

令和 3 年 6 月 28 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(A)（一般）

研究期間：2017～2020

課題番号：17H01058

研究課題名（和文）大気圧SIMS法の開発とその固液界面評価への応用

研究課題名（英文）Ambient SIMS Technique for Liquid-Solid Interface Analysis

研究代表者

松尾 二郎 (MATSUO, Jiro)

京都大学・工学研究科・准教授

研究者番号：40263123

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 32,900,000 円

研究成果の概要（和文）：機能発現の場である表面・界面の観察は、発現メカニズムの解明には欠かせないが、これまで開発されてきた表面・界面観察技術の多くは超高真空もしくは高真空を必要とするため、液相や高圧の気相との界面評価には適しているとは言えなかった。これまでの評価手法の限界を打破するために、高速重イオン(MeV程度)を入射イオンに用いる2次イオン質量分析法(SIMS)を用い、固体と液体との界面を直接観察することのできる全く新しい革新的評価手法の研究・開発をした。この手法を用いて、最も身近な液体である水やLiイオンバッテリーの電解液などの固液界面の評価を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

固液界面を観察できる全く新しい評価手法であるMeV-SIMS法を開発した。この手法は、大気圧下で高感度に分子状態の情報が取得可能というこれまでにない特徴を持っている。この手法を使って、2次電池として今や欠かせないLiイオン電池(LIB)の電解液の評価を行った。LIBは、高エネルギー密度かつ長寿命という特徴を持ち脱炭素社会実現のための2次電池としての役割も期待され、社会インフラとしても極めて重要な技術となっている。電解質として液体を使うLIBの性能向上のためには、電荷を受け渡す電極と電解液の界面の制御が重要であり、固液界面での評価手法として適用できることを実証した。

研究成果の概要（英文）：Observation of surface/interface, where functions are expressed, is indispensable for elucidation of the mechanism. However, most of the surface/interface analysis techniques that have been developed require ultrahigh vacuum or high vacuum, and thus are not suitable for interface evaluation with liquid phase or high pressure gas phase. In order to overcome the limitations of conventional analysis techniques, we have developed a completely new and innovative analysis technique that enables direct observation of the interface between solid and liquid using secondary ion mass spectrometry (SIMS), which uses fast heavy ions (about MeV) as incident ions. Using this technique, the solid/liquid interface of water, which is the most familiar liquid, and electrolyte of Li ion battery was evaluated.

研究分野：量子ビーム科学

キーワード：固液 2次イオン 高速重イオン クラスタ

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

表面の特異性は気相や液相と接することにより機能を発現することが多く、構造と機能に関する様々な研究がこれまでに進められてきた。機能発現の場である表面・界面の観察は、発現メカニズムの解明には欠かせないものであるが、これまで開発されてきた表面・界面観察技術の多くは超高真空もしくは高真空を必要とするため、液相や高圧の気相との界面評価には適しているとは言えなかった。具体的には、細胞や触媒、電池など固体と液体との界面は様々な分野で広く利用されているにもかかわらず、固液界面を評価できる手法が限られているため未だに十分理解されていない。これは、表面・界面を評価する手法の多くが、超高真空もしくは高真空を必要とするからである。

例えば、化学結合状態評価することのできる光電子分光法やオージェ電子分光法は、電子の運動エネルギーを測定するために電子の平均自由行程が短くなる低真空下での利用は極めて制限されている。しかし、化学状態を分析できる手法は限られているために、近年、低圧下での電子分光を実現するため差動排気機能を有する電子分光器が開発され、高強度の放射光を用いる数 Pa の低真空下での電子分光法(High Pressure XPS)が実現されている。しかし、実際に使われている圧力には達しておらず、大気圧下での固液界面の評価は原理的に極めて難しい状況にある。これまで固液界面の評価には、原子間力顕微鏡 (AFM) や赤外光を使った和周波法 (SFG)、斜入射 X 線回折法 (GXR) などが用いられているが、複雑な現象が起こる場である固液界面を解明するには、新しい手法が渴望されている。

2. 研究の目的

細胞、触媒、電池など様々な分野で固液界面は極めて重要な役割を担っているが、真空を基礎とする表面分析技術では限界があり、固液界面はいまだに十分解明されていない。例えば、電解質と接し様々な化学反応が複雑に進行するリチウムイオン電池の陰極・陽極の化学状態の時間変化など、これまでの分析手法では困難であった固液界面のダイナミクス解明などを試み、固体と液相との界面で起こる特異な現象の解明を行える革新的な評価技術を実現する。

