

粒子線検出用二次元固体撮像素子
Solid-state imager for charged particles

坂本尚義

東京工業大学理学部

〒152 東京都目黒区大岡山 2-12-1

松本一哉

オリンパス光学工業(株) 応用研究部

〒399-04 長野県上伊那郡辰野町伊那富 6666

Received 16 January 1996, Accepted 9 March 1996

分析化学(Bunseki Kagaku) vol. 45, No. 6, 493-500 (1996)

Solid-state imager for charged particles

Hisayoshi YURIMOTO* and Kazuya MATSUMOTO*

*Laboratory for Planetary Sciences, Department of Earth and Planetary Sciences, Tokyo Institute of Technology, Meguro, Tokyo 152 JAPAN

**Applied Research Department, Olympus Optical Co. Ltd., Tatsuno, Kamiina, Nagano 399-04 JAPAN

(Received 16 January 1996, Accepted 9 March 1996)

Charged particles such as ion and electrons with keV order kinetic energy are important for probes and signals for surface analyses. Many detection systems have been developed for measurement of two-dimensional distribution for the particles. However, capabilities of solid-state area detector are not sufficient for quantitative analysis for the charged particles, although solid-state imager such as charge coupled device has been great succeeded to photon detection for optical spectroscopy. This paper discussed performance and characteristics of a novel solid-state imager for charged particles. This device is useful to charged particle detection such as mass spectrometry and electron microscopy.

Keywords: Solid-state imager, charged particle, ion, electron, detector

要旨

数 keV オーダーのエネルギーを持つイオン粒子や電子線は、固体の表面分析や表面改質のためのプローブや信号として、よく用いられる粒子線である。そのため、これらの二次元分布を定量的に測定するためにいろいろな検出システムが考案されてきた。しかしながら、粒子線に対する検出器として、光学分野で画期的に成長した電荷結合素子 CCD のような固体撮像素子の開発・実用化は遅れている。我々のグループでは、粒子線の積分型二次元検出器として、電極を積層した増幅型固体撮像素子 AMI を開発中である。今回は、積層型 AMI の構造と動作原理および keV オーダーのエネルギーをもつイオン粒子を照射した場合の特性を報告する。

1. 緒言

数 keV オーダーのエネルギーを持つイオン粒子や電子線は、固体の表面分析や表面改質のためのプローブや信号として、よく用いられる粒子線である。そのため、これらの二次元分布を定量的に測定するためにいろいろな検出システムが考案されてきた。

最も、汎用的に用いられているシステムは、マイクロチャンネルプレート (MCP)、蛍光板、デジタルカメラ(受光素子として主に電荷結合素子 CCD を用いている)を組み合わせたシステムである¹。このシステムでは粒子線は MCP により一旦電子に変換された後、蛍光板により光子に変換される。CCD カメラはこの光量に比例したデジタル信号を出力する。このシステムは非常に高感度なシステムであるが、蛍光材料の電子/光変換の非線形性とその線形領域のダイナミックレンジの狭さが定量的な測定のネックになっている。また、蛍光面の電子衝撃劣化による発光効率の面的非一様性の発生も問題点の一つである。このような問題点を回避するため、蛍光板を位置敏感検出器 (Resistive anode encoder や Position sensitive detector) に置き換えたシステムも広く用いられている²。このシステムは本質的にパルスカウントシステムであるため、粒子線に対するリアルタイム線形応答性に優れ、単一粒子を検出する感度を有している。しかしながら、位置検出用演算回路の応答速度に起因する不感時間が律速となるため、検出面積当たりの計数率が制限されている。現在の回路技術における最大計数率は1秒あたり約 10^4 粒子数である。そのため、位置敏感検出器内の一点に高密度

の粒子線が入射した場合、その影響は測定面積全体におよぶ。また、同一測定条件で、高計数率と低計数率の粒子線の同時検出が困難である。

我々のグループでは、二次イオン質量分析法を応用した同位体顕微鏡³⁴を用いて、宇宙物質の分析をしている。当面の目的は太陽系形成過程を生々しく描き出すことである。そのためには同位体比分析が有効な手段である。天然における同位体比の存在度は 10^6 を越えるレンジに分布しており、その変動は%オーダー未満である。したがって、天然同位体比を正確に分析するためには、 10^6 桁を越える範囲のイオン粒子の二次元分布を同時同一の条件で測定することが必要不可欠である。また、精度よく二次元分布を決定するためには、信号の統計的変動を小さくする必要があり、計数を蓄積できる積分型検出器の方が都合がよい。粒子線ではなく、光に対して同様の要請が、天文学の分野にあり、そこでは CCD と呼ばれる固体撮像素子の発達により達成されつつあることは記憶に新しい。我々は、光の CCD に対応する粒子線の積分型二次元検出器として、半導体上に電極を積層した増幅型固体撮像素子 (Stacked Amplified MOS Intelligent Imager, Stacked-AMI) を開発中である⁵⁶⁷。今回は、積層型 AMI の構造と動作原理および keV オーダーのエネルギーをもつイオン粒子を照射した場合の特性を報告する。

