Fundamentals”
Joint IAEA-SPIRIT-Japan Technical Meeting on Development and Utilization of MeV SIMS (Dubrovnik, Croatia 2012/5/21-25, invited)
44. Toshio Seki
“Development of MeV SIMS Instrumentation and application at Kyoto”
Joint IAEA-SPIRIT-Japan Technical Meeting on Development and Utilization of MeV SIMS (Dubrovnik, Croatia 2012/5/21-25, invited)
45. Takaaki Aoki
“Molecular dynamic simulation”
Joint IAEA-SPIRIT-Japan Technical Meeting on Development and Utilization of MeV SIMS (Dubrovnik, Croatia 2012/5/21-25, invited)
46. T. Aoki, T. Seki and J. Matsuo
“Large-scale MD Simulation of Huge Cluster Impact for Surface Process and Analysis”
The International Symposium on SIMS and Related Techniques Based on Ion-Solid Interactions at Seikei University (SISS-14) (Seikei Univ., Tokyo, 2012/6/1, Invited)
47. 松尾二郎
“二次イオン質量分析法の新展開”
2012 アルバック・ファイ株式会社技術講演会(2012/6/6, 招待講演)
48. T. Seki, S. Shitamoto, S. Nakagawa, T. Aoki and J. Matsuo
“Development of MeV-SIMS imaging system with Electrostatic Quadrupole

Lens”

22nd International Conference on the Application of Accelerators in Research & Industry (Fort Worth, USA, 2012/8/5-10, Invited)

49. J. Matsuo, S. Nakagawa, M. Py, T. Aoki and T. Seki
“Molecular Imaging with Focused Cluster Ion Beams”
22nd International Conference on the Application of Accelerators in Research & Industry (Fort Worth, USA, 2012/8/5-10, Invited)
 50. Jiro Matsuo
“Development of large cluster ion beams: from fundamental aspects to future applications”
8th European Workshop on Secondary Ion Mass Spectrometry (University of Munster 2012/9, invited)
 51. Takaaki Aoki
“Radiation Effects and Applications of Slow Heavy Particles”
Swift Heavy Ions in Materials Engineering and Character (2012/10, invited)
 52. 松尾二郎
“日本から発信する新しい表面分析技術”
第 13 回真空シンポジウム (東京ビッグサイト 2012/10/18, 招待講演)
 53. Jiro Matsuo
“Secondary ion emission with energetic cluster beam”
25th International Conference on Atomic Collisions in Solids (2012/10/23, invited)
 54. 松尾二郎
“高速重イオンを用いたバイオイメーシング技術”
第7回量子ビームによるナノバイオ物理応用技術調査専門委員会(2012/10/27 招待講演)
 55. Jiro Matsuo
“Sputtering with large cluster ion beams”
Symposium on Surface and Nano Science 2013 (Zao, Japan, 2012/1/16, Invited)
- ② 口頭発表 (国内会議 70 件、国際会議 76 件)
1. 二宮 啓、市木 和弥、中田 由彦、瀬木 利夫、青木 学聡、松尾 二郎
“巨大 Ar クラスター衝突により Si から生成される二次イオンにおける入射速度効果”
日本物理学会第 63 回年次大会 (近畿大学 2008/3/23)
 2. 中田由彦、本田善郎、二宮啓、瀬木利夫、青木学聡、松尾二郎
“高分解能イメージング質量分析へ向けたイオン入射条件の探索”
日本物理学会第 63 回年次大会 (近畿大学 2008/3/24)
 3. 青木 学聡、瀬木 利夫、松尾 二郎
“ホウ素クラスターイオン注入による損傷形成過程のシミュレーション”
2008 年春季第 55 回応用物理学関係連合講演会 (日本大学 船橋キャンパス)

2008/3/29)

4. 瀬木 利夫、青木 学聡、松尾 二郎
“塩素ガスクラスターイオンビームによる金属材料エッチング特性”
2008 年春季第 55 回応用物理学関係連合講演会（日本大学 船橋キャンパス
2008/3/29)
5. 二宮 啓、市木 和弥、瀬木 利夫、青木 学聡、松尾 二郎
“超高真空下における巨大クラスターイオン照射による二次イオン測定”
2008 年春季第 55 回応用物理学関係連合講演会（日本大学 船橋キャンパス
2008/3/29)
6. 中田 由彦、山田 英丙、本田 善郎、二宮 啓、瀬木 利夫、青木 学聡、松尾 二郎
“高速重イオンをプローブとしたイメージング質量分析技術の開発”
2008 年春季第 55 回応用物理学関係連合講演会（日本大学 船橋キャンパス
2008/3/30)
7. 市木 和弥、二宮 啓、瀬木 利夫、青木 学聡、松尾 二郎
“クラスターイオン衝突による二次イオン形成”
2008 年春季第 55 回応用物理学関係連合講演会（日本大学 船橋キャンパス
2008/3/29)
8. 本田 善郎、中田 由彦、二宮 啓、瀬木 利夫、青木 学聡、松尾 二郎
“高速重イオン照射を用いた二次イオン質量分析法による生体高分子混合試料の定量
分析”
2008 年春季第 55 回応用物理学関係連合講演会（日本大学 船橋キャンパス
2008/3/30)
9. P. Matthieu, H. Yamada, Y. Honda, K. Ichiki, Y. Nakata, S. Ninomiya, T. Seki,
T. Aoki, J. Matsuo
“SIMS Analysis of PMMA Films with Large Ar Cluster Ions”
2008 年春季第 55 回応用物理学関係連合講演会（日本大学 船橋キャンパス
2008/3/29)
10. 山田 英丙、本田 善郎、市木 和弥、中田 由彦、二宮 啓、瀬木 利夫、青木 学聡、
松尾 二郎
“クラスターイオンを用いた生体高分子試料の ToF-SIMS 分析”
2008 年春季第 55 回応用物理学関係連合講演会（日本大学 船橋キャンパス
2008/3/29)
11. J. Matsuo
“Mass Imaging with Swift Heavy Ions (MeV-SIMS)”
21st Annual Workshop on SIMS (Texas, USA, 2008/5/15, Oral)
12. S. Ninomiya, K. Ichiki, P. Matthieu, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
“High-rate and low-damage etching of organic materials with large gas cluster
ions”
21st Annual Workshop on SIMS (Texas, USA, 2008/5/15, Oral)
13. J. Matsuo,
“Cluster Size Effects in Cluster Ion Beam Process”

- 17th International Conference on Ion Implantation Technology (California, USA, 2008/6/11, Oral)
14. Y. Nakata, H. Yamada, Y. Honda, S. Ninomiya, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
“Imaging Mass Spectrometry with Nuclear Microprobes for Biologic Applications”
11th International Conference on Nuclear Microprobe Technology and Applications (Debrecen, Hungary, 2008/7/22, Oral)
15. S. Ninomiya, K. Ichiki, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
“The emission process of secondary ions from solids with large gas cluster ions”
23rd International Conference on Atomic Collisions in Solids, (South Africa, 2008/8/17-22, Oral)
16. 二宮 啓, 市木 和弥, 山田 英丙, 中田 由彦, 瀬木 利夫, 青木 学聡, 松尾 二郎
“Ar クラスターSIMS による有機 EL 薄膜の深さ方向分析”
2008 年秋季 第 69 回応用物理学会(中部大学, 2008/9/2)
17. 市木 和弥, 二宮 啓, 瀬木 利夫, 青木 学聡, 松尾 二郎
“大電流密度ガスクラスターイオンビームのサイズ選別照射”
2008 年秋季 第 69 回応用物理学会(中部大学, 2008/9/2)
18. 二宮 啓, 市木 和弥, 山田 英丙, 中田 由彦, 瀬木 利夫, 青木 学聡, 松尾 二郎
“巨大クラスターイオンを用いたポリマー材料の二次イオン測定”
2008 年秋季 第 69 回応用物理学会(中部大学, 2008/9/3)
19. 中田 由彦, 山田 英丙, 本田 善郎, 瀬木 利夫, 青木 学聡, 松尾 二郎
“高速重イオンをプローブとした細胞イメージング質量分析 I”
2008 年秋季 第 69 回応用物理学会(中部大学, 2008/9/3)
20. 中田 由彦, 山田 英丙, 本田 善郎, 瀬木 利夫, 青木 学聡, 松尾 二郎
“高速重イオンをプローブとした細胞イメージング質量分析 II”
2008 年秋季 第 69 回応用物理学会(中部大学, 2008/9/3)
21. 山田 英丙, 本田 善郎, 瀬木 利夫, 青木 学聡, 松尾 二郎
“質量イメージングのためのクラスターイオンによる細胞表面加工技術”
2008 年秋季 第 69 回応用物理学会(中部大学, 2008/9/3)
22. T. Aoki, T. Seki, J. Matsuo
“Study of density effect of large gas cluster impact”
9th International Conference on Computer Simulation of Radiation Effects in Solids, (Beijing, China, 2008/10/13, Oral)
23. J. Matsuo, S. Ninomiya, H. Yamada, K. Ichiki, Y. Nakata, T. Aoki and T. Seki
“Molecular Depth Profiling for Soft Materials by using Size-Selected Large Cluster Ions”
AVS 55th International Symposium, (Boston, USA, 2008/10/22, Oral)
24. J. Matsuo, S. Ninomiya, H. Yamada, K. Ichiki, Y. Nakata, T. Seki and T. Aoki
Ion beam processing and characterization for organic and biological materials