表面から飛び出してくる 2 次イオンを用いて表面分析を行う 2 次イオン質量分析法(SIMS 法)は、高感度で最表面を評価できる手法として広く用いられている。しかし、通常の SIMS 法では数 keV 程度の低いエネルギーを持つ 1 次イオンを用いるため、そのイオンの大気圧下での飛程は極めて短く、透過力は小さい。しかし、数 MeV のエネルギーを持つ高速イオンの物質の透過力は極めて高く、大気圧中でも数 cm の飛程を持つ。さらに高速イオンの衝突により生じる高励起状態により分子イオンの放出が起こる。放出された 2 次分子イオンは表面の化学構造を反映しており、表面の化学状態に関する情報を得ることができる。さらに、1 次イオンビームは表面を励起するだけに用いられるので低圧下でエネルギーを多少失ってもよいというのも有利な点である。このような特徴を持つ高速重イオンを用いる SIMS 法を我々は“MeV-SIMS 法”と呼び世界に先駆けて開発してきた。

これまでの評価手法の限界を打破するために、高速重イオン(MeV 程度)を入射イオンに用いる 2 次イオン質量分析法 (SIMS) を用い、固体と液体との界面を直接観察することのできる全く新しい革新的評価手法の研究・開発を行うことを目的とする。

3. 研究の方法

高速重イオンの持つ高い透過力と 2 次イオンが最表面からだけ放出されるという特徴を用いて、固液界面の評価や大気圧下での物質表面を評価できる全く新しい分析手法を提案してきた。以下のようなユニークな特徴を持つ MeV-SIMS 法を用いることにより、固液界面に新しい知見をもたらす。

1. 2 次イオンを質量分析する本手法は、イオン 1 個でも検出できるので本質的に高感度な評価手法である。半導体の不純物分析技術として広く用いられていることから明らかのように、界面に特有の極めて少数の分子も検出できると期待される。
2. 元素組成分析としてだけでなく分子 2 次イオンを用いることにより、表面の分子状態も評価することができ、固液界面で起こっている化学反応を調べることができる。
3. 高速重イオンを用いると分子 2 次イオンの放出率が飛躍的に向上することが知られており、最表面の化学結合状態の分析を極めて高感度に行うことができる。
4. 分析感度が高いという特徴を活かし 2 次イオン測定時間を短くすることにより、界面状態の変化についても調べることが可能となり、化学反応の動的な過程についても知見を得ることが可能である。

この手法を用いて、最も身近な液体である水や応用が急拡大している Li イオンバッテリーの電解液などの固液界面を評価することができるのか、さらには液体の表面構造や固液界面構造が

どのようになっているのかを調べる。

4. 研究成果

固液界面を評価するためには、透過力の高い高速重イオンを1次イオンとして用いる必要がある。数 MeV の高速重イオンの飛程は数 mm と十分長いがため、大気圧中に引き出すことはそれほど困難ではない。しかし、表面で生成した2次イオンを効率よく質量分析計に引き込むには、様々な工夫が必要になってくる。通常の SIMS 法では高電界を印可することにより、静電力で2次イオンを引き込むが、大気圧下では残留ガスとの衝突を繰り返すため、イオンの運動エネルギーが失われ電界に従った軌道を取らない。このため、大気圧下では静電力だけでなく、粘性流の流れを使って2次イオンを引き込むことが必要となる。また、1次イオン、2次イオンとも最終的には高真空と接続する必要があるため、差動排気を用いても、大気圧とのインターフェースを取る部分には 100 μ m のピンホールとする必要がある。2次イオンをこの少穴から質量分析装置へ効率的に引き込むためのインターフェースの開発に成功し、大気圧下での2次イオン測定を成功させた。これにより、水などの高い蒸気圧を持つ液体についても測定可能となった。

図1に示すように高速重イオンによる“MeV-SIMS法”を用い、液滴が付着した試料からの2次イオンスペクトルを計測すると、2次イオンスペクトルは時間とともに変化する。これは、表面に付着した液体が揮発することによるものであり、最初は液体表面から放出される2次イオンである。液体からの揮発が進み液相の厚みが薄くなると固液界面からの2次イオンスペクトルが観察される。さらに、揮発が進むと液体分子がすべて蒸発し固体からの2次イオンスペクトルのみが計測される。界面吸着層からの2次イオンスペクトルが固液相界面の情報を持っているので、様々な吸着層の2次イオンスペクトルを計測した。

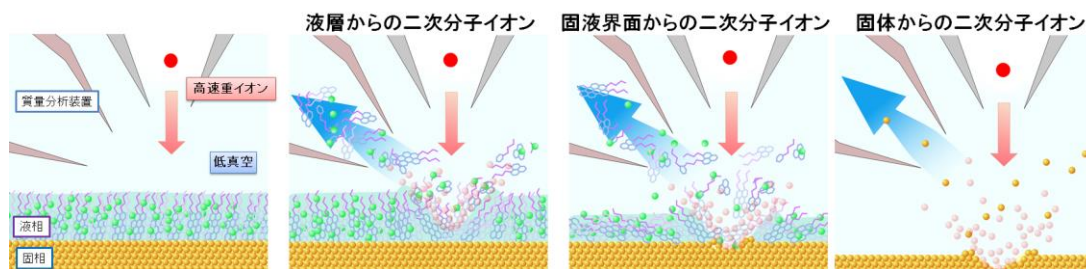


図1 高速重イオン SIMS 法(MeV-SIMS 法)による固液界面の評価法

最も多くの場所に普遍的に存在する水分子の吸着層について、MeV-SIMS法を用いて計測を行った。液体状態にあるこれらの液相の2次イオン測定は過去に行われておらず全く前例のない計測である。基板に水滴を滴下して形成した1mm程度の厚い水分子層が表面から観測される2次イオンは液体表面からのものであり、水分子の場合には水クラスターが多く観察される。特に、3量体や4量体の強度が強く観測され、1量体や2量体より高いということは、レーザーを使った液体からの質量分析法の結果と類似しており、水分子の構造安定性を強く反映していると考えられる。