2. AMI のピクセルの構造と動作原理

AMI は元々は光学用の高感度撮像素子として開発されてきた。本研究で開発した積層型 AMI は光学用 AMI⁸をベースにして粒子線用に改造したも

のである．図1に積層型AMIの1ピクセルの等価回路図を示す．一つのピクセルは3つのトランジスタ(読みだし M_{RD} ・リセット M_{RS} ・行選択スイッチ M_Y)とピクセルキャパシタ C_{PIX} からなる．その1ピクセルの断面図を図2に示す．ただし，行選択スイッチ M_Y は図2中には示されていない．ピクセルユニットの上部は4層のAl電極からなる積層構造により覆われている．最上部の電極をピクセル電極と呼び，ピクセル電極は下部のAl層によりリセットトランジスタ M_{RS} の n^+ ソースと読みだしトランジスタ M_{RD} の多結晶ゲート電極にオーミック接合している．第1Al層と第2Al層の役割はAMIを撮像素子として動作させるための電気配線の役割をしている．これに対し，第3Al層とピクセル電極(第4Al層)の役割は粒子線の入射とそれによる損傷から素子本体を守ることと表面形状を一様にするこである．シリコン結晶からピクセル電極までの厚さは約 $4.8\mu\text{m}$ である．ピクセルとピクセル電極のサイズは，それぞれ， $17.0(\text{H}) \times 13.5\mu\text{m}^2$ ， $15.0 \times 11.5\mu\text{m}^2$ である．したがって，粒子線に対する素子の開口率は75%である．

粒子線はピクセル電極に直接入射する．ピクセル電極に衝突した粒子線と電極表面における相互作用の結果，電極表面から二次電子や二次イオン等の荷電粒子が放出される．また一部の衝突粒子は電極内部に打ち込まれる．これらの粒子-固体表面間の相互作用により，ピクセル電極は電氣的に帯電する．この帯電の程度は入射粒子量に比例し，そのキャリアがピクセルキャパシタ C_{PIX} に蓄積されていく．したがって，微弱な粒子線からの信号も

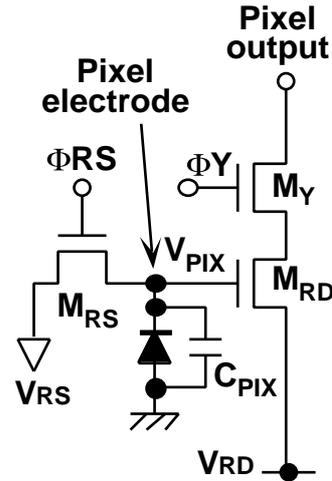


Fig. 1. A circuit configuration of a pixel of the stacked AMI.

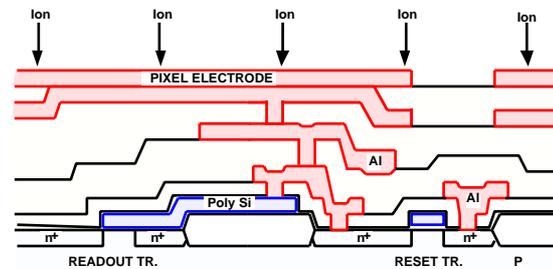


Fig. 2. Schematic cross section of a pixel of the stacked AMI. The pixel capacitor consists of a gate electrode at the readout transistor and p-n junction at a source of the reset transistor.