- The IUMRS International Conference in Asia (Nagoya Congress Center, Japan, 2008/12/10, Oral)
25. S. Ninomiya, K. Ichiki, H. Yamada, Y. Nakata, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
SIMS Depth Profiling of Organic Materials with Ar Cluster Ion Beam
The IUMRS International Conference in Asia (Nagoya Congress Center, Japan, 2008/12/10, Oral)
 26. H. Yamada, K. Ichiki, Y. Nakata, S. Ninomiya, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
A Processing Technique of Cell Surface Using Cluster Ion Beam for Imaging Mass Spectrometry
The IUMRS International Conference in Asia (Nagoya Congress Center, Japan, 2008/12/10, Oral)
 27. T. Aoki, T. Seki and J. Matsuo
Computer Simulations of Glancing-Angle Large Gas Cluster Impact
The IUMRS International Conference in Asia (Nagoya Congress Center, Japan, 2008/12/10, Oral)
 28. T. Aoki, T. Seki and J. Matsuo
Study of density effect of large gas cluster impact by molecular dynamics simulations
9th Workshop on Cluster Ion Beam Technology (Tokyo, Japan, 2009/3/12, Oral)
 29. T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
High-speed processing with Cl₂ cluster ion beam
9th Workshop on Cluster Ion Beam Technology (Tokyo, Japan, 2009/3/12, Oral)
 30. S. Ninomiya, K. Ichiki, Y. Nakata, H. Yamada, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
SIMS depth profiling of organic films with Ar cluster ion beams
9th Workshop on Cluster Ion Beam Technology (Tokyo, Japan, 2009/3/12, Oral)
 31. 瀬木利夫、青木学聡、松尾二郎
“塩素ガスクラスターイオンビームによるスパッタ率のクラスターサイズ依存性”
第 56 回応用物理学会 (筑波大学, 2009/3/30)
 32. 青木学聡、瀬木利夫、松尾二郎、高木郁二
“巨大原子座標系に対する原子衝突シミュレーション”
第 56 回応用物理学会 (筑波大学, 2009/3/30)
 33. 二宮 啓、市木和弥、山田英丙、中田由彦、瀬木利夫、青木学聡、松尾二郎
“Ar クラスターイオンによるポリマー試料の SIMS 深さ方向分析”
第 56 回応用物理学会 (筑波大学, 2009/3/30)
 34. 山田英丙、中田由彦、二宮 啓、瀬木利夫、青木学聡、松尾二郎
“高速重イオンをプローブとする細胞レベル質量イメージング手法の開発”
第 56 回応用物理学会 (筑波大学, 2009/3/31)
 35. 市木和弥、二宮 啓、瀬木利夫、青木学聡、松尾二郎

- “大電流密度ガスクラスターイオンビームのサイズ選別照射 II”
第 56 回応用物理学会 (筑波大学, 2009/4/1)
36. 二宮 啓, 市木和弥, 山田英丙, 中田由彦, 瀬木利夫, 青木学聡, 松尾二郎
“巨大クラスターイオンビームによるポリマー材料の高分解能深さ方向分析”
第 57 回質量分析総合討論会 (大阪国際交流センター, 2009/5/14, 口頭)
37. 山田英丙, 中田由彦, 二宮 啓, 瀬木利夫, 青木学聡, 松尾二郎
“高速重イオンをプローブとする細胞レベル質量イメージング手法の開発”
第 57 回質量分析総合討論会 (大阪国際交流センター, 2009/5/14, 口頭)
38. S. Ninomiya,
TOF-SIMS and depth profile analysis of organic films with Ar cluster ion beams
The International Symposium on SIMS and Related Techniques Based on Ion-Solid Interactions (Seikei University, 2009/6/11, Oral)
39. J. Matsuo, K. Ichiki, M. Hada, S. Ninomiya, T. Seki, T. Aoki, T. Nagayama and M. Tanjo
Stress Measurement of Carbon Cluster implanted layers with in-plane Diffraction Technique
9th International Workshop on Junction Technology (Kyoto University, 2009/6/12, Oral)
40. T. Aoki and J. Matsuo
Study of Damage Accumulation and Annealing Process at Low Energy Boron Implantation Using Molecular Dynamics Simulations
9th International Workshop on Junction Technology (Kyoto University, 2009/6/12, Oral)
41. 瀬木利夫, 青木学聡, 松尾二郎
“Al-Cl₂ 混合ガスクラスターイオンビームによる加工特性”
第 70 回応用物理学会学術講演会 (富山大学, 9/8, 口頭)
42. 市木和弥, 二宮啓, 瀬木利夫, 青木学聡, 松尾二郎
“大電流密度ガスクラスターイオンビームのサイズ選別照射 III”
第 70 回応用物理学会学術講演会 (富山大学, 9/8, 口頭)
43. 市木和弥, 二宮啓, 中田由彦, 山田英丙, 瀬木利夫, 青木学聡, 松尾二郎
“大電流密度ガスクラスターイオンビームのサイズ選別照射 IV”
第 70 回応用物理学会学術講演会 (富山大学, 9/8, 口頭)
44. 山本恭千, 市木和弥, 二宮啓, 瀬木利夫, 青木学聡, 松尾二郎
“有機試料表面の Ar クラスターイオンビームによる照射損傷評価”
第 70 回応用物理学会学術講演会 (富山大学, 9/8, 口頭)
45. 二宮啓, 市木和弥, 山本恭千, 山田英丙, 瀬木利夫, 青木学聡, 松尾二郎
“Ar クラスターイオンによる有機半導体多層膜試料の SIMS 深さ方向分析”
第 70 回応用物理学会学術講演会 (富山大学, 9/10, 口頭)

