

アラユルニウム・同位体顕微鏡 —SIMSによる定量イメージング—

込本 尚義¹⁾

1. はじめに

地球科学において、天然の物質を分析する直接の目的の一つは、その物質の成因を探るために、それが生成した環境条件を決定することである。物質の化学組成は、その生成条件を記録している重要な化石である。

たとえば、固溶体の合成実験をおこなったとき、もし固体が生成・成長する間に実験条件が変化したならば、それに伴い、固体中の化学組成がどう変化するかを予言できる。逆に、分析された一つの化学組成の変化から、どの実験条件が変化したのかを制約できる。しかしながら、それをユニークに決定することは困難である。なぜなら、その組成変化を起こす原因は一つとは限らないからである。ところが、元素は固有の化学的性質を持っている。したがって、性質の異なる元素の組成変化を組み合わせて分析できれば、どの実験条件はよく制御されていて、どれが不十分なのかを厳しく評価できるようになる。

天然物質を分析して、その生成環境を復元しようとする試みにも、この原理をあてはめることができる。つまり、天然物質も天然の実験室で行なわれた実験生成物であると考え、その物質中に「何の元素が」「どれほど」「いつ」「どのような分布で」存在している(いた)かということの詳細を分析することにより、それらを矛盾なく説明できる生成環境を復元するのである。

二次イオン質量分析法(SIMS)は、現在のところ、最も多数の元素を同時に敏感に定量可能な分析法である。たとえば、天然の火山ガラス中では、天然に安定に存在する元素のうち、やく半分の元素について同時定量が可能である(Yurimoto et al., 1989)。また、同位体の測定ができるので、物質が生成した時間と原料の起源を決定すべく、同位体比分析も可能である。そのうえ、SIMSはミクロンオーダーの局所分析も可能であるので、元素・同位体の分布について、情報を得ることができる。もし、この様な現在のSIMSの能力を保持したまま、二次

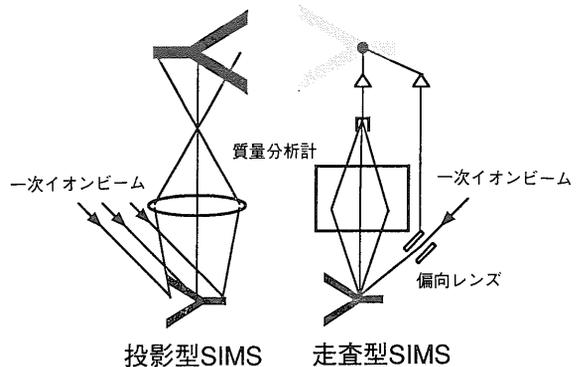
元・三次元の元素・同位体地図を作成することができれば、上記の原理に沿った生成環境復元のための理想的なツールとなり得る。

我々は、この様な指針の下、当面の目標として、光学顕微鏡の横方向分解能を有し、元素・同位体比の定量濃度地図を作成できる能力があるSIMSを開発中である。この様な能力を持つSIMSを、アラユルニウム・同位体顕微鏡(All-ium and Isotope Microscope; AIM)と名付けることにしよう。アラユルニウム・同位体顕微鏡は、イメージングSIMSとかイオン顕微鏡と呼ばれているカテゴリーの一部である。しかし、現在のイメージングSIMSは、明らかに、同位体比地図を作成できる能力に不足している。本論文ではイメージングSIMSの原理とその能力を紹介し、アラユルニウム・同位体顕微鏡の実現に向けての問題点と解決法を論じる。

2. SIMSによるイメージングの方法

現在、SIMSによるイメージング法として走査型(scanning mode)と投影型(direct-imaging mode)の二つのモードが考えられている(第1図)。

細く絞った一次イオンビームを試料に照射すると、そ



第1図 投影型SIMSと走査型SIMSによるイメージングの原理図。

1) 筑波大学地球科学系：〒305 茨城県つくば市天王台1-1-1

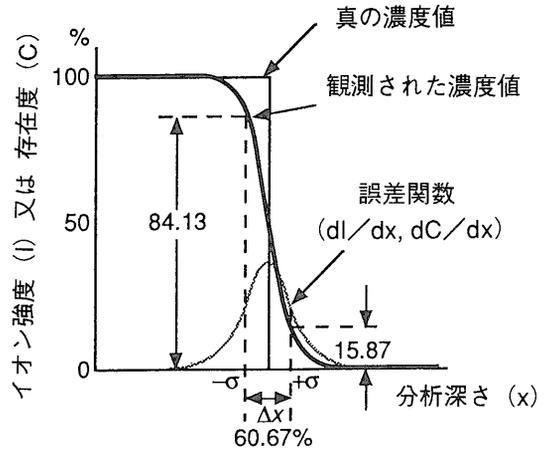
キーワード：二次イオン質量分析法, イオン検出器, 固体撮像素子, 同位体, イメージング