一方、乾燥しては撥水状態のSi基板をターゲットチェンバーに導入し、その表面に水分子を吸着させたものも測定した。水分子の導入には飽和水蒸気圧の水分子を含むHeガスをターゲットに導入することによって形成した。すなわち、気体状態の水分子がSi表面に数分子層吸着した状態をMeV-SIMS法で評価した。この場合は、水分子層は数層と極めて薄いため液体状態とは異なっていると考えられる。このような極薄の水分子層も感度の高いMeV-SIMS法で測定することができ、表面界面の評価に適した手法であることを示すことができた。また、極薄層からのSIMSスペクトル

は液体状態の水と似ており、液体状態の水を測定することで液相の表面を評価できることが明らかとなった。透過力の高い高速重イオンを固体に入射した場合には、表面で生成した2次イオンだけが計測されることをすでに明らかにしており、液相からも同様に表面からの2次イオンだけが計測されることが示された。これは、深いところで生成した2次イオンが表面に到達するまでに脱励起されイオンとしては計測されないというモデルでうまく説明できる。このように、MeV-SIMS法は固体のみならず液体表面の化学状態を直接計測できることが明らかにした。

次に、2次電池として今や欠かせないLiイオン電池(LIB)の電解液のMeV-SIMS測定を行った。リチウムイオン電池(LIB)は、高エネルギー密度かつ長寿命という特徴を持つLIBは、ノートPCや電気自動車などの電源として、実社会で広く使用されるようになってきている。また、脱炭素社会実現のための2次電池としての役割も期待されており、社会インフラとしても極めて重要な技術となっている。このため、各国が高性能電池開発にしのぎを削っている。電解質として液体を使うLIBの性能向上のためには、電荷を受け渡す電極と電解液の界面の制御が重要であるが、充放電中の電極と電解液の界面についての理解はまだまだ不十分である。この界面での電荷授受に伴う化学反応は未だによくわかっておらず、その評価手法の確立が期待されている。

揮発性の高い液体分子からなる電解液を含むLIBの測定には、高真空下で測定を行うことができないため電解液を完全に除去した電極表面の測定がこれまで行われてきた。しかし、電解液が存在する電極表面とそれを除去した電極表面が大きく異なることは明らかであり、電解液が表面に存在する状態での評価が求められている。また、LIBで用いられているLiPF₆・LiBF₄などLi原子を含む電解質塩は大気中の酸素と激しく反応する物質であるため、その取扱いは容易ではない。本研究では、Arを満たしたグローブボックス中で試料を作成し、大気に触れることなくMeV-SIMS測定できるシステムを構築した。

これらのシステムを用いて試料を作成し、電解液が電極上に存在する試料のMeV-SIMS測定を行った。さらに、実際のLIBに使用されるエチレンカーボネート(EC)にLiPF₆を1M溶かした溶液(EC+LiPF₆)をシリコンウェーハーの上に、マイクロピペットで滴下し、実際のLIBと同じ電解質+電解質塩を使った測定も行った。

図2はECのみ及びEC+LiPF₆のMeV-SIMS測定結果である。EC+LiPF₆の測定結果(図2-

b)では、ECのみの測定では見られなかったLiPF₆由来の物質が数多く検出されている。Liを含む塩を試料に導入するとイオン化エネルギーの低いアルカリ金属であるLiがイオン化し、Li付加分子イオンとして検出されることは広く知られている。図2-bで観察された多くのピークがこのようなLi付加分子イオンであり、Liが付加された分子クラスターが電解液中で生成していることが分かった。このことは、Li電解質

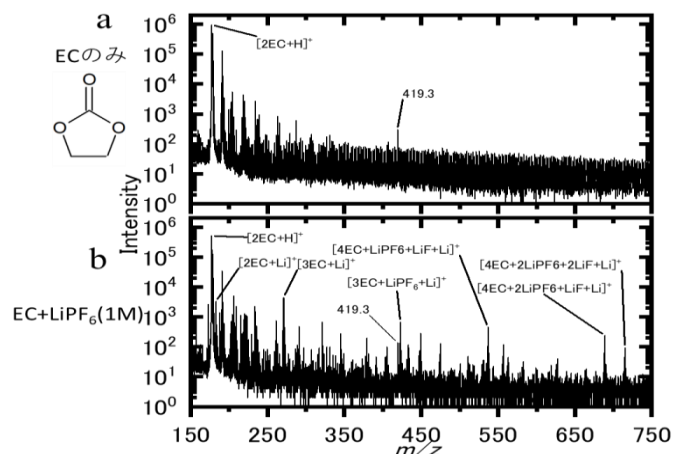


図1 SIMS スペクトル(a ECのみ b EC+LiPF₆(1M))