46. K. Ichiki, S. Ninomiya, Y. Nakata, H. Yamada, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
Sputtering and morphology of solid surfaces bombarded with size-selected gas cluster ion beams
16th International Conference on Surface Modification of Materials by Ion Beams (SMMIB2009) (AIST Tokyo Waterfront, Japan, 2009/9/16, Oral)
47. S. Ninomiya, K. Ichiki, H. Yamada, Y. Nakata, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
Damage evaluation of organic samples under large Ar cluster ion bombardment
17th International Conference on Secondary Ion Mass Spectrometry (Toronto, Canada, 2009/9/14, Oral)
48. S. Ninomiya, K. Ichiki, H. Yamada, Y. Nakata, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
Analysis of organic semiconductor multilayers with Ar cluster SIMS
17th International Conference on Secondary Ion Mass Spectrometry (Toronto, Canada, 2009/9/15, Oral)
49. J. L. Lee, S. Ninomiya, J. Matsuo, I. S. Gilmore, A. G. Shard, M. P. Seah
Organic depth profiling of a nanostructured delta layer reference material using large argon cluster ions –A preliminary study
17th International Conference on Secondary Ion Mass Spectrometry (Toronto, Canada, 2009/9/15, Oral)
50. S. Ninomiya, K. Ichiki, H. Yamada, Y. Nakata, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
Molecular depth profiling of polymers with large Ar cluster ion beams
17th International Conference on Secondary Ion Mass Spectrometry (Toronto, Canada, 2009/9/18, Oral)
51. BN. Jones, J. Matsuo, Y. Nakata, H. Yamada, JF. Watts, S. Hinder, RP. Webb
Comparison of MeV monomer ion and Cluster SIMS
17th International Conference on Secondary Ion Mass Spectrometry (Toronto, Canada, 2009/9/16, Oral)
52. 若松慶信、山田英丙、中田由彦、二宮啓、瀬木利夫、青木学聡、松尾二郎
“高速重イオンを用いた低真空 SIMS の開発”
第 29 回表面科学学術講演会 (タワーホール船堀、2009/10/27、口頭)
53. J. Matsuo, S. Ninomiya, K. Ichiki, H. Yamada, M. Hada, T. Aoki and T. Seki
“Surface Damage Evaluation of Organic Materials Irradiated with Ar Cluster Ions”
AVS 56th International Symposium (California, USA, 2009/11/12, Oral)
54. S. Ninomiya, K. Ichiki, H. Yamada, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
“Secondary ion mass spectrometry depth profiling of organic films with large Ar cluster ion beams”
5th International Workshop on High-Resolution Depth Profiling (Kyoto, Japan, 2009/11/18, Oral)
55. T. Aoki and J. Matsuo
“Molecular Dynamics Simulation of Cluster Impact with Composite Species”
19th MRS-J Symposium (国際セッション) (Yokohama, Japan, 2009/12/9, Oral)

56. S. Ninomiya, K. Ichiki, H. Yamada, Y. Nakata, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
“Molecular depth profiling of biological materials with large Ar cluster ion beams”
19th MRS-J Symposium (国際セッション) (Yokohama, Japan, 2009/12/9, Oral)
57. T. Seki and J. Matsuo
“Investigation of Irradiation Damage with Large Gas Cluster Ion Beam using by HR-RBS”
ALC’09 (Maui, Hawaii, USA, 2009/12/10, Oral)
58. 山田英丙、若松慶信、中田由彦、二宮啓、瀬木利夫、青木学聡、松尾二郎、石原昭彦
“高速重イオンをプローブとする生体組織の細胞レベル質量イメージング”
第 57 回応用物理学会 (東海大学, 2010/3/17、口頭)
59. 二宮啓、Joanna Lee、瀬木利夫、青木学聡、松尾二郎、Ian Gilmore、Martin Seah、Alexander Shard
“標準有機多層膜試料の Ar クラスターSIMS による深さ方向分析”
第 57 回応用物理学会 (東海大学, 2010/3/19、口頭)
60. 若松慶信、山田英丙、二宮啓、瀬木利夫、青木学聡、田村淳、松尾二郎
“高速重イオンビームをプローブとする低真空 SIMS の開発”
第 57 回応用物理学会 (東海大学, 2010/3/19、口頭)
61. 二宮啓、市木和弥、山田英丙、瀬木利夫、青木学聡、松尾二郎
“Ar クラスターイオン衝撃で生成される二次イオンの脱出深さの評価”
第 57 回応用物理学会 (東海大学, 2010/3/20、口頭)
62. 市木和弥、二宮啓、瀬木利夫、青木学聡、松尾二郎
“大電流密度ガスクラスターイオンビームのサイズ選別照射 V”
第 57 回応用物理学会 (東海大学, 2010/3/20、口頭)
63. 山野邊貴文、山本恭千、市木和弥、二宮啓、瀬木利夫、青木学聡、松尾二郎
“高輝度 Ar クラスターイオンビーム装置の開発”
第 57 回応用物理学会 (東海大学, 2010/3/20、口頭)
64. 山本恭千、市木和弥、二宮啓、瀬木利夫、青木学聡、松尾二郎
“Ar クラスター照射したポリマー試料の表面損傷評価”
第 57 回応用物理学会 (東海大学, 2010/3/20、口頭)
65. T. Aoki, T. Seki and J. Matsuo
“MD simulation of small boron cluster implantation”
10th International Workshop on Junction Technology (Fudan University, China, 2010/5/10-11)
66. S. Ninomiya, K. Ichiki, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
“Depth profile characteristics of organic materials with large Ar cluster ion beams”
22nd Annual Workshop on SIMS (Norfolk, USA, 2010/5/19, Oral)
67. J. Matsuo, K. Ichiki, S. Ninomiya, T. Seki and T. Aoki
“Measurement of Cluster Size Dependence of Sputtering Yield Using

- Size-Selected Ar Cluster Ion Beams”
22nd Annual Workshop on SIMS (Norfolk, USA, 2010/5/20, Oral)
68. J. Matsuo, Y. Wakamatsu, H. Yamada, S. Ninomiya, T. Seki and T. Aoki
“Wet SIMS with Swift Heavy Ions for Biological Material Analysis”
22nd Annual Workshop on SIMS (Norfolk, USA, 2010/5/21, Oral)
69. S. Ninomiya, K. Ichiki, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
“Secondary ion mass spectrometry depth profiling of organic materials with large gas cluster ion beams”
18th International Conference on Ion Implantation Technology (Kyoto University, Japan, 2010/6/9, Oral)
70. T. Aoki,
“Damage and sputtering with cluster impact by MD simulations”
The International Symposium on SIMS and Related Techniques Based on Ion-Solid Interactions at Seikei University (SISS-12) (Seikei Univ. Japan, 2010/6/11, Oral)
71. S. Ninomiya, K. Ichiki, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
“Characteristics of organic depth profiling using large cluster ion beams”
10th Workshop on Cluster Ion Beam Technology (Kyoto, Japan, 2010/6/14, Oral)
72. T. Aoki, T. Seki and J. Matsuo
“MD simulation of small boron cluster implantation”
10th Workshop on Cluster Ion Beam Technology (Kyoto, Japan, 2010/6/14, Oral)
73. K. Ichiki, S. Ninomiya, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
“The effects of incident cluster size and energy on Si sputtering yield”
10th Workshop on Cluster Ion Beam Technology (Kyoto, Japan, 2010/6/14, Oral)
74. T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
“Etching Characteristics with Ar-Cl₂ Gas Mixed Cluster Ion Beam”
10th Workshop on Cluster Ion Beam Technology (Kyoto, Japan, 2010/6/14, Oral)
75. 松尾二郎, 津山尚宏
“生体微小域分析とイメージング”
第 58 回質量分析総合討論会 (エポカルつくば, 2010/6/18, 口頭)
76. T. Aoki, T. Seki and J. Matsuo
“MD Simulation of Huge Reactive Gas Cluster Impact with Supersonic Velocity”
10th International Conference on Computer Simulations of Radiation Effects in Solids (Krakow, Poland, 2010/7/18, Oral)
77. 羽田真毅, 沖村邦雄, 松尾二郎
時間分解 X 線回折法を用いた VO₂ 薄膜の構造ダイナミクスの評価
第 71 回応用物理学会学術講演会 (長崎大学, 2010/9/16, 口頭)