の照射部から二次イオンが放出する。この二次イオン全体の同位体組成は一次イオンが照射された領域の平均同位体組成に対応している。このような分析法をイオンマイクロプローブ (ion microprobe) 法という。この方法では、試料上の一点の同位体分析が可能である。そこで、偏向板を用いて一次イオンを試料上で二次元にスキャンする。その各スキャン位置で点分析を繰り返し、その位置情報と分析値を用いて同位体の濃度地図を作成できる。これが走査モードによるイメージングの原理である。スキャン間隔あるいはデータの読み取り間隔を一次イオン直径と等しくしたとき、横方向分解能は普通一次イオンの直径程度になる。この方法は走査型電子顕微鏡によるイメージングの原理と等しい。

それでは、一次イオン径内部の同位体濃度分布を測定することはできないだろうか？ 一つの解答はスティグマティックな設計をされた質量分析計を用いて、イオン像を結像させることである。光学顕微鏡が試料上の位置関係を保ったイメージをその光学系の像面に投影するように、スティグマティックな質量分析計では、試料から放出された二次イオンがその位置関係を保存したまま、イオン光学系の像面に投影される。このイオンイメージは質量分析計を通過しているため、ある質量を持つイオンだけで構成されている。このような SIMS を投影型 (direct-imaging) と呼び、Castaing と Slodzian (1962) によりはじめて実現された。このタイプの空間分解能は、一次イオン径とは無関係で、質量分析計のイオン光学系の性能により決定される。

3. 横方向分解能

SIMS によるイメージの横方向分解能は普通次のように定義される。第 2 図のような段階上に濃度に変化する物質を測定すると、測定された濃度の変化は、積分誤差関数で表現される曲線 (図の太線) になる。そこで、その誤差関数の標準偏差の 2 倍をとり、空間分解能を定義する。その幅は、二次イオン強度の最大値の 84% と 16% の間の間隔 (Δx) に等しい。こうして定義された横方向分解能は、独立した等しい濃度をもつ粒子が隣接するとき、それらが分離して見える最小距離を示すものである。したがって、一つの試料中に濃度が桁で異なる分布をもつ領域があり、その内部の濃度を定量しようとするとき、この定義により求められた横方向分解能を適用することは適当ではない。なぜなら、隣接する高濃度領域からの二次イオンの迷い込みにより濃度比 0.16 以下の低濃度領域がどの程度汚染されているかが定義されていないからである。しかし、一つの目安となることは明らかなの



第 2 図 横方向分解能 (Δx) の定義。

で、本論文ではこの横方向分解能を用いることにする。

走査型と投影型ではどちらが横方向分解能が高いのであろうか。結論としては、現在のところ走査型の方が高分解能である結果を出している。走査型の空間分解能はプローブ径により決定されることは上で述べた。プローブ径の大きさはイオンソースの光源の性質が重要な因子の一つである。小さい点光源の高輝度イオンソースを用いるほど細いプローブを得ることができる。現在、デュオプラズマトロンイオンソースでは 120nm、セウムイオンソースで 50nm (Schuhmacher et al., 1990)、液体メタルイオンソースを用いた実験では 20nm の空間分解能を記録している (Levi-Setti et al., 1986)。一方、投影型では、イオン光学系の収差が横方向分解能を決定し、現在、350nm である (Schumacher et al., 1988)。

このように、走査型・投影型共、横方向分解能は光学顕微鏡のそれと匹敵するかやや上回る。したがって、現在の SIMS は横方向分解能において、アラクルニウム・同位体顕微鏡となりえる能力をすでに有している。

4. 分析効率

つぎに同位体比地図を作成するときについての第二の必要条件を考えてみよう。同位体比 1% と 1% の精度で地図を作成するためには、統計変動の問題から最小空間分解能あたりそれぞれ 10^4 , 10^6 個の二次イオンを収集する必要がある。したがって、もし 100×100 ピクセルのイメージを得ようとするとき、イメージ全体では、それぞれの場合、 10^8 , 10^{10} の計数が必要になる。普通、SIMS による同位体比の点分析では 10^6 の計数が一応の目安となるので、同位体比イメージに必要とする計数は非常に大きい。また、実際の分析では、機器の安定性やスパッタリングにより試料がなくなっていくので、測定時間を無

第1表 走査型と投影型 SIMS の分析効率の比較
(Cameca IMS 4 f カタログより)

画像サイズ μm	走査モード/投影モード		
	透過効率	スパッター速度	分析時間
3×3	50/1	1/100	2/1
30×30	50/1	1/10000	200/1
85×85	50/1	1/1500000	1300/1