塩が電解質に溶けていることを意味しており、その時の状態の多くが電離せず中性であることを意味している。このような情報はこれまで得られたことがなく、理論計算や他の手法でも評価する必要がある。

これらの結果から MeV-SIMS による評価法は、電解液の表面に高い感度を示し、電解液表面の有機分子の測定に有効であり、今後、MeV-SIMS を用いた電極-電解液界面の有機分子の評価に広く活用できることを示している。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計11件（うち査読付論文 10件 / うち国際共著 6件 / うちオープンアクセス 5件）

1. 著者名 Hubert Gnaser, Rika Oki, Takaaki Aoki, Toshio Seki, Jiro Matsuo	4. 巻 92(1)
2. 論文標題 Optimized Alkali-Metal Cationization in Secondary Ion Mass Spectrometry of Polyethylene Glycol Oligomers with up to m/z 10000: Dependence on Cation Species and Concentration	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Analytical Chemistry 2020	6. 最初と最後の頁 1511-1517
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.analchem.9b04770	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する
1. 著者名 Hirose Ryo, Onaka-Masada Ayumi, Okuyama Ryosuke, Kadono Takeshi, Shigematsu Satoshi, Kobayashi Kouji, Suzuki Akihiro, Koga Yoshihiro, Matsuo Jiro, Kurita Kazunari	4. 巻 58(12)
2. 論文標題 Effect of ramping up rate on end of range defect in multielement molecular-ion (CH ₃ O)-implanted silicon wafers	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 121002-121002
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/1347-4065/ab4fc9	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Hada M, Miyata K, Ohmura S, Arashida Y, Ichiyonagi K, Katayama I, Suzuki T, Chen W, Mizote S, Sawa T, Yokoya T, Seki T, Matsuo J, Tokunaga T, Itoh C, Tsuruta K, Fukaya R, Nozawa S, Adachi SI, Takeda J, Onda K, Koshihara SY, Hayashi Y, Nishina Y	4. 巻 13(9)
2. 論文標題 Selective Reduction Mechanism of Graphene Oxide Driven by the Photon Mode versus the Thermal Mode.	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 ACS Nano	6. 最初と最後の頁 10103-10112
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsnano.9b03060	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 P.Thopan, T.Seki, L.D.Yu, U.Tippawan, J.Matsuo	4. 巻 450
2. 論文標題 Gas cooling secondary ions emitted by gas cluster ion beam at the travelling-wave ion guide of a Q-ToF-SIMS system	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms	6. 最初と最後の頁 139-143
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.nimb.2018.07.024	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 P.Thopan, T.Seki, L.D.Yu, U.Tippawan, J.Matsuo	4. 巻 448
2. 論文標題 Cluster ion beam bombardment and Q-ToF-SIMS analysis of large biomolecules	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms	6. 最初と最後の頁 11月18日
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.nimb.2019.04.001	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 松尾 二郎, 瀬木 利夫, 青木 学聡	4. 巻 61(7)
2. 論文標題 SIMS技術の飛躍的発展を支える新技術: 新奇なイオンビーム開発から先端質量分析法まで	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 表面と真空	6. 最初と最後の頁 426-434
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1380/vss.61.426	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Pruchayawoot Thopan, Hubert Gnaser, Rika Oki, Takaaki Aoki, Toshio Seki, Jiro Matsuo	4. 巻 430
2. 論文標題 Cationization and fragmentation of molecular ions sputtered from polyethylene glycol under gas cluster bombardment: An analysis by MS and MS/MS	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 INTERNATIONAL JOURNAL OF MASS SPECTROMETRY	6. 最初と最後の頁 149-157
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.ijms.2018.05.012	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Hubert Gnaser, Wolfgang Bock, Jiro Matsuo	4. 巻 36(3)
2. 論文標題 In situ cationization of molecular ions sputtered from organic specimens under cluster bombardment	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 JOURNAL OF VACUUM SCIENCE & TECHNOLOGY B	6. 最初と最後の頁 03F106-
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1116/1.5009781	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Bostjan Jencic, Luka Jeromel, Nina Ogrinc Potocnik, Katarina Vogel-Mikus, Primoz Vavpetic, Zdravko Rupnik, Klemen Bucar, Matjaz Vencelj, Mitja Kelemen, Jiro Matsuo, Masakazu Kusakari, Zdravko Siketic, Muhammad A. Al-Jalali, Abdallah Shaltout, Primoz Pelicon	4. 巻 404
2. 論文標題 Molecular imaging of alkaloids in khat (Catha edulis) leaves with MeV-SIMS	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 NUCLEAR INSTRUMENTS & METHODS IN PHYSICS RESEARCH SECTION B-BEAM INTERACTIONS WITH MATERIALS AND ATOMS	6. 最初と最後の頁 140-145
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.nimb.2017.01.063	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Toshio Seki, Hiroki Yamamoto, Takahiro Kozawa, Tadashi Shojo, Kunihiko Koike, Takaaki Aoki, Jiro Matsuo	4. 巻 56(6)
2. 論文標題 Angled etching of Si by ClF3-Ar gas cluster injection	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 JAPANESE JOURNAL OF APPLIED PHYSICS	6. 最初と最後の頁 06HB02
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/jjap.56.06hb02	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 T. Seki, H. Yamamoto, T. Kozawa, K. Koike, T. Aoki, J. Matsuo	4. 巻 110(18)
2. 論文標題 Fabrication of a Si lever structure made by double-angled etching with reactive gas cluster injection	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 APPLIED PHYSICS LETTERS	6. 最初と最後の頁 182105
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.4982970	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計66件 (うち招待講演 9件 / うち国際学会 37件)