78. 羽田真毅, German Sciaini, Karantza Angelo, Moriena Gustavo, R. J. Dwayne Miller, 松尾二郎
フェムト秒電子線回折法を用いた高配向性 Bi 薄膜の音響コヒーレントフォノンの観測
第 71 回応用物理学会学術講演会(長崎大学, 2010/9/16、口頭)
79. 市木和弥, 二宮 啓, 瀬木利夫, 青木学総, 松尾二郎
大電流密度ガスクラスターイオンビームのサイズ選別照射 VI
第 71 回応用物理学会学術講演会(長崎大学, 2010/9/16、口頭)
80. 山本恭千, 市木和弥, 二宮 啓, 瀬木利夫, 青木学聡, 松尾二郎
Ar クラスターSIMS による質量イメージング装置の開発
第 71 回応用物理学会学術講演会(長崎大学, 2010/9/16、口頭)
81. 山野邊貴文, 山本恭千, 市木和弥, 二宮 啓, 瀬木利夫, 青木学聡, 松尾二郎
高輝度 Ar クラスターイオンビーム装置の開発 II
第 71 回応用物理学会学術講演会(長崎大学, 2010/9/16、口頭)
82. 瀬木利夫, 青木学聡, 松尾二郎
複合クラスター生成技術の開発
第 71 回応用物理学会学術講演会(長崎大学, 2010/9/16、口頭)
83. 若松慶信, 山田英丙, 二宮 啓, 瀬木利夫, 青木学聡, 石原昭彦, 松尾二郎
高速重イオンプローブによる生体内脂質イメージング
第 71 回応用物理学会学術講演会(長崎大学, 2010/9/14、口頭)
84. 羽田真毅, 松尾二郎
“時間分解 X 線回折法を用いた VO₂ 薄膜の構造ダイナミクスの評価”
埋もれた界面の X 線・中性子解析に関するワークショップ 2010 (名古屋大学, 2010/7/26, 口頭)
85. 松尾二郎、市木和弥、山本恭千、若松慶信、青木学聡、瀬木利夫
二次イオン質量分析法を用いた生体組織の観察
第 30 回表面科学学術講演会(大阪大学, 2010/11/6, 口頭)
86. 青木学聡
原子衝突による材料科学のための大規模シミュレーション基盤
学際大規模情報基盤共同利用・共同研究拠点 第 2 回シンポジウム((独)理化学研究所 計算科学研究機構, 2011/1/13 口頭)
87. J. Matsuo, Y. Wakamatsu, T. Seki and T. Aoki
“Molecular Imaging of Cells and Tissues by Wet-SIMS" Using Swift Heavy Ion Beams”
20th MRS-J Symposium (International Session) (Yokohama, Japan, 2010/12/21, Oral)
88. J. Matsuo, H. Yamada, Y. Wakamatsu, T. Aoki and T. Seki
“A Novel Molecular Imaging Technique for Biological Material Analysis”
AVS 57th International Symposium (New Mexico, USA, 2010/10/20, Oral)

89. J. Matsuo
 “Characterization of cells and tissues by "wet-SIMS" using swift heavy ion beams”
 10th European Conference on Accelerators in Applied Research and Technology (ECAART2010), (Athenes, Greece, 2010/9/15, Oral)
90. G. Sciaini, M. Hada, J. Matsuo, A. Karantza, G. Moriena and R. J. D. Miller
 “Coherent Acoustic Phonons in Highly Oriented Bismuth Films Monitored by Femtosecond Electron Diffraction”
 Ultrafast Phenomena 17 (USA, 2010/7/23, Oral)
91. T. Aoki, T. Seki and J. Matsuo
 “MD Simulation of Huge Reactive Gas Cluster Impact with Supersonic Velocity”
 10th International Conference on Computer Simulations of Radiation Effects in Solids (Krakow, Poland, 2010/7/18, Oral)
92. S. Ninomiya, K. Ichiki, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
 “Characteristics of organic depth profiling using large cluster ion beams”
 10th Workshop on Cluster Ion Beam Technology (Kyoto, Japan, 2010/6/14, Oral)
93. T. Aoki, T. Seki and J. Matsuo
 “MD simulation of small boron cluster implantation”
 10th Workshop on Cluster Ion Beam Technology (Kyoto, Japan, 2010/6/14, Oral)
94. K. Ichiki, S. Ninomiya, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
 “The effects of incident cluster size and energy on Si sputtering yield”
 10th Workshop on Cluster Ion Beam Technology (Kyoto, Japan, 2010/6/14, Oral)
95. T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
 “Etching Characteristics with Ar-Cl₂ Gas Mixed Cluster Ion Beam”
 10th Workshop on Cluster Ion Beam Technology (Kyoto, Japan, 2010/6/14, Oral)
96. T. Aoki, T. Seki and J. Matsuo
 “Damage and sputtering with cluster impact by MD simulations”
 The International Symposium on SIMS and Related Techniques Based on Ion-Solid Interactions at Seikei University (SISS-12) (Seikei Univ. Japan, 2010/6/11, Oral)
97. S. Ninomiya, K. Ichiki, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo,
 “Availability of gas cluster SIMS to biomolecular analysis”
 The International Symposium on SIMS and Related Techniques Based on Ion-Solid Interactions at Seikei University (SISS-12) (Seikei Univ. Japan, 2010/6/11, Oral)
98. S. Ninomiya, K. Ichiki, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
 “Secondary ion mass spectrometry depth profiling of organic materials with large gas cluster ion beams”
 18th International Conference on Ion Implantation Technology (Kyoto

University, Japan, 2010/6/9, Oral)

99. J. Matsuo, Y. Wakamatsu, H. Yamada, S. Ninomiya, T. Seki and T. Aoki
“Wet SIMS with Swift Heavy Ions for Biological Material Analysis”
22nd Annual Workshop on SIMS (Norfolk, USA, 2010/5/21, Oral)
100. J. Matsuo, K. Ichiki, S. Ninomiya, T. Seki and T. Aoki
“Measurement of Cluster Size Dependence of Sputtering Yield Using
Size-Selected Ar Cluster Ion Beams”
22nd Annual Workshop on SIMS (Norfolk, USA, 2010/5/20, Oral)
101. S. Ninomiya, K. Ichiki, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
“Depth profile characteristics of organic materials with large Ar cluster ion
beams”
22nd Annual Workshop on SIMS (Norfolk, USA, 2010/5/19, Oral)
102. 本谷友作、羽田真毅、瀬木利夫、青木学聡、松尾二郎
ジアリールエテンのフォトクロミック反応の超高速実時間観察
第 59 回応用物理学会（早稲田大学、2012/3/17、口頭）
103. 志戸本祥、瀬木利夫、青木学聡、松尾二郎
高速重イオンプローブ集束用静電型四重極レンズの開発 II
第 59 回応用物理学会（早稲田大学、2012/3/17、口頭）
104. 中川駿一郎、市木和弥、瀬木利夫、青木学聡、松尾二郎
Ar-CH₃OH 混合クラスタイオンビーム照射による Si 二次イオン放出
第 59 回応用物理学会（早稲田大学、2012/3/17、口頭）
105. 山本恭千、市木和弥、瀬木利夫、青木学聡、松尾二郎
Ar クラスターSIMS を用いた投影型質量イメージング
第 59 回応用物理学会（早稲田大学、2012/3/17、口頭）
106. 市木和弥、瀬木利夫、青木学聡、田村 淳、松尾二郎
Ar クラスターイオンを用いた直行加速飛行時間型 SIMS 分析
第 59 回応用物理学会（早稲田大学、2012/3/17、口頭）
107. 青木学聡、瀬木利夫、松尾二郎
巨大反応性クラスター衝突の大規模分子動力学シミュレーション
第 59 回応用物理学会（早稲田大学、2012/3/16、口頭）
108. 松尾 二郎
2 次イオン質量分析法(SIMS 法)によるバイオイメージング
第 31 回表面科学学術講演会(タワーホール船堀、東京都、2011/12/17、口頭)
109. 志戸本祥、若松慶信、瀬木利夫、青木学聡、松尾二郎
高速重イオンプローブ集束用静電型四重極レンズの開発
第 72 回応用物理学会学術講演会(山形大学、2011/9/1、口頭)
110. 中川駿一郎、市木和弥、瀬木利夫、青木学聡、松尾二郎
クラスター生成とそのサイズ分布制御
第 72 回応用物理学会学術講演会(山形大学、2011/9/1、口頭)