時間積分することにより，読み出し可能な電荷量まで蓄積できる．このピクセル構造の特徴は粒子線照射部と電荷蓄積部および信号読み出し部が空間的に分離していることである．これにより $\mu\text{V-keV}$ オーダーのエネルギーをもつ荷電粒子のように固体表面における相互作用の深さが表面から 10nm 以下のような浅い場合にも，相互作用の結果を効率よくキャパシタへと転送できる．また，粒子衝撃に伴う素子の損傷と特性変化を最小限にできる．

AMI の動作原理は次のようである . まず , ピクセル電極電圧 V_{PIX} をリセットトランジスタ M_{RS} を介して初期値 V_{RS} にリセットし , 粒子線の照射を開始する . ピクセル電極に入射した粒子線による信号はピクセルキャパシタ C_{PIX} に蓄積されていく . この作用によるピクセル電極 V_{PIX} の V_{RS} からの変動分は , 読み出しトランジスタ M_{RD} の出力インピーダンスをモジュレートする . したがって , 入射粒子量は V_{PIX} の V_{RS} からの電圧シフトとして測定できる . 粒子線の照射期間終了後 , 読み出しトランジスタの M_{RD} のゲートに印加されている C_{PIX} に蓄積された信号電荷は , 行選択スイッチ M_Y を介して , その電位に応じて増幅された電流として読み出される . 読み出しトランジスタ M_{RD} の入力インピーダンスが極めて高いため , C_{PIX} に蓄積された信号電荷は破壊されず , 次のリセット動作まで , この信号を複数回 , 非破壊読み出しできる . また , 読み出しトランジスタ M_{RD} のゲート電位はリセット電位から正方向へ変化しても , 負方向へ変化しても変調極性が逆になるだけで同様な出力特性が得られるため , AMI は入射粒子線の極性や入射条件に自由度が大きい .

3. 撮像素子の構成

積層型 AMI 撮像素子の基本構成を図 3 に示す . 本素子はピクセル配列 , 垂直シフトレジスタ , 水平シフトレジスタ , 水平選択スイッチ M_X からなる . 垂直シフトレジスタは行選択パルス Φ_{Yj} を発生し , パルスはバスラインを介して , 水平走査期間の間 , 行選択スイッチ M_Y を on 状態に保つ . 水平シフトレジスタは列選択パルス Φ_{Xi} を発生

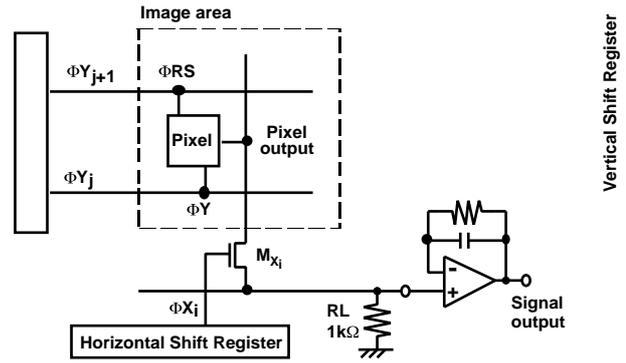


Fig. 3. A circuit configuration of the stacked AMI.

し , 水平走査期間中に列をスキャンする . したがって , 読み出しは X-Y アドレス型であり , 素子は像情報を逐次的に出力する . ピクセル中のリセットトランジスタ M_{RS} のコントロールラインは次に読み出す行のバスラインに連結されているため , ピクセル電極は , 読み出し動作が終了した後 , 次の水平走査期間の間 , リセット電位 V_{RS} に保たれる . AMI からの出力電流は素子外部にとりつけられた $1k$ の負荷抵抗により電圧変換された後 , 増幅回路を介して増幅後 , A/D 変換され , コンピュータに記録される . 現在使用している A/D 変換器は 16 ビットの分解能をもち , 読み出し周波数 23.4 kHz で駆動している . 使用した撮像素子のピクセル配列(受光面)は 8.7 (H) x 6.6 (V) mm^2 の面積をもち , この中に 510 (H) x 490 (V) のピクセル数をもつ . また , 本素子は , インターレース回路を内蔵しているため , 1 フレームは 2 つのフィールドからなる . したがって 1 フィールドの読み出し時間は , 5.3 秒である .

4. 暗電流特性

Vertical Shift Register

積層型 AMI における暗電流は, CCD の場合と同様に, 粒子線の入力がないときに素子内部で発生する信号のことである. 暗電流のうち大部分は熱により励起される. この暗時に素子内に蓄積する電荷を抑制することは, 長時間の粒子線の露出が必要な場合に, 特に重要となる. もしも暗電流が十分抑制できなければ, 長時間露出時に発生する暗電荷によるショットノイズは見かけ上ノイズのバックグラウンドをあげ, ついには素子本来の感度とダイナミックレンジをせばめてしまう. 一般に, 固体撮像素子における暗電流は, 大きくわけて, (1) 空乏層中および Si-SiO₂ 界面におけるホール電子対の生成, (2) 生成したキャリアの中性領域における拡散, の 2 つの原因により律速される. 前者の活性化エネルギーの大きさは, Si のバンドギャップを E_g とすると, $E_g/2$ であり, 一方, 後者は E_g である.