1. 発表者名 T. Seki, T. Nonomura, T. Aoki, J. Matsuo
2. 発表標題 Ambient Secondary Ion Mass Analysis of Electrolyte of Lithium Ion Battery with MeV-Energy Heavy Ion
3. 学会等名 23rd International Workshop on Inelastic Ion-Surface Collisions (国際学会)
4. 発表年 2019年

1 . 発表者名 T. Matsuda, T. Seki, T. Aoki, J. Matsuo
2 . 発表標題 Etching by Massive Cluster Ions from Electrospray Ion Source
3 . 学会等名 23rd International Workshop on Inelastic Ion-Surface Collisions (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 T. Seki
2 . 発表標題 MeV-SIMS Measurements under Ambient and Humid Conditions
3 . 学会等名 The 22st International Conference on Secondary Ion Mass Spectrometry (招待講演) (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 K. Hirata, T. Seki, T. Aoki, J. Matsuo
2 . 発表標題 Development of a high energy cluster SIMS system with 50keV GCIB source
3 . 学会等名 The 22st International Conference on Secondary Ion Mass Spectrometry (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 T. Nonomura, T. Seki, T. Aoki, J. Matsuo
2 . 発表標題 MeV-SIMS Measurement of Electrolyte of Lithium Ion Battery
3 . 学会等名 The 22st International Conference on Secondary Ion Mass Spectrometry (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 T. Matsuda, T. Seki, T. Aoki, J. Matsuo
2 . 発表標題 Enhancement of ionization probability of Polymers with cation deposition method
3 . 学会等名 The 22st International Conference on Secondary Ion Mass Spectrometry (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 7. R. Oki, N. Sano, T. Seki, T. Aoki, J. Matsuo
2 . 発表標題 Angular Distribution of Neutral Species from Rhodamine 6G Sputtered with Cluster Ion Bombardment
3 . 学会等名 The 22st International Conference on Secondary Ion Mass Spectrometry (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 H. Gnaser, R. Oki, T. Aoki, T. Seki and J. Matsuo
2 . 発表標題 Optimized alkali-metal cationization in secondary ion mass spectrometry of polyethylene glycol oligomers with up to m/z 10000: Dependence on cation species and concentration
3 . 学会等名 The 22st International Conference on Secondary Ion Mass Spectrometry (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 M. Fujii, Y. Ishii, E. Hasegawa, R. Shishido and J. Matsuo
2 . 発表標題 Study on ionization process and quantitative analysis of organic molecules with cluster ion beam irradiation
3 . 学会等名 The 22st International Conference on Secondary Ion Mass Spectrometry (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 N. Sano, R. Oki and J. Matsuo
2 . 発表標題 To be fragmented or not to be, that is the question in organic sputtering
3 . 学会等名 The 22st International Conference on Secondary Ion Mass Spectrometry (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 T. Matsuda, T. Seki, T. Aoki, J. Matsuo
2 . 発表標題 Generation of massive cluster ions with electrospray ion source
3 . 学会等名 The 22st International Conference on Secondary Ion Mass Spectrometry (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 Y. Ishii, R. Shishido, J. Matsuo and M. Fujii
2 . 発表標題 Effects of organic acid on polymer ionization process with various cluster ion beam irradiation
3 . 学会等名 The 22st International Conference on Secondary Ion Mass Spectrometry (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 N. Sano, T. Hashimoto and J. Matsuo
2 . 発表標題 Ionisation behaviours of high affinity molecules on the silk fibroin substrate using Ar GCIB
3 . 学会等名 The 22st International Conference on Secondary Ion Mass Spectrometry (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1. 発表者名 J. Matsuo, S. Toshio, A. Takaaki
2. 発表標題 OBSERVATION OF LIQUID MOLECULES WITH AMBIENT SIMS USING SWIFT HEAVY IONS
3. 学会等名 The 24th International Conference on Ion Beam Analysis (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 J. Matsuo
2. 発表標題 Sputtering of biomaterials with large cluster ion beams
3. 学会等名 The 15th International Symposium on Sputtering & Plasma Processes (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 野々村知也, 瀬木 利夫, 青木 学聡, 松尾 二郎
2. 発表標題 リチウムイオン電池電解質から放出される二次イオンの大気圧下での測定
3. 学会等名 フォーラム21「イオンビームを用いた物理とその応用」研究会(第25回)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 松田大輝, 瀬木利夫, 青木学聡, 松尾二郎
2. 発表標題 エレクトロスプレーイオン源を用いた巨大クラスターイオンの生成
3. 学会等名 第20回QSEC公開シンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 平田健太郎, 瀬木利夫, 青木学聡, 松尾二郎
2. 発表標題 高エネルギークラスターイオン源を用いたSIMS測定
3. 学会等名 第20回QSEC公開シンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 瀬木 利夫, 荘所 正, 小池国彦, 青木 学聡, 松尾 二郎
2. 発表標題 反応性ガスクラスターインジェクションによる高アスペクト比エッチングに向けた研究
3. 学会等名 The 80th JSAP Spring Meeting
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 松田大輝, 瀬木 利夫, 青木 学聡, 松尾 二郎
2. 発表標題 エレクトロスプレーイオン源を用いた巨大クラスターイオンの生成
3. 学会等名 The 80th JSAP Spring Meeting
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 野々村知也, 瀬木 利夫, 青木 学聡, 松尾 二郎
2. 発表標題 リチウムイオン電池の電解質の大気圧 MeV-SIMS測定
3. 学会等名 The 80th JSAP Spring Meeting
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 瀬木利夫
2. 発表標題 大気圧MeV-SIMSの開発と固液界面分析
3. 学会等名 第53回表面分析研究会(招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 T. Matsuda, T. Seki, T. Aoki, J. Matsuo
2. 発表標題 Improvement in the Detection Sensitivity of Secondary Ions by Na Absorption with the Mist Deposition Method on a PEG Surface
3. 学会等名 The Scientific International Symposium on SIMS and Related Techniques Based on Ion-Solid Interactions(国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 S. Yamada, T. Seki, T. Aoki, J. Matsuo
2. 発表標題 High-Speed SIMS Imaging Using a High Brightness Cluster Ion Source
3. 学会等名 The Scientific International Symposium on SIMS and Related Techniques Based on Ion-Solid Interactions(国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 J. Matsuo, L. Houssiau, H. Gnaser, T. Satoh, M. Fujii, T. Seki, T. Aoki
2. 発表標題 Secondary Molecular Ion Emission of Polymers with Various Molecular Weights under Large Cluster Ion Bombardment: Enhancement with the Cationization Technique
3. 学会等名 The Scientific International Symposium on SIMS and Related Techniques Based on Ion-Solid Interactions(国際学会)
4. 発表年 2018年