111. 市木和弥、瀬木利夫、青木学聡、松尾二郎
大電流密度ガスクラスターイオンビームのサイズ選別照射 VIII
第 72 回応用物理学会学術講演会(山形大学, 2011/9/1、口頭)
112. 山本恭千、市木和弥、瀬木利夫、青木学聡、松尾二郎
Ar クラスターを用いた有機試料表面のイオンビーム照射損傷深さ評価
第 72 回応用物理学会学術講演会(山形大学, 2011/9/1、口頭)
113. 本谷友作、羽田真毅、松尾二郎
ジアリールエテンの光誘起相転移現象のフェムト秒実時間観察
第 72 回応用物理学会学術講演会(山形大学, 2011/8/30、口頭)
114. J. Matsuo, K. Ichiki, S. Nakagawa, T. Seki and T. Aoki
“Depth Profiling Technique and Molecular Imaging with Cluster SIMS -from Organic Thin Films and Single Cells -”
21th MRS-J Symposium (International Session) (Yokohama, Japan, 2011/12/19, Oral)
115. T. Seki, K. Ichiki, J. Tamura, T. Aoki and J. Matsuo
“The Effect of Size Variation in Sputtering with Size-Selected Cluster Ion Beams”
11th Workshop on Cluster Ion Beam Technology (Tokyo, Japan, 2011/12/5, Oral)
116. T. Aoki, T. Seki and J. Matsuo
“Molecular dynamics simulations of large fluorine cluster impact on silicon with supersonic velocity”
11th Workshop on Cluster Ion Beam Technology (Tokyo, Japan, 2011/12/5, Oral)
117. J. Matsuo, K. Ichiki, T. Yamanobe, Y. Yamamoto, T. Aoki and T. Seki
“Molecular Imaging of Cells and Tissues with Novel Ion Beams”
AVS 58th International Symposium (Nashville, USA, 2011/11/2, Oral)
118. J. Matsuo, K. Ichiki, T. Seki and T. Aoki
“The effect of size variation in sputtering with size-selected cluster ion beams”
18th International Conference on Secondary Ion Mass Spectrometry (SIMS XVIII) (Tretino, Itary, 2011/9/23, Oral)
119. J. Matsuo, K. Ichiki, T. Yamanbe, Y. Yamamoto, T. Seki and T. Aoki
“A focused Ar cluster ion beam for molecular imaging”
18th International Conference on Secondary Ion Mass Spectrometry (SIMS XVIII) (Tretino, Itary, 2011/9/23, Oral)
120. J. Matsuo, Y. Wakamatsu, K. Ichiki, T. Yamanobe, Y. Yamamoto, B. Jones, R. Webb, T. Seki and Takaaki Aoki
“Cell and tissue imaging with novel ion beams”
18th International Conference on Secondary Ion Mass Spectrometry (SIMS XVIII) (Tretino, Itary, 2011/9/19, Oral)
121. J. Matsuo, Y. Wakamatsu, T. Seki and T. Aoki

- “Secondary ion emission from biomaterials with swift heavy ions: toward a novel application for bio-imaging”
16th International Conference on Radiation Effects in Insulators (REI2011)(Beijing, China, 2011/8/17, Oral)
122. J. Matsuo
“Ar Cluster SIMS: What’s next?”
23rd Annual Workshop on SIMS (Baltimore, USA, 2011/5/18, Oral)
123. J. Matsuo, Y. Wakamatsu, T. Aoki and T. Seki
“Secondary Molecular Ion Emission with Swift Heavy Ions: A Novel Imaging Technique for Biological Applications”
E-MRS 2011 Spring Meeting (Nice, France, 2011/5/11, Oral)
124. J. Matsuo, Y. Wakamatsu, T. Aoki and T. Seki
“Bio-imaging technique with swift heavy ions -from single cells to tissues-”
20th International Conference on Ion Beam Analysis (Itapema, Brazil, 2011/4/15, Oral)
125. 志戸本祥、瀬木利夫、青木学聡、松尾二郎
MeV-SIMS イメージング用静電型四重極レンズの開発
第 73 回応用物理学会学術講演会(愛媛大学/松山大学, 2012/9/13、口頭)
126. 中川駿一郎、瀬木利夫、青木学聡、松尾二郎
集束クラスターイオンビーム照射による直行加速飛行時間型 SIMS 分析
第 73 回応用物理学会学術講演会(愛媛大学/松山大学, 2012/9/13、口頭)
127. 本谷友作、羽田真毅、瀬木利夫、青木学聡、松尾二郎
有機結晶におけるフォトクロミック反応のフェムト秒実時間観察
第 73 回応用物理学会学術講演会(愛媛大学/松山大学, 2012/9/13、口頭)
128. Y. Hontani, M. Hada, T. Aoki, T. Seki and J. Matsuo
“Ultrafast Molecule Dynamics of Photochromic Reaction in Diarylethene”
IUMRS-International Conference on Electronic Materials (IUMRS-ICEM 2012) (Yokohama, Japan, 2012/9/23-28, Oral)
129. J. Matsuo, M. Hada, Y. Hontani, T. Seki and T. Aoki
“Photoinduced Ultrafast Phase Transition in VO₂ Crystal: Atomic Motion of Vanadium”
IUMRS-International Conference on Electronic Materials (IUMRS-ICEM 2012) (Yokohama, Japan, 2012/9/23-28, Oral)
130. J. Matsuo, T. Aoki and T. Seki
“Molecular Imaging of Cells and Tissues with Continuous Cluster Ion Beams”
19th International Mass Spectrometry Conference (Kyoto, Japan, 2012/9/15-21, Oral)
131. J. Matsuo, S. Shitamoto, S. Nakagawa, T. Aoki and T. Seki
“MeV-SIMS with Swift Heavy Ion Beams toward Molecular”
13th International Conference On Nuclear Microprobe Technology & Applications (ICNMTA2012) (Lisbon, Portugal 2012/7/24, Oral)

132. T. Aoki, T. Seki and J. Matsuo
 “Evaluation of sputtering and damage with huge cluster impact using molecular dynamics simulations”
 Computer Simulations of Radiation Effects in Solids (COSIRES2012) (Santa Fe, USA, 2012/6/26, Oral)
133. T. Seki, S. Shitamoto, S. Nakagawa, T. Aoki and J. Matsuo
 “An Electrostatic Quadrupole Lens for Focusing Swift Heavy Ions in MeV-SIMS”
 The International Symposium on SIMS and Related Techniques Based on Ion-Solid Interactions at Seikei University (SISS-14) (Seikei Univ., Tokyo, 2012/6/1, Oral)
134. J. Matsuo, S. Nakagawa, M. Py. K. Ichiki, T. Aoki and T. Seki
 “Mass Imaging with Cluster Ion Beams”
 The International Symposium on SIMS and Related Techniques Based on Ion-Solid Interactions at Seikei University (SISS-14) (Seikei Univ., Tokyo, 2012/5/31, Oral)
135. J. Matsuo
 “A New SIMS Imaging System with A Focused Ar Cluster Beam for Molecular Imaging”
 24th Annual Workshop on SIMS (USA, 2012/5/17, Oral)
136. J. Matsuo, K. Ichiki, T. Aoki and T. Seki
 “A Novel Imaging Technique for Cells and Tissue by Energetic Particle Bombardment”
 2012 MRS Spring Meetings (USA, 2012/4/11, Oral)
137. Y. Hontani, M. Hada, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
 “Real-time Observation of Photo-induced Phase Transition of Diarylethene”
 2012 MRS Spring Meetings (USA, 2012/4/10, Oral)
138. Yusaku Hontani¹, Masaki Hada, Toshio Seki, Takaaki Aoki and Jiro Matsuo
 “Femtosecond X-ray Diffraction of Photochromic Diarylethenes”
 Banff Meeting on Structural Dynamics (Banff, Canada, 2012/2/20, Oral)
139. 羽田真毅, 張東方, Casandruc Albert, 本谷友作, 松尾二郎, Marvel Robert, Haglund Richard, Miller Dwayne
 “熱電子励起相転移現象の観測”
 第 60 回応用物理学会春季学術講演会 (神奈川工科大学 2013/3/27 口頭)
140. 羽田真毅, 張東方, Gengler Regis, Sciaini German, 松尾二郎, 瀬木利夫, Miller Dwayne
 “パウリ崩壊: アルカリハライド塩の電荷移動吸収帯励起反応”
 第 60 回応用物理学会春季学術講演会 (神奈川工科大学 2013/3/27 口頭)
141. 本谷友作, 羽田真毅, 青木学聡, 瀬木利夫, 松尾二郎
 “ジアリールエテン単結晶の光反応のフェムト秒構造ダイナミクス”
 第 60 回応用物理学会春季学術講演会 (神奈川工科大学 2013/3/27 口頭)
142. 藤井麻樹子, Hubert Gnaser, 中川駿一郎, 瀬木利夫, 青木学聡, 松尾二郎