ピクセルあたり 1 秒間に発生した電荷から求めた暗電流を室温から -20°C までの温度範囲で測定した結果を図 4 に示す. 暗電流は温度の逆数に対して指数関数的に減少している. その温度依存性の活性化エネルギーは 0.875 eV である. このことから, 積層型 AMI における暗電流発生は, この温度範囲において, 約 40% がホール電子対生成の寄与であり, 約 60% が拡散の寄与であることがわかる. この関係を低温側に外挿できるならば, 素子が -100°C に冷却されているとき, 暗電荷により素子内に蓄積する電子は約 2 時間に 1 個ということになる. したがって 積層型 AMI を冷却して使用することにより, 測定時の暗電流の影響を除去可能である.

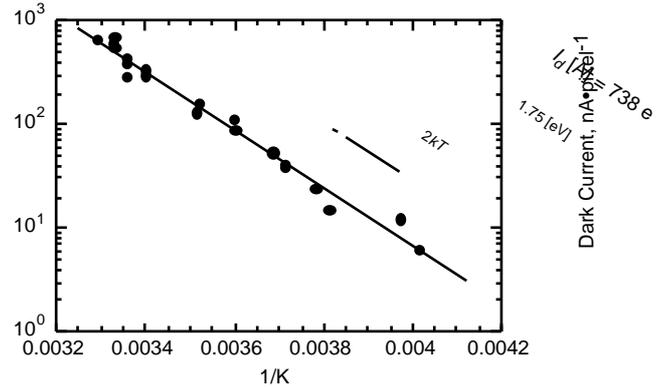


Fig. 4. Dark current characteristics of the stacked AMI.

5. イオンに対する応答性

積層型 AMI のイオンに対する応答性を二次イオン質量分析計 Cameca IMS-3F を用い実験した. 質量分析計に装着した試料から発生する正の二次イオン (エネルギー 4.5 keV) を積層型 AMI 受光面の中央領域にできるだけ均一に照射した. 照射電流は法拉デーカップおよび二次電子増倍管を用いて AMI への照射時間の前後でモニターした. その実験システムを図 5 に示す. AMI の駆動条件は次の通りである: 基板電圧 = -1V, バイアス電圧 = 7V, 読み出し・リセット電圧 = 2.5V, 冷却温度 = -127°C, 真空度 = 1 μ Pa.

ピクセルあたりの照射イオン数と AMI からの出力との関係を Al⁺イオンに対して測定した例を図 6 に示す. 積層型 AMI のオペレーションレンジは 4 桁以上であり, その範囲でほぼ完全な線形応答をしていることがわかる. ピクセルの飽和信号レベルは 160 μ A であり, 1×10^5 個のイオンが入射したときに対応する. この関係は Al⁺イオンが 1 個入射すると 1.6nA 電流が増加

することを意味する。飽和電流 $160\mu\text{A}$ は、読み出しトランジスタ M_{RD} のゲート電圧が 5.0V のときのソース電流に対応している。つまり、 1×10^5 個のイオンの1ピクセルへの入射がピクセルキャパシタ C_{PIX} における 2.5V の浮遊電圧のシフトを引き起こす。積層型 AMI のピクセルキャパシタの電気容量は 15fF であるので、イオン照射に起因する電荷発生 of 収率は $2.5\text{ electrons}/\text{Al}^+$ である。この値は、アルミニウム表面に 2.5keV の酸素イオンを照射した場合の二次電子収率値 $2.5\text{ electrons}/\text{O}_2^+$ と調和的である。このことから、積層型 AMI における粒子線検出機構は、固体表面と粒子線の相互作用、特に、二次電子の発生が重要であることが示唆される。同様な関係は Si^+ イオンの照射に対しても成り立つことが確かめられている。