1 . 発表者名 J. Matsuo, T. Seki, T. Aoki
2 . 発表標題 Adsorption of Liquids Measured with MeV-SIMS in Ambient
3 . 学会等名 16th International Conference on Nuclear Microprobe Technology and Applications (国際学会)
4 . 発表年 2018年

1 . 発表者名 D. Muller, K. Molhave, S. Chikara, J. Matsuo, M. Willinger, A. Belianinov, H. Plank
2 . 発表標題 Low-energy Electron and Particle Microscopies in Liquid, Gaseous, and Frozen Conditions
3 . 学会等名 Microscopy & MicroAnalysis 2018 Meeting (招待講演) (国際学会)
4 . 発表年 2018年

1 . 発表者名 T. Seki, K. Suzuki, T. Aoki, J. Matsuo
2 . 発表標題 SIMS Analysis of Liquid Materials in Low Vacuum with Large Cluster Ion Beam
3 . 学会等名 25th International Conference on Application of Accelerators in Research and Industry (国際学会)
4 . 発表年 2018年

1 . 発表者名 T. Seki
2 . 発表標題 Chemical Analysis under Ambient Conditions using MeV-Energy Heavy Ion
3 . 学会等名 25th International Conference on Application of Accelerators in Research and Industry (国際学会)
4 . 発表年 2018年