制限にかけることは不可能である。

第1表に Cameca IMS 4 f により得られた走査型と投影型のそれぞれのモードにおける分析効率の比較を示す。分析条件は横方向分解能0.3μm、質量分解能5000に設定されている。質量分析計の二次イオンの透過率は走査型モードの方が大きい。これは、投影モードでは横方向の分解能を上げるために小さいアパチャーを使用するからである。一方、単位面積あたりのスパッター率は走査型の方が小さい。これは投影型では、横方向分解能は一次イオンサイズに依存しないため、大きいサイズの大強度の一次イオンを使用できるが、投影型では常に0.3μm径の一次イオン径を使用する必要があるからである。小さい一次イオン径に調整すると、必然的に一次イオン電流が減少するため、スパッター率が小さくなる。横方向分解能あたり同一の計数を得るための積分時間は、これらの因子の積により与えられる。それゆえ、イメージサイズが大きくなると投影モードの方が分析効率が良くなる。例えば、85×85μmのイメージサイズの時、投影モードで10秒の分析時間が必要ならば、走査モードでは3.6時間必要なのである。

5. SIMS イメージングの最先端

これまでの説明により、現在の SIMS 装置が十分アラ

クルニウム・同位体顕微鏡となりえるポテンシャルをすでに有していることがわかっていただけだと思う。では、何为实现のための障害になっているのであろうか？

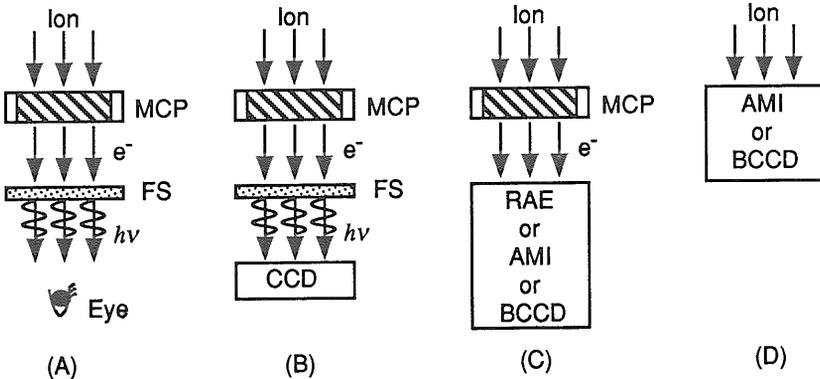
走査型 SIMS をアラクルニウム・同位体顕微鏡にする場合の問題点は、分析効率である。イメージサイズ10μm径以下の微小領域内部の同位体比や微量元素の分布を分析するときには、現在獲得しうる走査型 SIMS の能力で十分アラクルニウム・同位体顕微鏡として実用可能である。ただし、このタイプは、分析領域が大きくなると、測定に要する時間が、その面積に比例して長くなるので、アラクルニウム・同位体顕微鏡として実用的ではない。

普通、分析は大きな領域から始まり、目的を絞ったうえで、微小領域に注目していく。なぜなら、局所分析で得た情報だけからその試料のどのような性質を代表しているかを知ることは一般的に不可能であるからである。それゆえ、広領域イメージングに有利な投影モードのアラクルニウム・同位体顕微鏡を実現する必要がある。

ここで、投影モードの同位体イメージを現在どのようにして観察しているのかを述べておく(第3図A)。

二次イオンの像面にマイクロチャンネルプレート(MCP)をおく。MCPは二次電子増倍器を多数束ねた形式を持ち、二次電子検出が可能なデバイスであり、1個のイオンを10⁴~10⁶個の電子に増幅変換する。この電子をMCPの後段においた蛍光面(FS)に衝突させ、光に変換する。この光が観察される。なぜこのようなまわりくどい方式をとるのだろうか。それはSIMSのイオンを直接蛍光面に照射しても、視認できるほど蛍光面が輝かないからである。そこでイオンをMCPにより電子に変換し増幅することにより、イオンが1個入射した位置で、一瞬、蛍光面を微弱に輝かせるのである。

この投影型モードのイメージを記録するためには、必然的に写真フィルムのような二次元センサーが必要であ



第3図 イメージング SIMS 検出システムの基本様式。

MCP: マイクロチャンネルプレート, e⁻: 電子, FS: 蛍光面, hv: フォトン, CCD: 電荷結合撮像素子, BCCD: 裏面照射 CCD, RAE: レジスティブアノードエンコーダー, AMI: 増幅型 MOS 撮像素子。

る。また定量性を高めるためには得られたイメージがデジタル化しているほうが都合が良い。現在、SIMS の二次イオンのような数十 keV のイオンを直接検出できる二次元検出装置は完成されていないが、いくつかのタイプの二次元イオン検出装置が考案されている (第3図B, C, D)。

5-1. イオンを光に変換する方式 (第3図B)

まず一番簡便な方法は第3図Aの目のかわりにTVカメラ等の電子センサーを用い、その信号をデジタル化することである。一個のイオンにより発生する微弱光は一定の明るさを持っているため、その時間積分強度はイオン強度に対応する。この様な微弱光を定量的に記録する素子として、CCD (電荷結合撮像素子) が優れている。CCD は素子上の1ピクセルあたり3桁以上の広いダイナミックレンジを有し、入射光量に比例した出力 (光電変換特性 $\gamma=1$) をだす。また、積分型の素子であるため、パルスカウント型にみられるような不感時間は原理的に0であるという利点も持つ。