次に、積層型 AMI のノイズ成分を解析する。積層型 AMI の主要なノイズ成分は固定パターンノイズ(FPN)である。暗時における FPN は飽和信号レベルに対して値で表すと $1.1\%(\pm)$ であった。この暗時の FPN は入射するイオン強度に依存しない。したがって、暗時のブランク画像をメモリー上に記憶させておき、撮像画像の各ピクセルから暗時画像を減算処理をすることにより除去可能である。暗時の FPN を減算処理した後のピクセル間のノイズ成分とピクセルあたりの入射 Al^+ イオン数との関係を図 6 に示す。入射イオン数が 2×10^2 個より少ないとき、減算処理後のノイズは入射イオン数に依存しない。つまり、この部分は読み出し回路のノイズが卓越する領域である。読み出しノイズは $10\text{nA}(\pm)$ であり、ピクセルあたりのイオン数に

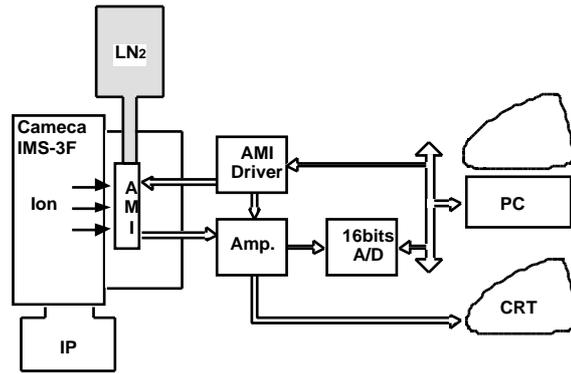


Fig. 5. Block diagram of an ion detection system for the secondary ion mass spectrometer. LN2, IP and PC denote a liquid nitrogen dewar, an ion pump, and a personal computer, respectively.

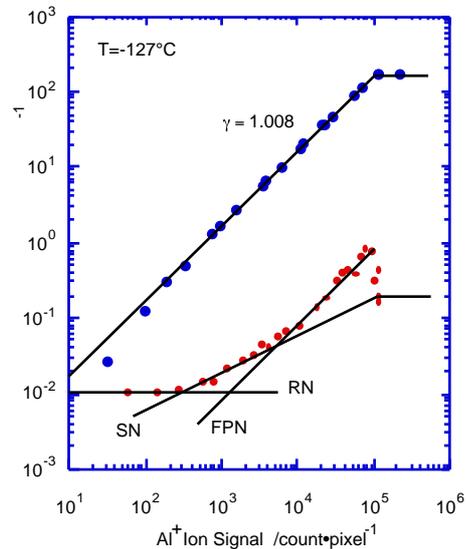


Fig. 6. Ion transfer and total noise characteristics of the AMI's pixel. 87000 pixels were irradiated by $4.5\text{keV } ^{27}\text{Al}^+$ secondary ions. RN, SN, and FPN denote readout noise, ion shot noise, and fixed pattern noise, respectively.

換算すると 10 個に相当する。入射イオン数が増加するにつれ、ノイズは $1/2$ の傾きをもつようになる。これはピクセルキャパシタ中に蓄積された正電荷量のピクセル間の変動を示す

もので, 入射イオン数の統計誤差に相当する. これをショットノイズと呼ぶ. さらに入射イオン数が増加すると, ノイズの増加量は入射イオン数に比例するようになる. これは各ピクセルの感度が一様ではないことに起因する. つまり, 明時の FPN である. 明時 FPN の原因としてはピクセル間のピクセル電極のサイズやキャパシタ容量のばらつき等が考えられるが, 特定はできていない. しかしながら, 明時 FPN は, 各ピクセルの感度パレットをメモリーに記憶させておき, 除算処理をすることにより, 暗時 FPN のように除去可能であると考えている. 積層型 AMI のダイナミックレンジは, 飽和電流と読み出しノイズとの比として定義でき, 1.1×10^4 を達成している.

元素間における積層型 AMI の相対感度特性を図 7 に示す. 相対感度は $^{28}\text{Si}^+$ に対する値としてプロットしている. 相対感度は質量数の大きい元素ほど感度が低下する傾向にある. しかしながら, その感度低下は小さく, 最大 2 倍の感度差である. 元素の化学的性質による差はあまり顕著ではない. このほぼ均一な感度特性は, AMI を質量分析などの検出器として応用する場合に有用である.