1. 発表者名 Yamada, J. Matsuo
2. 発表標題 Cluster Ion Beams: History and Technology
3. 学会等名 22nd International Conference on Ion Implantation Technology (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 瀬木 利夫, 石井 健太, 青木 学聡, 松尾 二郎
2. 発表標題 液体材料の大気圧MeV-SIMS測定
3. 学会等名 The 79th JSAP Autumn Meeting, 2018
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 青木 学聡, 瀬木 利夫, 松尾 二郎
2. 発表標題 画像分析技術のイメージングSIMS分析への応用
3. 学会等名 The 79th JSAP Autumn Meeting, 2018
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 松田 大輝, 松尾 二郎, 瀬木 利夫, 青木 学聡
2. 発表標題 ミスト法を用いたセシウム付加によるPEG表面の次イオン検出感度の向上
3. 学会等名 The 79th JSAP Autumn Meeting, 2018
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 T. Seki, H. Yamamoto, T. Kozawa, T. Shojo, K. Koike, T. Aoki, J. Matsuo
2. 発表標題 Fabrication of multilayer lever structure by double-angled etching with reactive gas cluster injection
3. 学会等名 40th International Symposium on Dry Process (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 松尾 二郎
2. 発表標題 大気圧SIMS法による固液界面の観察
3. 学会等名 2018年日本表面真空学会学術講演会 (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 T. Seki, T. Aoki, J. Matsuo
2. 発表標題 Ambient Secondary Ion Mass Analysis of Fatty Acids with MeV-energy Heavy Ion
3. 学会等名 The 19th Workshop on Surface and Interface Analysis by Ion Beam (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 T. Matsuda, T. Seki, T. Aoki, J. Matsuo
2. 発表標題 Improvement in Detection Sensitivity of Secondary Ions by Na Absorption with Mist Deposition Method on a PEG Surface
3. 学会等名 The 28th Annual Meeting of MRS-J (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 J. Matsuo, T. Seki, T. Aoki
2. 発表標題 Liquid Adsorption and Desorption measured with Ambient ?SIMS
3. 学会等名 Symposium on Surface and Nano Science 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 瀬木 利夫
2. 発表標題 巨大ガスクラスタービームによる表面クリーニングと加工
3. 学会等名 シリコンテクノロジー分科会第216回研究集会(招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 青木 学聡
2. 発表標題 伝統的イオン衝突シミュレーションプログラムの改善手法の検討
3. 学会等名 The 66th JSAP Spring Meeting, 2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 松田 大輝, 瀬木 利夫, 青木 学聡, 松尾 二郎
2. 発表標題 ミストの付加によるポリマーのイメージング分解能の向上
3. 学会等名 The 66th JSAP Spring Meeting, 2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 山田 周平, 瀬木 利夫, 青木 学聡, 松尾 二郎
2. 発表標題 高分子のSIMS分析に向けたエレクトロスプレーイオン源の開発
3. 学会等名 The 66th JSAP Spring Meeting, 2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 瀬木 利夫, 山本 洋揮, 古澤 孝弘, 荘所 正, 小池国彦, 青木 学聡, 松尾 二郎
2. 発表標題 反応性ガスクラスタージェクションを用いた斜め2方向エッチングによる3D構造の作成(II)
3. 学会等名 The 66th JSAP Spring Meeting, 2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 瀬木 利夫
2. 発表標題 新しいプローブイオンを用いたSIMSによる有機材料分析
3. 学会等名 量子ビームによるナノ構造形成とその医療・バイオ応用技術」調査専門委員会 公開研究会(招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 石井 健太, 瀬木 利夫, 青木 学聡, 松尾 二郎
2. 発表標題 固液界面分析に向けたAmbient SIMS法の開発
3. 学会等名 The 65th JSAP Autumn Meeting, 2018
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Prutchayawoot Thopan, Rika Oki, Hubert Gnaser, Toshio Seki, Takaaki Aoki, Jiro Matsuo
2. 発表標題 Cationization Technique for Polyethylene glycol (PEG) with Argon Cluster Ion Beam connected with AccuToF Mass Analyzer
3. 学会等名 The 65th JSAP Autumn Meeting, 2018
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 松田 大輝 , 瀬木 利夫 , 青木 学聡 , 松尾 二郎
2. 発表標題 ミスト法を用いたナトリウム付加によるPEG表面の2次 イオン検出感度の向上
3. 学会等名 The 65th JSAP Autumn Meeting, 2018
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 山田 周平, 瀬木 利夫, 青木 学聡, 松尾 二郎
2. 発表標題 二次電子増倍管(CEM)を用いたビーム径測定システムの 開発
3. 学会等名 The 65th JSAP Autumn Meeting, 2018
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 瀬木 利夫, 山本 洋揮, 古澤 孝弘, 荘所 正, 小池 国彦, 青木 学聡, 松尾 二郎
2. 発表標題 反応性ガスクラスターインジェクションを用いた斜め2 方向エッチングによる3D構造の作成
3. 学会等名 The 65th JSAP Autumn Meeting, 2018
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 慶尾 直哉, 羽田 真毅, 西川 亘, 山下 善文, 林 靖彦, 横谷 尚睦, 松尾 二郎, 浅香 透, 鈴木 達也, 恩田 健, 西郷 将生, 阿部 伸行, 有馬 孝尚, 小沢 陽, 沖本 洋一, 腰原 伸也
2. 発表標題 EuBaCo205.38の光励起酸素輸送ダイナミクス
3. 学会等名 The 65th JSAP Autumn Meeting, 2018
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 松尾 二郎
2. 発表標題 SIMS技術の飛躍的發展を支える新技術： 新奇なイオンビーム開発から先端質量分析法まで
3. 学会等名 The 65th JSAP Autumn Meeting, 2018
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 T. Seki, K. Ishii, M. Kusakari, T. Aoki, J. Matsuo
2. 発表標題 Ambient Secondary Ion Mass Analysis with MeV-energy Heavy Ion
3. 学会等名 11th International Symposium on Atomic Level Characterizations for New Materials and Devices '17 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 T. Seki, H. Yamamoto, T. Kozawa, T. Shojo, K. Koike, T. Aoki and J. Matsuo
2. 発表標題 Fabrication of 3D structure by double-angled etching with reactive gas cluster injection
3. 学会等名 39th International Symposium on Dry Process (国際学会)
4. 発表年 2017年