我々は、CCD の優れた特性をSIMS イメージングに応用するため、専用の冷却型 CCD カメラを開発した。CCD は日本テキサスインスツルメント(株)のVID-272を用いた。VID-272 は 798×242 のピクセル数を持ち、仮想位相電極を採用するフレーム転送型の CCD イメージャーである。このため暗電流発生率が小さく、高感度であるという特徴を持つ。1ピクセルあたりのダイナミックレンジは3桁以上である。ダイナミックレンジをどれだけ広げられるかは、暗電流と読みだし雑音を如何に抑えることができるかによっている。暗電流は熱により励起され発生する空孔—電子対のうち電子が CCD のポテンシャル井戸に蓄積されるもので、暗電流 $\propto \exp(-1/\text{絶対温度})$ の関係がある。したがって、CCD を冷却すれば暗電流の発生を抑制できる。また、読みだし雑音は低雑音の CCD 駆動回路と読みだし回路が必要である。この様な要請は市販のTV仕様のものでは満足していない。

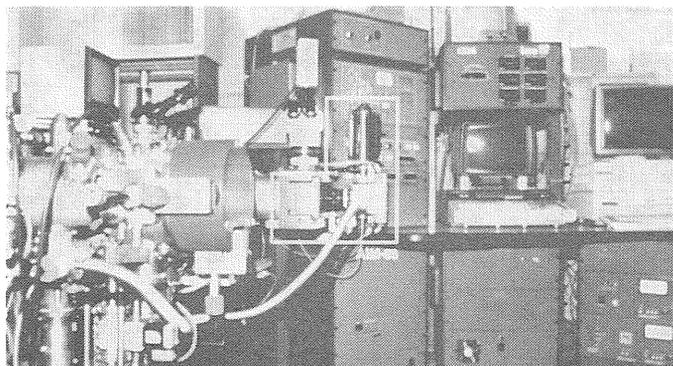
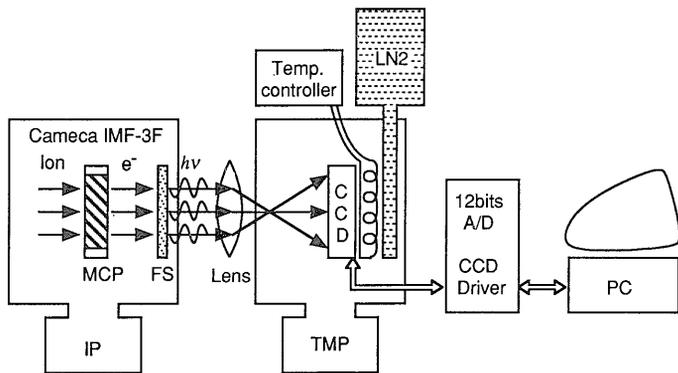
第4図にこれらの点について考慮し試作した Cameca IMS-3F 二次イオン質量分析計用の冷却型 CCD カメラシステム (AIM-88; All-ium and Isotope Microscope system-88) の外観と模式図を示す。Cameca IMS-3F により得られた二次イオンイメージは光に変換され真空外に取り出される。この光イメージを光学レンズにより CCD 上に

結像する。暗電流を抑制するため、CCD は液体窒素により冷却されている。この冷却による結露を防止するため、CCD のまわりをターボ分子ポンプにより真空にしている。本システムでは -70°C 以下に冷却すると CCD の転送不良が発生したため、 $-60\pm 1^{\circ}\text{C}$ で温度を一定に保つ制御機構がくりこまれている。この冷却温度では約1時間の間暗電流の発生を考慮する必要がない。CCD の出力信号は 12 bits A/D コンバーターによりデジタル化され、パーソナルコンピュータに記録される。1ピクセルあたりの変換速度は $1\ \mu\text{sec}$ であるので、1画像あたり約 0.2 秒でデジタル化される。

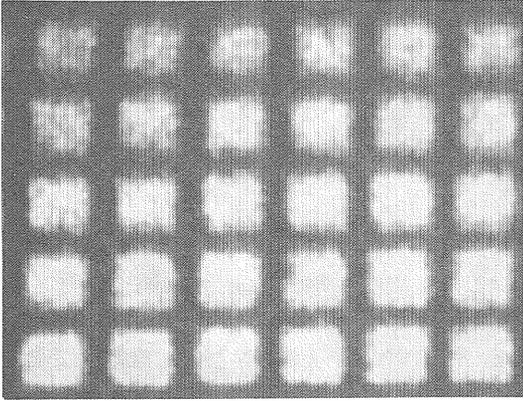
2 節で述べた要請から、画像の信号/雑音比 (S/N) が大きい同位体イメージを得る必要がある。そのためには次の2種類の方法がある。