積層型 AMI により得られた 4.5 keV のエネルギーをもつイオンの撮像例を図 8 と図 9 に示す. 図 8 は Al 基板の上に載せられた Cu グリッド試料の投影イオンイメージである. 質量分析計を ^{27}Al に設定しているため, 基板の Al が明るく輝き, グリッドは陰としてあらわれている. ピクセルあたりの平均入射イオン数は毎秒 3400 個であり, 5 秒間露出している. 図 9 は質量分析計の質量分散面に積層型 AMI をおき,

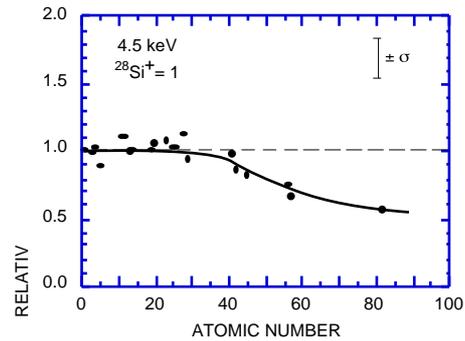


Fig. 7. Relative ion sensitivity toward 4.5 keV ions normalized to the $^{28}\text{Si}^+$ signal.

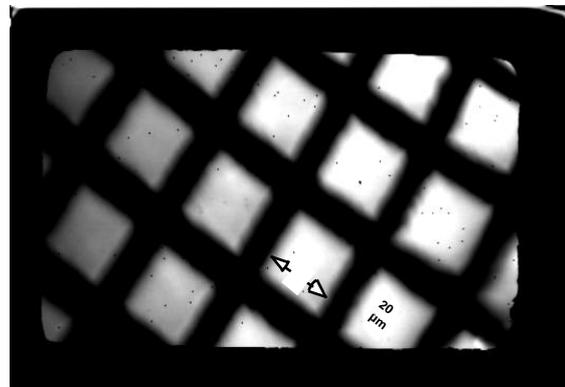


Fig. 8. Reproduced 4.5 keV Al^+ ion image of a Cu grid mounted on an Al substrate. The signal integration time and average Al secondary ions per pixel were 5 s and 10^4 counts/pixel, respectively.

金属チタンから発生する ^{49}Ti のスリット像を撮像した例である. ^{49}Ti のスリット像の隣に, 分子イオン TiH のスリット像が観察できる. その右図はイメージ中に示した直線に沿ったピクセル出力の変化とスリット像撮像直後に測定した質量スペクトルとの比較である. 質量スペクトルはマグネットを走査し二次電子増倍管を用いて検出した. 両者の強度が完全に対応していることは, 積層型 AMI の出力が線形的であることを証明する. 図から明らかなように, AMI を用いた場合,

その二次元検出能力により質量分散面のスリットが不要となり、質量分析計のイオン光学収差のみがスペクトルのシャープさを決定する。しかしながら、従来の方法により得られる質量スペクトルは質量分析面に位置しているスリットを通るイオン全体を計測しているため、光学系の収差に加えイオン源部のスリットと質量分散面スリットとの間の調整不良がスペクトルの形状に繰り込まれる。したがって、光学系の収差が同じ時、AMIを用いたスペクトル形状の方がよりシャープとある。

6. 電子に対する応答性

電子に対する積層型 AMI の応答性は図 10 のような組み合わせで検討した。図をみてすぐに了解できるように、このシステムは電子線を測定するだけの目的で構成されたものではない。前節で述べたように、現状の積層型 AMI では、読み出しノイズのため 1 個の二次イオンを読み出すことができなかった。本システムでは、AMI 素子にイオンが入る前にマイクロチャンネルプレート (MCP) による増幅機能を導入することにより、1 個のイオンからの信号の読み出しを試みた。MCP はイオンを多数の電子に変換するので、積層型 AMI は電子を検出していることになる。

使用した積層型 AMI は、イオン検出に用いたものと同様である。AMI 表面から 2mm はなして、MCP (浜松ホトニクス F1551-01) を装着した。本システムに供給する電圧は図の通りである。AMI の駆動条件はイオン検出の場合と等しい。AMI 直上のグリッド電極には 15V の電圧を印加し、電子衝

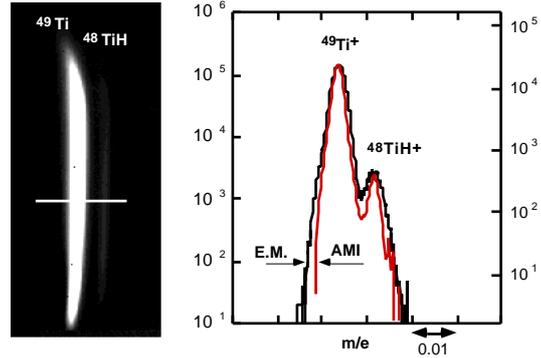


Fig. 9. Slit image on mass dispersion plane and the mass spectrum of $^{49}\text{Ti}^+$ secondary ion from Ti metal under high mass resolution mode.