“Ar クラスターイオンを用いたアミノ酸のスパッタリング機構に関する研究”
第 60 回応用物理学会春季学術講演会(神奈川工科大学 2013/3/28 口頭)

143. 青木学聡, 瀬木利夫, 松尾二郎
“Si トレンチ構造への巨大フッ素クラスター衝突の MD シミュレーション”
第 60 回応用物理学会春季学術講演会(神奈川工科大学 2013/3/29 口頭)

144. 鳥居聡太, 瀬木利夫, 青木学聡, 松尾二郎
“高空間分解能 SIMS 用クラスターイオン源の開発”
第 60 回応用物理学会春季学術講演会(神奈川工科大学 2013/3/29 口頭)

145. 志戸本祥, 瀬木利夫, 青木学聡, 松尾二郎
“高速重イオンをプローブとした質量イメージング技術の高速化とその応用”
第 60 回応用物理学会春季学術講演会(神奈川工科大学 2013/3/29 口頭)

146. 瀬木利夫, 吉野裕, 妹尾武彦, 小池国彦, 青木学聡, 松尾二郎
“ClF₃ 中性クラスタービームによる反応性エッチングの高速化”
第 60 回応用物理学会春季学術講演会(神奈川工科大学 2013/3/29 口頭)

③ ポスター発表 (国内会議 8 件、国際会議 53 件)

1. 中田 由彦, 山田 英丙, 本田 善郎, 二宮 啓, 瀬木 利夫, 青木 学聡, 松尾 二郎
“高速重イオン照射による薬物・脂質混合試料の二次イオン質量分析”
日本質量分析学会 第 56 回質量分析総合討論会 (つくば国際会議場, 2008/5/15, Poster)
2. 山田 英丙, 二宮 啓, 市木 和弥, 瀬木 利夫, 青木 学聡, 松尾 二郎
“ガスクラスターイオンを用いた生体高分子試料の ToF-SIMS 分析”
日本質量分析学会 第 56 回質量分析総合討論会 (つくば国際会議場, 2008/5/15, Poster)
3. T. Aoki, T. Seki and J. Matsuo,
“MD Study of Damage Accumulation Process With Poly-atomic Cluster Implantation”
17th International Conference on Ion Implantation Technology (California, USA, 2008/6/12, Poster)
4. T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo,
“Investigation of Damage with Cluster Ion Beam Irradiation”
17th International Conference on Ion Implantation Technology (California, USA, 2008/6/12, Poster)
5. T. Aoki, T. Seki, S. Ninomiya, K. Ichiki, J. Matsuo
“Study of crater formation process with cluster ion impact”
16th International Conference on Ion Beam Modification of Materials, (Dresden, Germany, 2008/9/3, Poster)
6. T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
“High-speed processing with Cl₂ cluster ion beam”
16th International Conference on Ion Beam Modification of Materials, (Dresden, Germany, 2008/9/3, Poster)

7. K. Ichiki, S. Ninomiya, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
Size-selected High Density Large Gas Cluster Ion Beam Irradiation
The IUMRS International Conference in Asia (Nagoya Congress Center, Japan, 2008/12/11, Poster)
8. T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
Etching Characteristics with Ar-Cl₂ Gas Mixed Cluster Ion Beam
The IUMRS International Conference in Asia (Nagoya Congress Center, Japan, 2008/12/11, Poster)
9. S. Ninomiya, K. Ichiki, H. Yamada, Y. Nakata, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
Low Damage Etching of Polymer Materials for Depth Profile Analysis Using Large Ar Cluster Ion Beam
The International workshop for Surface Analysis and Standardization '09 (Okinawa, Japan, 2009/3/18, Poster)
10. T. Aoki, T. Seki and J. Matsuo
Molecular dynamics study of surface modification with large cluster ion impact.
2009 MRS spring meeting (San Francisco, CA, 2009/4/16, Poster)
11. K. Ichiki, S. Ninomiya, M. Hada, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
Size-selected high density large gas cluster ion beam irradiation.
2009 MRS spring meeting (San Francisco, CA, 2009/4/16, Poster)
12. J. Matsuo, T. Nagayama and M. Tanjo
Characterization of implanted layers obtained with cluster ions of varying size.
International Workshop on INSIGHT-2009 (Embassy Suites, Napa, CA, 2009/4/27, Poster)
13. 山田英丙, 中田由彦, 二宮 啓, 瀬木利夫, 青木学聡, 松尾二郎
“高速重イオンをプローブとする細胞レベル質量イメージング手法の開発”
第36回BMSコンファレンス(リゾートホテル海辺の果樹園, 高知, 2009/7/5-7, Poster)
14. T. Aoki, T. Seki and J. Matsuo
Study of atomic mixing and migration by low-energy ion irradiation using MEIS and MD simulation
19th Ion Beam Analysis (University of Cambridge, UK, 2009/9/7, Poster)
15. H. Yamada, Y. Nakata, S. Ninomiya, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
MeV-Energy Probe SIMS Imaging of Major Components in Washed, Etched or Fractured Animal Cells
19th Ion Beam Analysis (University of Cambridge, UK, 2009/9/7, Poster)
16. T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
Etching of Metallic Materials with Cl₂ Gas Cluster Ion Beam
16th International Conference on Surface Modification of Materials by Ion Beams (SMMIB2009) (AIST Tokyo Waterfront, Japan, 2009/9/16, Poster)
17. Y. Yamamoto, K. Ichiki, S. Ninomiya, T. Seki and J. Matsuo
Damage evaluation of polymer materials irradiated with Ar cluster ion beams
16th International Conference on Surface Modification of Materials by Ion

- Beams (SMMIB2009) (AIST Tokyo Waterfront, Japan, 2009/9/16, Poster)
18. M. Hada, S. Ninomiya, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
Evaluation of optical properties in organic films with irradiation of cluster ion beams
17th International Conference on Secondary Ion Mass Spectrometry (Toronto, Canada, 2009/9/14, Poster)
 19. K. Ichiki, S. Ninomiya, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
Size effects of sputtering yields with large cluster ion beams
17th International Conference on Secondary Ion Mass Spectrometry (Toronto, Canada, 2009/9/14, Poster)
 20. Y. Nakata, H. Yamada, S. Ninomiya, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
Matrix-assisted Molecular Emission under MeV Ion Bombardment
17th International Conference on Secondary Ion Mass Spectrometry (Toronto, Canada, 2009/9/14, Poster)
 21. Y. Nakata, H. Yamada, J. Tamura, S. Ninomiya, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
Wet-SIMS with Swift Heavy Ions for Biological Applications
Y. Nakata, H. Yamada, S. Ninomiya, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
17th International Conference on Secondary Ion Mass Spectrometry (Toronto, Canada, 2009/9/14, Poster)
 22. H. Yamada, Y. Nakata, S. Ninomiya, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
MeV-Energy Probe SIMS Imaging of Pretreated Animal Cells
17th International Conference on Secondary Ion Mass Spectrometry (Toronto, Canada, 2009/9/14, Poster)
 23. T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
“Investigation of cluster ion irradiation damage with HR-RBS”
5th International Workshop on High-Resolution Depth Profiling (Kyoto, Japan, 2009/11/17, Poster)
 24. T. Seki, Y. Yamamoto, K. Ichiki, S. Ninomiya and J. Matsuo
“Soft Excitation and Processing of Polymer Materials with Cluster Ion Beams”
International Symposium on the Physics of Excitation-assisted Nano-processes (ISPEN2009) (Wakayama, Japan, 2009/11/20, Poster)
 25. T. Yamanobe, Y. Yamamoto, K. Ichiki, S. Ninomiya, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
“Development of high-intensity Ar Cluster ion beam source”
19th MRS-J Symposium (国際セッション) (Yokohama, Japan, 2009/12/8, Poster)
 26. K. Ichiki, S. Ninomiya, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
“Size and energy dependence of the sputtering yield of Si bombarded with gas cluster ion beams”
18th International Conference on Ion Implantation Technology (Kyoto University, Japan, 2010/6/7, Poster)
 27. Y. Yamamoto, K. Ichiki, S. Ninomiya, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
“Damage evaluation of organic materials irradiated with Ar cluster ion beam”
18th International Conference on Ion Implantation Technology (Kyoto