一つは雑音を小さくすることである。雑音は電気回路を低ノイズ化することにより、信号の持つ量子雑音レベルまで低減することが可能である。ただし、本システムの場合、二次イオン信号は電子を経てフォトンに変換されているので、信号の量子雑音成分がその変換過程のどの部分に相当するのか確定しておく必要がある。

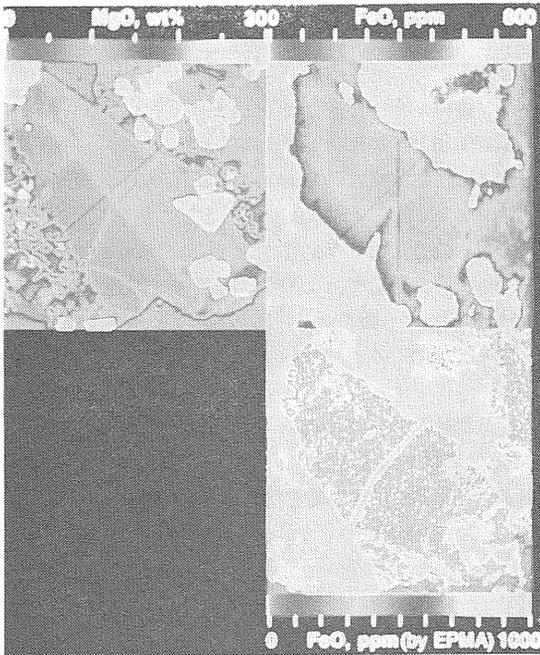
もう一つは信号を大きくすることである。積分型の検出器では信号量は蓄積時間にもなって増加する。しか



第4図 冷却型 CCD カメラシステム (AIM-88)。



第5図 AIM-88 により得られた Al 基板上に Cu グリッドをおいたサンプルの $^{27}\text{Al}^+$ イオンイメージ。グリッドの間隔は $25\mu\text{m}$ 。



第6図 アレンジ隕石中の Ca-Al に富む包有物中の単斜輝石中のセクターゾーニング。EPMA による MgO 成分(左上)、FeO 成分(右下)と AIM-88 システムによる FeO 成分(右上)との濃度分布図の比較。

AIM-88 システムでえたイメージ上の細い1本の縦線は CCD の転送不良による。AIM-88 システムでは MgO のセクター境界を微量の FeO に対しても認めることができるが、EPMA では全く現われていない。

し、1回の読みだし雑音は一定なので、蓄積時間を長くすることにより S/N を大きくすることができる。これはパルス型の検出器にない特徴である。本システムでは、CCD の露光時間を $0.1\sim 409.5$ 秒まで 0.1 秒単位で可変でき、イオン信号も蓄積可能である。本システムと同様なタイプの検出システムはコーネル大学においても開発中である (Mantus et al., 1990)。

第5図に、Al 基板上に Cu グリッド (間隔 $25\mu\text{m}$) をおいたサンプルの $^{27}\text{Al}^+$ イオンイメージを示す。露光時間は1秒である。VID-272は出力を3個の独立したアンプにより行なっている。画像中に見られる3列毎の周期を持つ縦線は、これらのアンプ間の感度補正を行っていないためである。

第6図はアレンジ隕石中のタイプ B1 と呼ばれる Ca-Al に富む包有物中の輝石結晶の Mg と Fe の濃度分布図である。このうち右上図は AIM-88 による $^{56}\text{Fe}^+$ イメージである。第5図にあらわれている縦線を除くために三つの出力アンプのうち一つのアンプからでる出力のみから画像を作成している。露光時間は400秒である。比較のために、同じ領域を EPMA により撮影した Fe (右下) と Mg (左上) のイメージも示している。EPMA イメージをつくるための分析時間は6300秒であった。EPMA の Mg 濃度分布図中に明瞭に現われている輝石中の Mg 濃度境界は、輝石が結晶成長したときのセクターゾーニングである。このセクターゾーニングは右上の AIM-88 イメージの Fe の組成分布においても観察できる。しかしながら16倍の分析時間がかかっている EPMA による Fe イメージ (右下) ではノイズに埋もれセクター構造は全く確認できない。これは輝石中の Fe 濃度が EPMA の検出限界以下であるからである。このように、SIMS を用いたイメージングは ppm オーダーの微量元素の分布を測定できる感度を有する。我々はこの輝石中のセクターゾーニングが Mg, Fe をはじめその他種々の元素においても同様に観察されることから、Ca-Al に富む包有物中の酸素同位体比はそれぞれの結晶が成長時に獲得したことを証明した。このことは酸素同位体比のことなる結晶は起源を異にしていることを意味している (Yurimoto et al., 1991)。

それでは、このタイプの検出装置を改良していくことにより、究極のアラユルニウム・同位体顕微鏡を手中にすることができるであろうか。感度は EPMA を越える性能を有しているが、イエスという答えを出すことは残念ながら困難である。冷却型 CCD カメラ自体の性能には問題はない。天文学の分野で CCD が活躍しているように、フォトンの定量的な検出装置として CCD は理想的なものである。しかしながら、アラユルニウム・同位

