

科学研究費補助金（学術創成研究費）公表用資料  
〔事後評価用〕

平成16年度採択分

平成22年3月31日現在

研究課題名（和文）  
惑星探査用次世代超高感度極微量質量分析システムの開発  
研究課題名（英文）  
Development of Nobel Mass Spectrometer with  
Ultra-High Sensitivity and Ultra-Trace Sampling  
for Planetary Exploration

研究代表者 石原盛男（Ishihara Morio）  
大阪大学・大学院理学研究科・准教授



研究の概要：

多重周回飛行時間質量分析計と液体金属イオン銃を用いた収束イオンビーム装置及びフェムト秒レーザーによるポストイオン化を組み合わせた新奇的な超高感度極微量質量分析システムの開発を行った。その結果、従来より高質量分解能、高空間分解能でしかも高感度かつ元素間の感度差の少ない分析法を確立できた。

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理・工学基礎・応用物理学一般

キーワード：二次イオン質量分析、レーザーポストイオン化、惑星探査

1. 研究開始当初の背景

惑星科学における質量分析の有用性は最近ますます高まっている。例えば、太陽系起源の原点に迫るためには欧州宇宙機構が推進する彗星探査ミッションの成功が大きな鍵を握っている。我々はその搭載質量分析装置の設計者として招待され、プロトモデルを設計試作した。また、太陽系最古の痕跡をとどめる隕石から酸素同位体比のマイクロスケールの大きな変動を突き止め太陽系の起源論に新風を吹き込んだのも我々の質量分析による結果である。これらの例は、質量分析装置の高感度化・ナノスケールの高分解能化のような性能向上が今後さらに進むと、我々のルーツを探るサイエンスについて全く予期できなかった新しい発見が高い確率で期待され、それが我々の自然観・世界観を一新するかもしれないことを示唆している。

2. 研究の目的

本研究の目的は、今後の惑星科学探査ミッションにより地球に持ち帰られる宇宙試料の解析、および惑星探査搭載を目指した極微量試料用超高感度質量分析装置の基礎研究の創出と試作である。

本研究では、新しい発想の質量分析器を採用することにより、単原子（または分子）の識別検出という究極の検出感度・検出精度を有し、かつ原子層レベルの空間分析能を有する新しい質量分析システムを開発・確立する。

その装置により現在航行中の日本の惑星探査機による「はやぶさ」ミッション（小惑星サンプルリターンミッション）により世界で始めて地球に持ち帰られる小惑星物質試料に本研究成果を適用し小惑星表面に存在する未知の物質や現象の検出を試みる。

本研究で開発される分析技術は、次世代半導体デバイス開発とされる極表面層の形成深さ分布の評価技術として半導体産業界に直接貢献できるものである。

3. 研究の方法

本研究は新奇的な超高感度質量分析装置を開発するというものである。その独創的な点は、阪大グループの設計したイオン光学を用いた多重周回型飛行時間型質量分析計を中心に北大のイオン検出器・九大の非共鳴レーザー励起イオン源をシステム化することにより次世代型小型超高感度・極微量質量分析装置を開発し、ナノスケール宇宙微粒子の同位体分析法を確立し太陽系起源とアストロバイオロジーの研究を推進する。これらの基礎技術要素はそれぞれ各グループがユニークな発想により世界に先駆けて開発熟成してきたものである。

4. 研究の主な成果

1. 装置開発

まず新規に開発する超高感度極微量質量分析システムの構想決定を行った。

#### 〔 4 . 研究の主な成果 ( 続き ) 〕

( 1 ) 質量分析のポイントとなる多重周回飛行時間型質量分析計は実績のあるトロイダル電場を用いた分析部を採用し、またイオンビームの取り出し部は表面電荷法を用いた数値計算シミュレーションにより検討した。  
( 2 ) レーザー励起イオン化にはフェムト秒レーザー ( パワー密度  $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  ) を導入し、イオン化の基礎実験のための簡単な飛行時間分析とイオン発生領域が観測できる実験ベンチの設計製作も行った。



( 3 ) 1 次イオン照射系については Ga 液体金属イオン銃を用いた収束イオンビーム装置を採用し、質量分析計とレーザーを組み合わせることにより全く新しい分析システムとしてまとめた。

#### 2 . 装置性能評価

##### ( 1 ) 質量分析部

二次イオン質量分析法において世界ではじめて多重周回させることに成功し、質量分解能が自由に变化させることができることを実証した。多重周回型を採用した SIMS 装置は世界初であり、干渉・妨害イオンと目的のイオンを分離するのに非常に有利である。そのため、広い分析対象に応用可能な装置となった。また、1 次イオンを走査することにより、元素のマッピングを取得することに成功した。分解能は 4 0 nm であった。この値は現在のところ世界で最も高い値のひとつである。

##### ( 2 ) レーザーイオン化

希ガス試料 ( ヘリウム、アルゴン ) についてのイオン化の実験から  $1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  の領域で光の強度に対して発生するイオンが飽和することを観測した。また、種々の固体元素を用いて飽和の実験を行い、すべての元素で飽和を確認することができた。このような研究はほとんど類例がなく、全く新しい知見である。また、ポストイオン化により感度が 1 0 ~ 1 0 0 倍向上することが確認できた。さらに標準サンプルを用いた実験から、高パワー密度のレーザーで中性粒子をポストイオン化することで、元素による感度のばらつきを従来の 1 0 分の 1 まで抑えられることを確認した。

#### 5 . 得られた成果の世界・日本における位置づけとインパクト

本研究により世界ではじめて多重周回飛行時間型質量分析装置を二次イオン質量分析装置に適用できた。従来の飛行時間型装置では質量分解能を高くできなかったが、今回開発した装置では質量分解能を必要に応じて変えられるようになり、分析能力が格段に向上した。またフェムト秒レーザーによるポストイオン化により従来より検出感度が 1 桁以上向上するとともに、元素間の感度差も一桁小さくできることを世界ではじめて実証した。このポストイオン化は本研究により、その特性の評価がはじめて系統的に行われ、多光子吸収イオン化についての新しい知見を得ることができた。

本研究は表面の二次元分析機能と表面層の深さ分析機能を併せ持つ三次元同位体顕微鏡法として展開できる。たとえば、この革新的なナノスケール極微量定量分析技術により太陽系や生命の起源の新事実を発見したり、惑星科学の新しい学問領域を創成することを目指すことができるようになった。また、同分析技術は半導体をはじめとする産業界への展開をおおいに期待できる。

#### 6 . 主な発表論文

( 研究代表者は二重線、研究分担者は一重下線、連携研究者は点線 )

R. Mibuka , S. Hassaballa , K. Uchino , H. Yurimoto , R. Todokoro , K. Kumondaic , M. Ishihara Characteristics of post-ionization using a femto-second laser, *Appl.Surf. Sci* **255** (2008) 1595 1598

Sakamoto, N., Seto, Y., Itoh, S., Kuramoto, K., Fujino, K., Nagashima, K., Krot, A.N., and Yurimoto, H. (2007) Remnants of the early solar system water enriched in heavy oxygen isotopes. *Science*, **317**(5835), 231-233.

Morio Ishihara, Development of a High Performance TOF-SIMS System Using Multi-turn TOF mass analyzer";5th International Symposium of Atomic Level Characterizations for New Materials and Divices, p.109 (2005)

Nagashima, K., Krot, A. N. and Yurimoto, H. (2004) Stardust silicates from primitive meteorites. *Nature* **428**, 921-924.