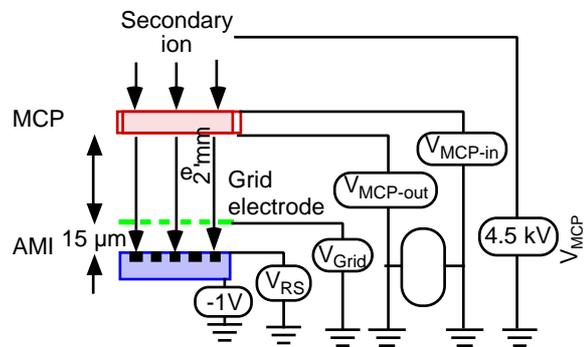


Fig. 10. Schematic diagram of AMI device combined with a micro channel plate (MCP) and the power supply arrangement used for operating the system.

撃により発生する二次電子を捕獲した。MCP の出力側の電位 $V_{\text{MCP-out}}$ は -100V に設定したので、AMI に入射する電子のエネルギーは 100eV である。

図 11 に、MCP の両側の電極間の電位差 V_{MCP} を変化させたときの AMI 出力を MCP に入射する 4.5keV の Si^+ イオン数の関数としてプロットしたものを示す。1 個のイオンに対する MCP の増幅率を正確に見積もることができないため、各場合において何個の電子が 1 ピクセルあたりに入射しているかは不明である。しかし、電極間の電位差が一定であるとき、ピクセルに入

射する電子数は入射イオン数に比例していると考えられる. 図 11 では MCP に対する入射イオン数と積層型 AMI からの出力が比例していることを示している. したがって, 積層型 AMI は電子線に対しても線形応答をすることがわかる. 入射イオン数が一定の時, V_{MCP} を大きくすると電子変換の増幅率は大きくなるので, AMI からの出力は大きくなる. したがって, V_{MCP} を調整することによりイオンに対する AMI の感度を高くできる. この関係を図 12 に示す. 1 個の Si イオンが MCP に入射したときの積層型 AMI からの出力, つまり, イオンに対する感度は V_{MCP} に伴い指数関数的に増加する. 積層型 AMI に直接イオンを入射した場合のイオン 1 個あたりの感度は, AMI+MCP システムの $V_{MCP} = 400V$ の時の条件と等しい. V_{MCP} が 500V より大きいとき, イオン 1 個に対応する AMI からの出力は積層型 AMI 自身の読み出しノイズを越える. すなわち, AMI+MCP システムは, この条件の時, イオンを 1 個から読み出すことに成功する. しかしながら, AMI のピクセルキャパシタの電気容量は一定値であるため, 飽和入射イオン数が低くなることに注意しなければならない. 最適の条件 ($V_{MCP} = 600V$) のとき, AMI+MCP システムはピクセルあたり 4 桁のダイナミックレンジをもち, シングルイオン検出を可能にする.

7. 将来への展望

積層型 AMI を開発したことにより, エネルギー領域 eV-keV における粒子線に対して, 初めて実用的な固体撮像素子を開発できた. また, MCP と組

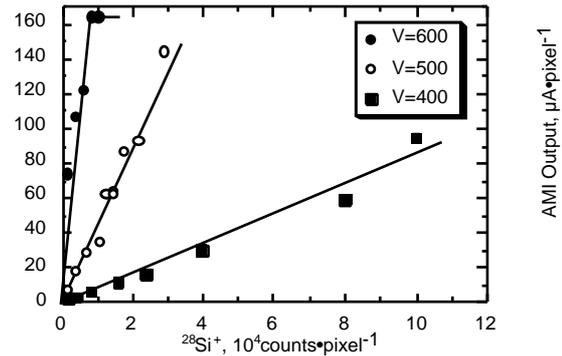


Fig. 11. Output signal current of a pixel vs. Si ion irradiation.