体顕微鏡として用いる場合、蛍光面の性能・性質に問題があることが明らかになった。これまでの実験から電子照射による蛍光面の劣化は大きく、短時間のうちに1桁以上の感度変化が生じる。普通の分析では蛍光面の中央部分を使用することが多いので、蛍光面の中央部が集中的に劣化が進む。この結果、イオンが均等に入射したとき蛍光面中央部と周辺部で蛍光面の輝度が1桁以上異なってしまう。また、蛍光面の劣化に伴い、電子/フォトン変換率・ダイナミックレンジも減少していく。これらの特性は蛍光材料が原理的に有するものなので、蛍光材料を選択しても飛躍的な結果の向上は見られないと思われる。これらの蛍光面における制約は、CCDの広ダイナミックレンジ特性と定量線型特性を十分引き出さない。

5-2. 電子に変換したイオンを読む方法 (第3図C)

蛍光面がうまくないのならそれを外せばよい。そのかわり、フォトンではなく電子を検出しなければならない。CCDは、普通、電子を検出できないのでそれに代わるセンサーが必要である。

Odom et al (1983) はレジスティブアノードエンコーダーを使用した面検出システムを開発した。レジスティブアノードエンコーダー (RAE) とは均一な抵抗層を持つ1枚の正方形をしたアノードである。その四隅から電極がでている。RAEに電子が入射すると、これら4つの電極を電子が流れる。この時、各電極を流れる電流の大きさから、電子が入射した位置を計算可能である。電流が大きいほど位置演算精度が向上するので、一つのイオンから発生する電子の利得を大きくする必要がある。そのため、MCPを3枚使用し 10^9 の利得をかせぐ。要するに、RAEによりイオンの入射した位置がわかり、その回数をパルスカウントできるのである。本システムの利点は、イオン1個から検出可能な高感度特性である。

REAは4つの電極に分割された電流から、位置情報を得る。そのため、一つのイオンに対応する電流がRAEから流れ出す前に次のイオンがMCPに入射すると、後のイオンの情報について検知しただけでなく、前イオンの位置情報も不正確になる。これがRAEの不感時間であり、マイクロ秒オーダーである。したがって、最大係数率はアノード面上で1秒あたり高々10万カウントである。

RAE上に 100×100 の格子を想定してみよう。その全面に全体で10万カウント/秒のイオン (RAEの飽和イオン量に相当) が均等に入射しているとす。その時、格子上の各区画あたりの係数率はわずか10カウント/秒である。RAEを用いたシステムの重大な欠点は、この大きな不感時間である。このため、二次イオン強度を制限して使用し

なければいけない。

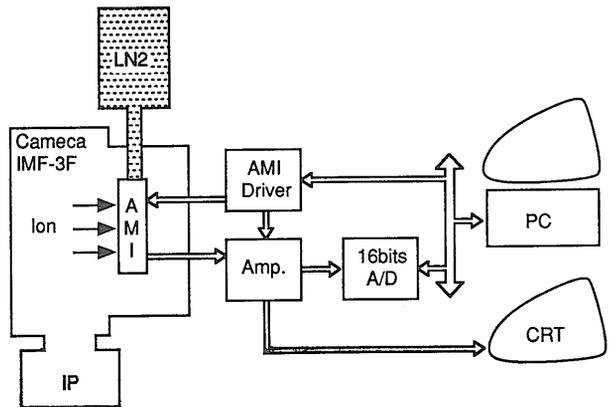
実際的な例をあげてみよう。パラサイト中のオリビンと鉄間のNiの分布をRAEシステムにより一つの画像に記録したいとする。鉄とオリビン中のNi濃度はそれぞれ約10%と30ppmであり、その濃度差は4桁にわたる。したがって、SIMSの感度を鉄中のNiに合わせるとオリビン中のNi分布を精度良く検出できないし、逆に、オリビン中のNi強度が十分得られるように調節すると、不感時間のためRAEシステムではイメージを得ることができなくなる。同様に、酸素のような同位体間の存在度の差が大きい元素について同位体比地図を作成しようとするとき、比をとる分子と分母それぞれの同位体イメージを同一のSIMS測定条件で得ることができなくなる。

これを解決する方法には二つの方法がある。一つはRAEを不感時間のないセンサーに取り替えることである。もう一つはイオンに感度がある面センサーを使用することである。まず、後者の可能性を5-3節で探り、5-4節で前者についてふりかえることにしよう。