1 . 発表者名 J. Matsuo, T. Seki, T. Aoki
2 . 発表標題 Characterization of Bio-Molecules with GCIBSIMS equipped with MS/MS Spectrometer Secondary Molecular Ion Emission of Polymers with Various Molecular Weights under Large Cluster Ion Bombardment: Enhancement with the Cationization Technique
3 . 学会等名 AVS 64th International Symposium & Exhibition 2017 (国際学会)
4 . 発表年 2017年

1 . 発表者名 J. Matsuo, L. Houssiau, H. Gnaser, T. Seki ¹ , T. Aoki
2 . 発表標題 Organic Material Analysis with a SIMS System with Q-TOF MS/MS Technique
3 . 学会等名 The 8th International Symposium on Surface Science (国際学会)
4 . 発表年 2017年

1 . 発表者名 T. Seki, K. Ishii, M. Kusakari, T. Aoki and J. Matsuo
2 . 発表標題 Ambient SIMS using MeV-Energy Heavy Ion
3 . 学会等名 The 23rd International Conference on Ion Beam Analysis (国際学会)
4 . 発表年 2017年

1 . 発表者名 J. Matsuo
2 . 発表標題 Ambient SIMS using swift heavy ions
3 . 学会等名 22nd International Workshop on Inelastic Ion-Surface Collisions (招待講演) (国際学会)
4 . 発表年 2017年

1. 発表者名 J. Matsuo, T. Seki, T. Aoki
2. 発表標題 Observation of Adsorption and Desorption of Water Molecules with Ambient SIMS
3. 学会等名 21st International Conference on Secondary Ion Mass Spectrometry (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 石井 健太, 瀬木 利夫, 青木 学聡, 松尾 二郎
2. 発表標題 パイプ型ノズルを用いた湿潤環境下SIMS測定
3. 学会等名 The 78th JSAP Autumn Meeting, 2017
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 松田 大輝, 瀬木 利夫, 青木 学聡, 松尾 二郎
2. 発表標題 PEG表面へのナトリウム付加による2次イオン検出感度向上
3. 学会等名 The 78th JSAP Autumn Meeting, 2017
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 瀬木 利夫, 荘所 正, 小池 国彦, 青木 学聡, 松尾 二郎
2. 発表標題 CIF3中性クラスターエッチング表面の凹凸構造
3. 学会等名 The 78th JSAP Autumn Meeting, 2017
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 慶尾 直哉, 村上 寛虎, 羽田 真毅, 西川 亘, 山下 善文, 林 靖彦, 横谷 尚睦, 松尾 二郎, 浅香 透, 鈴木 達也, 阿部 伸行, 有馬 孝尚, 小沢 陽, 沖本 洋一, 腰原 伸也
2. 発表標題 超高速時間分解電子線回折から見たEuBaCo205.38の構造ダイナミクス
3. 学会等名 The 78th JSAP Autumn Meeting, 2017
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 K. Ishii, T. Seki, T. Aoki and J. Matsuo
2. 発表標題 SIMS Measurement in Ambient and Humid Condition
3. 学会等名 The 15th International Conference on Advanced Materials (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 T. Seki, H. Yamamoto, T. Kozawa, T. Shojo, K. Koike, T. Aoki and J. Matsuo
2. 発表標題 Angled Etching by ClF ₃ /Ar Gas Cluster Injection
3. 学会等名 The 15th International Conference on Advanced Materials (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 松尾 二郎
2. 発表標題 クラスターSIMS法によるポリマー材料の評価
3. 学会等名 2017年真空・表面科学合同講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 J. Mastuo
2. 発表標題 Organic Material Analysis with a SIMS System Equipped with a High-Current Gas Cluster Ion Source and Q-TOF MS/MS
3. 学会等名 79th IUVSTA Workshop (国際学会)
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 笠井 秀明 外157名	4. 発行年 2019年
2. 出版社 (株)エヌ・ティー・エス	5. 総ページ数 1096
3. 書名 最新 実用真空技術総覧	

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	瀬木 利夫 (SEKI Toshio) (00402975)	京都大学・工学研究科・講師 (14301)	
研究分担者	青木 学聡 (AOKI Takaaki) (90402974)	京都大学・学術情報メディアセンター・准教授 (14301)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------