- University, Japan, 2010/6/7, Poster)
28. Y. Wakamatsu, H. Yamada, S. Ninomiya, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
 “SIMS with Fast Heavy Ions for Biomolecule Analysis”
 18th International Conference on Ion Implantation Technology (Kyoto University, Japan, 2010/6/7, Poster)
 29. T. Yamanobe, Y. Yamamoto, K. Ichiki, S. Ninomiya, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
 “Development of high-intensity Ar cluster ion beam equipment”
 18th International Conference on Ion Implantation Technology (Kyoto University, Japan, 2010/6/8, Poster)
 30. M. Hada, S. Ibuki, S. Ninomiya, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
 “Evaluation of damage layer in an organic film with irradiation of energetic ion beams”
 18th International Conference on Ion Implantation Technology (Kyoto University, Japan, 2010/6/8, Poster)
 31. 若松慶信, 山田英丙, 二宮 啓, 瀬木利夫, 青木学聡, 石原昭彦, 松尾二郎
 高速重イオンプローブによる神経組織イメージング質量分析
 第 58 回質量分析総合討論会 (エポカルつくば, 2010/6/18, Poster)
 32. 若松慶信, 山田英丙, 二宮 啓, 瀬木利夫, 青木学聡, 石原昭彦, 松尾二郎
 “高速重イオンによる生体内脂質分子のイメージング”
 第 37 回 BMS コンファレンス (沖縄残波岬ロイヤルホテル, 2010/7/8, Poster)
 33. Y. Wakamatsu, H. Yamada, S. Ninomiya, T. Seki, T. Aoki, J. Matsuo
 “Biomolecular Analysis with Nuclear Microprobe under Near-ambient Conditions”
 12th International Conference on Nuclear Microprobe Technology and Applications (ICNMTA 2010) (Leipzig, German, 2010/07/27, Poster)
 34. 山本恭千, 市木和弥, 二宮 啓, 瀬木利夫, 青木学聡, 松尾二郎
 Ar クラスターSIMS を用いた ToF 型質量イメージング装置の開発
 第 30 回表面科学学術講演会 (大阪大学, 2010/11/5, Poster)
 35. K. Ichiki, S. Ninomiya, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
 “The effects of cluster size and energy on surface smoothing with gas cluster ion beams”
 17th International Conference on Ion Beam Modification of Materials (IBMM2010), (Montreal, Canada, 2010/8/23, Poster)
 36. M. Hada and J. Matsuo
 “Ultrafast optical actuation of VO₂ thin film accompanied by the structural phase transition”
 1st CFEL Symposium, (Sylt Germany, 2011/03/18, Poster)
 37. J. Matsuo, Y. Wakamatsu, T. Seki and T. Aoki
 “Molecular Imaging of Cells and Tissues by Wet-SIMS” Using Swift Heavy Ion Beams”
 20th MRS-J Symposium (International Session) (Yokohama, Japan, 2010/12/21, Oral)

38. K. Ichiki, S. Ninomiya, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
 “The effects of cluster size on sputtering and surface smoothing with gas cluster ion beams”
 20th MRS-J Symposium (International Session) (Yokohama, Japan, 2010/12/22, Poster)
39. T. Aoki, T. Seki and J. Matsuo
 “MD Simulation of Huge Fluorine Cluster Impact on Silicon”
 20th MRS-J Symposium (International Session) (Yokohama, Japan, 2010/12/22, Poster)
40. Y. Yamamoto, K. Ichiki, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
 “Evaluation of Damage Depth on Organic Materials Surfaces with Molecular Depth Profiling by Ar Cluster”
 20th MRS-J Symposium (International Session) (Yokohama, Japan, 2010/12/22, Poster)
41. 本谷友作、羽田真毅、瀬木利夫、青木学聡、松尾二郎
 ジアリールエテンの光誘起相転移現象のフェムト秒実時間観察
 励起ナノプロセス研究会 第7回研究会 (ビッグアイ、堺市、2011/11/1、ポスター)
42. Y. Hontani, M. Hada, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
 “Time-resolved Observation of the Photoinduced Phase Transition of Diarylethene”
 Banff Meeting on Structural Dynamics Ultrafast Dynamics with Xrays and Electrons (Banff, Canada, 2012/2/19, Poster)
43. M. Hada, J. Hirscht, D. Zhang, K. Pichugin, S. Hayes, G. Moriena, G. Sciaini, T. Seki, T. Aoki,
 J. Matsuo and R.J.D. Miller,
 “Sample Preparation for Femtosecond Electron Diffraction: Low Damage Milling of Organic Materials with Cluster Ion Beams”
 Banff Meeting on Structural Dynamics Ultrafast Dynamics with Xrays and Electrons (Banff, Canada, 2012/2/19, Poster)
44. T. Aoki, T. Seki and J. Matsuo
 “Large-Scale Molecular Dynamics Simulation of Huge Fluorine Cluster Impact on Silicon”
 21th MRS-J Symposium (International Session) (Yokohama, Japan, 2011/12/20, Poster)
45. S. Shitomoto, Y. Wakamatsu, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
 “Development of Electrostatic Quadrupole Lens for Focusing of Swift Heavy Ion”
 21th MRS-J Symposium (International Session) (Yokohama, Japan, 2011/12/20, Poster)
46. Y. Yamamoto, K. Ichiki, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
 “Ion-induced damage evaluation with Ar cluster ion beams”
 18th International Conference on Secondary Ion Mass Spectrometry (SIMS XVIII) (Tretino, Itary, 2011/9/22, Poster)

47. T. Tadic, J. Matsuo, N. Skukan and M. Jaksic
 “Development of TOF SIMS setup at the Zagreb Heavy Ion Microbeam Facility”
 18th International Conference on Secondary Ion Mass Spectrometry (SIMS XVIII) (Tretino, Itary, 2011/9/22, Poster)
48. J. Matsuo, K. Ichiki, Y. Yamamoto, T. Seki and T. Aoki
 “Depth Profiling Analysis with Size-controlled Cluster Ion Beam”
 (Seoul, Korea, 2011/5/24, Poster)
49. T. Aoki, T. Seki and J. Matsuo
 “Molecular dynamics study of species and structure effect on large cluster impact”
 E-MRS 2011 Spring Meeting (Nice, France, 2011/5/9, Poster)
50. K. Ichiki, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
 “The effects of cluster size and energy on sputtering with gas cluster ion beams”
 E-MRS 2011 Spring Meeting (Nice, France, 2011/5/9, Poster)
51. J. Matsuo, K. Ichiki, Y. Yamamoto, T. Seki and T. Aoki
 “Damage free sputtering with size-controlled cluster ion beam for material analysis”
 20th International Conference on Ion Beam Analysis (Itapema, Brazil, 2011/4/13, Poster)
52. S. Nakagawa, T. Seki, T. Aoki, and J. Matsuo
 “Etching of Si by Methanol Gas Cluster Ion Beam Irradiation”
 IUMRS-International Conference on Electronic Materials (IUMRS-ICEM 2012) (Yokohama, Japan, 2012/9/23-28, Poster)
53. S. Shitomoto, T. Seki, T. Aoki, and J. Matsuo
 “Development of Electrostatic Quadrupole Lens for MeV-SIMS Imaging”
 IUMRS-International Conference on Electronic Materials (IUMRS-ICEM 2012) (Yokohama, Japan, 2012/9/23-28, Poster)
54. S. Shitomoto, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
 “Development of Electrostatic Quadrupole Lens for MeV-SIMS Imaging”
 19th International Mass Spectrometry Conference (Kyoto, Japan, 2012/9/15-21, Poster)
55. S. Nakagawa, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
 “Secondary Ion Emission with Methanol Gas Cluster Ion Beam Irradiation”
 19th International Mass Spectrometry Conference (Kyoto, Japan, 2012/9/15-21, Poster)
56. T. Seki, S. Shitomoto, S. Nakagawa, T. Aoki and J. Matsuo
 “Bio-imaging with Swift Heavy Ion Beams”
 19th International Mass Spectrometry Conference (Kyoto, Japan, 2012/9/15-21, Poster)
57. T. Seki, S. Shitomoto, S. Nakagawa, T. Aoki and J. Matsuo