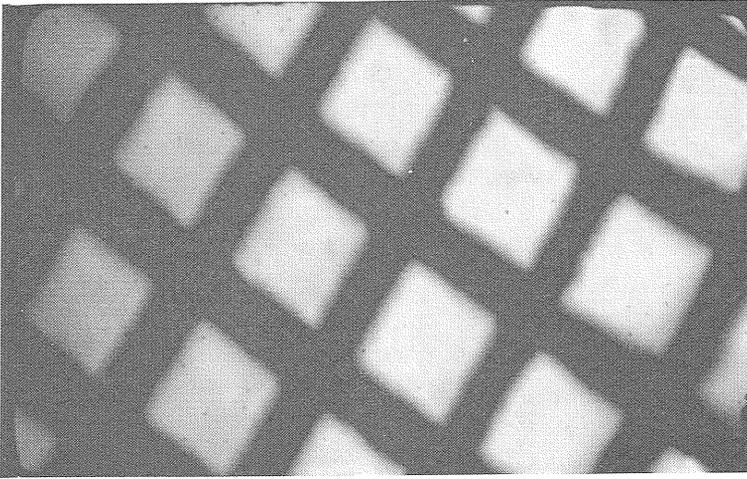
5-3. 直接イオン検出方式 (第3図D)

SIMSの二次イオンを直接検出するセンサーは未だ開発途上である。最近、Turner et al. (1989) は裏面照射タイプのCCDがイオンセンサーとして使用できる可能性を見いだした。その成果については彼らの論文を参照していただくとして、ここでは、我々が開発しているAMIを用いた直接イオン検出システムについて述べる。

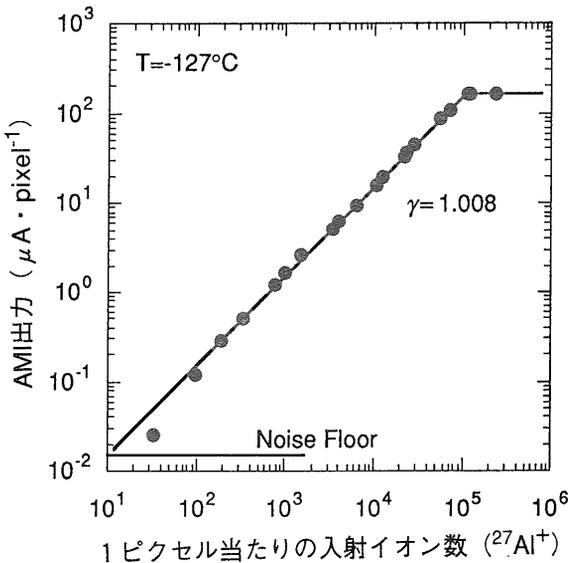
我々は光学用のAMIを改造して、イオンに感度をもつ素子を作成することに成功した。AMIとは内部増幅型固体撮像素子の一つで、Amplified MOS Interigent imagerの略である (宮田ら, 1990)。内部増幅型固体撮像素子は各画素に増幅機能を持たせた固体撮像素子で、高S/Nである特徴を持っている。



第7図 AMIを用いた二次元イオン検出システム (AIM-90)。



第8図 AIM-90により得られたAl基板上にCuグリッドをおいたサンプルの $^{27}\text{Al}^+$ イオンイメージ。グリッドの間隔は25 μm 。



第9図 1ピクセルあたりの入射イオン数とAMI出力との関係。

第7図にAMIシステム(AIM 90)の模式図を示す。第4図と比較すると、イオン→電子→フォトンの2段階の変換過程が不必要になった分シンプルになっていることが一目瞭然である。そのかわりイオン検出システムはSIMSと同一真空中に設置しなければならないため、高真空容器が必要である。AMIはCCDと同様に積分可能な面センサーであるので、長時間イオンを蓄積することが可能である。CCDの場合と同様にAMIにおいても、イオン蓄積時に熱励起による暗電荷が蓄積されるので、それを抑制するため、液体窒素による冷却装置を設置している。本システムでは最大冷却温度が -130°C であり、その温度までシステムが正常に働くことを確認し

ている。 -125°C において暗画像を1時間蓄積する実験を行なったところ、暗電流は検出限界以下であった。

第8図に本システムにより撮影した第5図と同じCu/Alグリッド試料の $^{27}\text{Al}^+$ イオンイメージを示す。第9図に1ピクセルあたりの $^{27}\text{Al}^+$ の入射イオン数とそれに対応するAMI出力電流の関係を示す。 $10 \sim 10^5$ にわたる4桁の入射イオンにたいして、 $\gamma=1$ の出力が得られている。本システムではSIMSの最小分解能はほぼ 3×3 ピクセルに相当するので、最小分解能あたり約5桁のダイナミックレンジがある計算になる。これはAMIが積分型の検出器であるからであり、パルス型検出器ではこのような特徴をもちえない。このピクセルあたりのダイナミックレンジ幅はRAEシステムでは全面的ダイナミックレンジに相当する。その上、AMIは各ピクセルが独立したイオンセンサーであるので、 10^6 個のイオンが1点に入射したとしても、オーバーフローするのはその点だけである。その他の領域では定量的なイメージを得ることができる。この点もRAEシステムでは得られない特徴である。もし次に示す点を改善できれば、AMIシステムは理想的な二次元イオン検出システムとなるであろう。