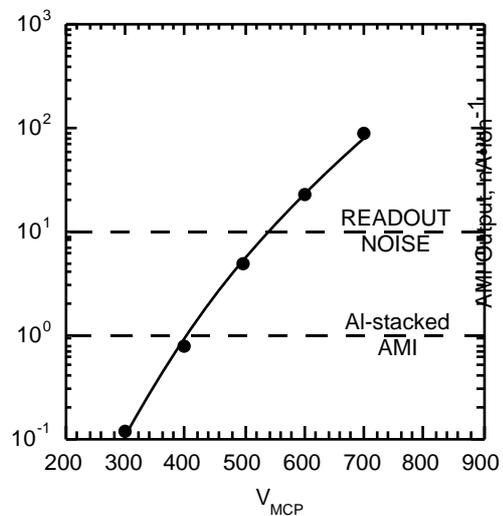


Fig. 12. Out put signal current of a pixel per single Si ion irradiation as a function of MCP voltage.

み合わせることでイオン 1 個からの読み出しも可能となった. これらの特性は, 質量分析法をはじめとする種々の分析法に対し, 適用可能な新しい二次元検出法を提供することを意味する. しかしながら, もし, 積層型 AMI 単体だけでイオン 1 個から読み出しできるとすれば, ピクセルあたりのダイナミックレンジが 5 桁におよぶようになり, 一層魅力的な検出器となる. この場合, AMI は受光面に 25 万個のピクセル配列を現在もってい

るので,AMI 全面のイオン粒子蓄積個数は 10^{11} におよぶ。また,積分型検出器であるので,パルス型検出器のような不感時間は原理的に生じない。このような広いダイナミックレンジをもつ粒子線二次元検出装置は固体撮像素子以外,現在のところ考えられない。このような素子を実現するためには読み出しノイズを除去することが必要不可欠である。読み出しノイズ除去についての対策を次に論じる。

積層型 AMI の読み出しノイズのうち最大の要因は,リセット時に発生するノイズ(リセットノイズ)である。このリセットノイズを除去するために,AMI の非破壊読み出し機能が有効であろう。リセットノイズはリセット操作の度にピクセル電極のリセット電位を変動させる。もしリセット操作のすぐ後でリセットレベルを非破壊に読み出すことができれば,ピクセルごとのリセットレベルの変動を固定パターンノイズの情報として取り込

むことが可能となる。したがって,リセットノイズは FPN 減算処理のプロセスで除去できる。また,非破壊読み出しは信号の蓄積後も有効である。非破壊読み出しによりピクセル中の信号強度を複数回読み出すことが可能となる。これにより,統計的に読み出した信号を平均化することができる。これにより,読み出しノイズをイオンショットノイズまで除去することが可能であると考えている。

謝辞

本研究は,オリンパス光学工業株式会社の中村力氏,宮田憲治氏,東京テクノロジーの小坂光二氏たちとの共同研究である。また,両社および筑波大学,東京工業大学のスタッフの方々には多大なるご支援をいただいた。ここに記して感謝したい。本研究の一部は文部省科学研究費によりサポートされた。

文 献

- ¹ Mantus, D.S., Turner, L.K., Ling, Y.C., Morrison, G.H.: "Secondary Ion Mass Spectrometry SIMS VII", Edited by A. Benninghoven et al., p. 921 (1990), (J. Wiley & Sons, New York).
- ² Odom, R.W., Furman, B.K., Evans, Jr., C.A., Bryson, C.E., Peterson, W.A., Kelly, M.A., Wayne, D.H.: *Anal. Chem.*, **55**, 574 (1983).
- ³ 坂本尚義: *地質ニュース* 450, 59 (1992)。
- ⁴ Yurimoto, H., Nagasawa, H., Mori, Y. and Matsubaya, O.: *Earth Planet. Sci. Lett.* **128**, 47 (1994).
- ⁵ 坂本尚義, 小坂光二, 松本一哉, 宮田憲治, 中村力, 末野重穂: *Proc. 2nd Workshop Beam Eng. Advanc. Mater. Synthes. BEAMS 1991*, 253 (1991)。
- ⁶ Matsumoto, K., Yurimoto, H., Kosaka, K., Miyata, K., Nakamura, T., Sueno, S.: *IEEE Trans. Electr. Dev.* **40**, 82 (1993).
- ⁷ Yurimoto, H., Kosaka, K., Matsumoto, K., Nakamura, T.: *Secondary Ion Mass Spectrometry SIMS IX*, Wiley, 258 (1994).
- ⁸ Miyata, K., Matsuzawa, S., Ando, F., Taketoshi, K.: *J. Inst. Telev. Eng. Japan*, **14**, 33 (1990).
- ⁹ Yamaguchi, Y., Shimizu, R.: *Japan. J. Appl. Phys.*, **22**, L227 (1983).