“An Electrostatic Quadrupole Lens for Focusing Swift Heavy Ions in MeV-SIMS”
13th International Conference On Nuclear Microprobe Technology & Applications (ICNMTA2012) (Lisbon, Portugal 2012/7/26, Poster)

58. M. Hada, Y. Hontani, R.E. Marvel, R.F. Haglund Jr., J. Matsuo
“Ultrafast Hot-electron Induced Phase Transitions in Vanadium Dioxide”
Ultrafast Phenomena 2012 (Lausanne, Switzerland, 2012/7/9, poster)
59. M. Py, M. Takeuchi, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
“Boron concentration measurement in cultivated cells with Nano-SIMS”
The International Symposium on SIMS and Related Techniques Based on Ion-Solid Interactions at Seikei University (SISS-14) (Seikei Univ., Tokyo, 2012/5/31, Poster)
60. Masaki Hada, Dongfang Zhang, Regis Gengler, Toshio Seki, Jiro Matsuo
“Pauli Driven Cold Explosion in Alkali Halides”
Banff Meeting on Structural Dynamics (Banff, Canada, 2012/2/19, Poster)
61. 中川駿一郎, 瀬木利夫, 青木学聡, 松尾二郎
“ガスクラスターイオンビームによる DSPC の深さ方向 SIMS 分析”
第 60 回応用物理学会春季学術講演会(神奈川工科大学 2013/3/28 ポスター)

(4)知財出願

①国内出願 (1 件)

- 1.「クラスター照射式加工方法」, 小池国彦 妹尾武彦 吉野裕 東周平 松尾二郎
瀬木利夫 二宮啓, 岩谷産業(株) 国立大学法人京都大学, 2008.8.18 出願, 特願
2008-210140

②海外出願 (1 件)

- 1.「クラスタ噴射式加工方法、半導体素子、微小電気機械素子、及び、光学部品」,
小池国彦 妹尾武彦 吉野裕 東周平 松尾二郎 瀬木利夫 二宮啓, 岩谷産業
(株) 国立大学法人京都大学, 2009.8.10 国際出願 2010.2.25 国際公開, PCT,
国際出願 PCT/JP2009/064131, 国際公開 WO2010/021265

(5)受賞・報道等

①受賞

1. S. Ninomiya
SIMS XVI Young Scientist Award (SIMS XVI International Committee)
(2007)
2. K. Ichiki, S. Ninomiya, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
“Size-selected High Density Large Gas Cluster Ion Beam Irradiation”
The IUMRS International Conference in Asia (Nagoya Congress Center, Japan,
2008/12/11, Poster) IU-MRS2008 **奨励賞**
3. K. Ichiki, S. Ninomiya, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
“Size effects of sputtering yields with large cluster ion beams”
17th International Conference on Secondary Ion Mass Spectrometry (Toronto,
Canada, 2009/9/14, Poster) **Surface Science Western SIMS Research Award for
Poster Presented at the Conference**

4. Y. Wakamatsu, H. Yamada, S. Ninomiya, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
“SIMS with Fast Heavy Ions for Biomolecule Analysis”
18th International Conference on Ion Implantation Technology (Kyoto University, Japan, 2010/6/7, Poster) IIT2010 **Poster Award**
5. Y. Yoshino, T. Seki, T. Senoo, K. Koike, S. Ninomiya, T. Aoki and J. Matsuo
“High Speed Si Etching with ClF₃ Cluster Injection”
18th International Conference on Ion Implantation Technology (Kyoto University, Japan, 2010/6/8, Poster) IIT2010 **Poster Award**
6. 若松慶信, 山田英丙, 二宮 啓, 瀬木利夫, 青木学聡, 石原昭彦, 松尾二郎
“高速重イオンプローブによる神経組織イメージング質量分析”
第 58 回質量分析総合討論会 (エポカルつくば, 2010/6/18, Poster) **優秀ポスター賞**
7. 中田由彦, 山田英丙, 本田善郎, 二宮啓, 瀬木利夫, 青木学聡, 松尾二郎
高速重イオンを利用したイメージング質量分析
2010 年度日本質量分析学会 **会誌賞**
8. 日本学術振興会 **榊賞**, 松尾二郎, 平成 23 年 9 月 15 日
9. 第 7 回励起ナノプロセス研究会、本谷友作、平成 23 年 11 月 1 日 **ポスター賞**

(6)成果展開事例

①実用化に向けての展開

- 本課題で研究しているクラスターイオンエッチング法について、ULVAC-Phi 社から XPS 用スパッタリング銃および光電子分光装置として実施許諾し、販売を開始
- 本研究で得られた有機材料分析技術について、民間企業8社(守秘義務あり)と海外の6研究機関と共同研究を実施中。
- 本研究で得られた有機材料分析技術は、SIMS の国際標準サンプルの分析技術として検討が進められている。
- JST「戦略的国際科学技術協力推進事業」に課題名「高速重イオンマイクロビームによる先進的分子イメージング法の研究」として採択され、実施中(H22-H25)
- 本課題で研究してきたクラスターイオンエッチング技術を基礎として、高反応性中性クラスターエッチング法を見だし、JST「A-STEP」事業に採択され、現在実施中 課題名「非イオン化クラスタービーム技術を利用した Si 深堀エッチング技術の実用化開発」(H23～25)

②社会還元的な展開活動

- 本課題で研究している高速重イオンによる表面分析技術は、欧州のイオンビームに関する広域連携研究プログラム“SPIRIT” <http://www.spirit-ion.eu/Project.html> の研究課題として採択され、さらにトレーニングネットワーク“SPRITE”の技術研修プログラムの1つにも採択された。
- 本課題で研究している高速重イオンによる表面分析技術は、国際原子力機関(IAEA)のテクニカルミーティングに取り上げられ、その開発と応用に関する報告がなされた。

§ 6 研究期間中の活動

年月日	名称	場所	参加人数	概要
2007 年 11 月 8 日～9 日	8 th Workshop on Cluster Ion Beam Technology	産業技術総合研 究所(バイオ・IT 融合研究棟)(東 京都江東区)	100 名	クラスターイオンの基礎か ら応用まで議論する WS
2009 年 3 月 11 日～12 日	9 th Workshop on Cluster Ion Beam Technology	産業技術総合研 究所(バイオ・IT 融合研究棟)(東 京都江東区)	80 名	クラスターイオンの基礎か ら応用まで議論する WS
2010 年 6 月 6 日～11 日	18 th International Conference on Ion Implantation Technology	京都大学 百周 年記念館(京都市 左京区)	300 名	イオン注入技術に関する 国際会議
2010 年 6 月 14 日～15 日	10 th Workshop on Cluster Ion Beam Technology	メルパルク京都 (京都市下京区)	50 名	クラスターイオンの基礎か ら応用まで議論する WS
2010 年 11 月 16 日	第1回日本クロアチア 2 課題合同研究会	高崎原研(高崎 市)	9 名	加速器応用に関する研究 会
2011 年 12 月 5 日	11 th Workshop on Cluster Ion Beam Technology	京都大学 東京 オフィス(東京都 港区)	30 名	クラスターイオンの基礎か ら応用まで議論する WS
2012 年 5 月 21 日～25 日	Joint IAEA-SPIRIT-J apan Technical Meeting on Development and Utilization of MeV SIMS	クロアチア ドゥブ ロブニク	30 名	加速器を利用する SIMS に関するワークショップ
2012 年 9 月 21 日	IMSC2012 サテラ イトシンポジウム	桜鶴苑(京都市左 京区)	30 名	質量分析技術に関するシ ンポジウム

§ 7 結び

開発した装置は世界に誇れる素晴らしいものになったと思っていますし、国内外の多くの方から共同研究や評価の依頼が来ており、鋭意進めております。タイミングよく支援いただけたことで、世界から最先端の研究を行っている研究グループとして高く評価されることができました。Bio-SIMS の分野の研究は各国で活発化しており、大きなプロジェクトとして研究を進めている国もあり、これからは本当の勝負になるとと思っています。