ただ一つの点とは感度である。AMIはイオン1個に対応する電荷をピクセル内部に正確に蓄積しているけれども、イオン10個分の読みだし雑音を持つため、イオンが10個以上入射しないと検出することはできない。そこで、積分型のセンサーであるAMIの特性を利用すれば、つまり分析時間を長くすることによりこの感度の問題を回避することが原理的に可能である。しかし、分析効率や試料の消耗の点を考え、現在、読みだし雑音の低減とAMI内部のイオン→電子変換効率のアップの両面から

感度に対する改良を加えつつある。近い将来イオン1個を検出可能なAMIシステムが実現するかもしれない。

5-4. 再び電子に変換したイオンを読む方法(第3図C)

AMIがイオンに感度があることがわかった。イオンに感度があるならば、電子にも感度があるはずである。なぜならば、イオン—固体間の相互作用と電子—固体間の相互作用はほぼ等しい物理法則にしたがっているからである。もしそうなら、MCP1枚あたりの利得は 10^4 なので、第3図CシステムのRAEの代わりにAMIを用いることにより、感度に関する欠点を補うことが可能である。このようなAMIシステムは現在、我々により設計段階にある。このシステムが実用可能かどうかはまもなく判明するだろう。現在の不安はMCP1チャンネルあたりのダイナミックレンジが意外に狭いのではないかという点である。

6. まとめ

アラユルニウム・同位体顕微鏡の実現の可能性について概観してきた。アラユルニウム・同位体顕微鏡の実現は二次元イオン検出装置の実用化と同時に実用段階にはいるはずである。筆者は、まもなく、5-4で紹介した方法により、最低限アラユルニウム・同位体顕微鏡と呼べる能力にSIMSイメージングが到達し、5-3のイオンの直接検出方式に移行しつつ熟成されていくという感触もっている。

アラユルニウム・同位体顕微鏡という新しい観察手段を持つことにより、地球科学分野に多数の発見が見つかり、新しい概念が発生していくことを期待している。また、アラユルニウム・同位体顕微鏡の開発に伴う新技術が、地球科学周辺の基礎科学・応用科学分野に活用されることも期待している。

謝辞：アラユルニウム・同位体顕微鏡ハードウェアの試作全般にわたり(株)アプコ 小坂光二氏の協力を仰いでいる。冷却型CCDカメラの開発にあたり、日本テキサスインスツルメント(株)藤井一郎・高橋一正両氏には、CCDサンプルを提供していただき、その駆動法と特性

をご教示いただいた。二次元イオン検出装置の開発にあたり、オリンパス光学工業(株)松本一哉・宮田憲治・中村力の各氏には、AMIサンプルを提供していただき、その駆動法のご教示、および、イオンに対する特性解析を手伝っていただいた。また、筑波大学末野重穂教授・(株)アプコ 奥寺智氏には終始激励をいただいた。これら共同研究者の方々に感謝の意を表する。この研究の一部は文部省科学研究費補助金により支援された。

文 献

- Castaing, R. and Slozian, G. (1962): *J. Microsc.*, 1, 395.
 Levi-Setti, R., Crow, G. and Wang, Y.L. (1986): In *Secondary Ion Mass Spectrometry SIMS V* (eds. A. Benninghoven et al.) pp.132.
 Mantus, D.S., Turner, L.K., Ling, Y.-C. and Morrison, G.H. (1990): In *Secondary Ion Mass Spectrometry SIMS VII* (eds. A. Benninghoven et al.) pp.921.
 宮田憲治, 松沢幸雄, 安藤文彦, 竹歳和久 (1990): テレビジョン学会技術報告16, 33.
 Odom, R. W., Furman, B. K., Evans, Jr., C. A., Bryson, C. E., Petersen, W. A., Kelly, M. A. and Wayne, D. H. (1983): *Anal. Chem.* 55, 574.
 Schumacher, M., Migeon, H. N. and Rassar, B. (1990): In *Secondary Ion Mass Spectrometry SIMS VII* (eds. A. Benninghoven et al.) pp.939.
 Schumacher, M., Rasser, B., Migeon, H.-N. and Slodzian, G. (1988): In *Secondary Ion Mass Spectrometry SIMS VI* (eds. A. Benninghoven et al.) pp.177.
 Turner, L. K., Mantus, D. S., Ling, Y. C., Bernius, M. T. and Morrison, G. H. (1989): *Rev. Sci. Instrum.* 60, 886.
 Yurimoto, H., Oishi, K., Nagasawa, H., Yuasa, H. and Sueno, S. (1991): *Papers presented to the 16th Symp. Antarctic Meteor.*, 60.
 Yurimoto, H., Yamashita, A., Nishida, N. and Sueno, S. (1989): *Geochem. J.*, 23, 215.

YURIMOTO Hisayoshi (1992): All-ium and Isotope microscope: Quantitative imaging by SIMS.

<受付: 1991年11月8日>