

AES による化学状態分析の一例

阿部 芳巳

シーエーシーズ(株) 横浜分析センター
〒227-0033 横浜市青葉区鴨志田町 1000
e-mail: yosimi@rc.m-kagaku.co.jp
(2001年5月1日 受理)

最近のオージェ電子分光(AES)装置では、計測系の向上によって、従来の微分形スペクトル収集から、積分形スペクトルを直接収集できるようになっている。また、同心半球型エネルギー分析器(CHA)を搭載した機種が登場によって、X線励起スペクトルと同等の高エネルギー分解能測定も可能になっている。

本稿では、AESによる化学状態分析に焦点を当てて、従来型装置での微分ピーク高を利用した分析例や、CHAを搭載した最新型装置での高エネルギー分解能スペクトルを利用した分析例を紹介する。

A Few Applications of AES Chemical State Analysis

Yoshimi ABE

Yokohama Laboratory, Center for Analytical Chemistry and Science, Inc.
1000, Kamoshida-cho, Aoba-ku, Yokohama 227-0033
(Received: May 1, 2001)

Improvement of detection system in Auger electron spectroscopy (AES) can provide spectra in the direct mode instead of in the differentiated mode. Along with direct collection, energy resolution can be achieved as high as X-ray excited spectra using modern instruments with concentric hemispherical analyzer (CHA).

In this article applications of AES to chemical state analysis are focused on. A few examples of Auger peak-to-peak height (APPH) analysis of the differentiated spectra, and line shape analysis of the direct spectra with high-energy resolution are briefly described.

1. 緒言

オージェ電子分光法(AES)は、細線化に有利な電子線をプローブに用いることから、微小部の組成分析を得意とする。電子線を走査して面内の組成分布を調べたり、希ガスイオンによるスパッタリングを併用して深さ方向の組成分布を調べる用途にも多用されており、産業界の実用表面分析において有力なツールとなっている。AESによる実用表面分析全般については優れた入門書、総説[1-5]が刊行されている。

AESの利用方法としては、一般には微小部を狙った組成分析が主となるが、AESスペクトルにおいても、注目原子の化学結合状態が変化すると、XPSスペクトルの化学シフトと同様に、ピークのエネルギーシフトや波形変化などの化学効果[6-9]が現れる。化学効果は定量分析を行う上では障害となるが、積極的に利用して化学

情報の抽出に成功すれば、AESの化学状態分析への適用が望める。

そこで本稿では、AESによる化学状態分析に焦点を当てて、筆者による情報電子材料分野での利用例を紹介する。尚、ファクターアナリシスなどの数学的手法を援用した波形解析については、既に文献[10]が多数あるため、本稿では特に触れないことにした。

2. AES装置の動向

筆者がここ十年間で使用してきたAES装置の変遷を表1に示す。1996年から使用している最新型の装置では、

- ショットキー型電界放射源(FE)の利用による空間分解能の向上
- 同心半球型エネルギー分析器(CHA)の利用によるエネルギー分解能の向上

- パルス計測によるダイレクトモードでのデータ収集
- 積分形スペクトルを前提にしたデータ処理 (直線法, Shirley 法, Tougaard 法によるバックグラウンド除去処理; 感度係数法による定量; 非線形最小二乗フィッティング, ターゲットファクターアナリシスによる多点スペクトルデータ群の波形解析, など) などが実現されている。

Table 1 AES instruments used in recent ten years.

Model	Electron Source	Analyzer	Data Collection
JEOL, JAMP-30	LaB ₆	CMA	$dE*N(E)/dE$, $E*N(E)^*$
JEOL, JAMP-7100	LaB ₆	CMA	$dE*N(E)/dE$
PHI, 650	LaB ₆	CMA	$E*N(E)$
VG, MICROLAB 310-F	Schottky-type FE	CHA	$E*N(E)$, $N(E)$

* with beam brightness modulation

2.1. 電子源

FE 電子銃を利用すると、最小プローブ径を ~10 nm 程度まで細線化することが可能であるほか、LaB₆ 電子銃などの熱電子ビームに比べて輝度が高い[4]という利点もあり、微小部分分析に有利である。高空間分解された局所組成情報だけでも、化学結合情報の推定に役立つ場合がある。ただし、微小部を狙った点分析では、電流照射密度が高くなるため、試料表面が損傷[11]を受けて酸化物の還元などの化学状態変化を引き起こす場合があることにも留意が必要になる。

2.2. 分光系

CHA を搭載した機種では、CHA の前段に配されたインプットレンズとの組み合わせにより、分光器に入る前の電子を一定の減速比で減速することが可能で、エネルギー分解能は $\Delta E/E = 2\% \sim 0.02\%$ 程度の範囲で可変である。したがって従来型装置よりも高いエネルギー分解能での AES スペクトル測定が容易である[12,13]。また、AES で普通使われる減速比一定モード(相対分解能一定)のみでなく、X 線光電子分光法(XPS)で使われるパスエネルギー一定モード

(絶対分解能一定)の設定も自在で、反射型電子エネルギー損失分光法(REELS)や弾性散乱電子分光法(EPES)などの特殊な用途にも利用できる[12,14]。

ただし、高エネルギー分解能測定の場合には、分解能と感度がトレードオフされて検出強度が低下する分、長時間積算が必要となる。電流照射時間が長くなることによって、試料表面が損傷[11]を受け化学状態が変化し易くなることに留意が必要である。また、超高真空環境下での測定であっても、残留ガス成分の吸着は避けられず、筆者の試算では 1.3×10^{-7} Pa の背圧下での酸化性残留ガス分圧は 8×10^{-9} Pa 程度と推定されている[13]。残留ガスの吸着は、測定時間の増加に伴って顕在化し、酸化性残留ガスを酸素と仮定すると、20 min のデータ収集は 0.07 L ($1 \text{ L} = 1.3 \times 10^{-4} \text{ Pa} \cdot \text{s}$) の酸素暴露に相当するため、活性な表面の測定では特に注意を要する。

2.3. 検出系

従来型の装置では、ロックインアンプを用いて CMA の掃引電圧に変調電圧を重畳させることにより、AES スペクトルを $dE*N(E)/dE$ の一次微分形として収集することが当たり前であったが、現在では、計数系の進歩によってパルス計測法などにより AES スペクトルをそのまま $E*N(E)$ の積分形で収集できるようになってきている。

積分形でのデータ収集が行えるようになった現在でも、データ処理時に数値微分して、従来同様、微分スペクトルとして取り扱う場合が多い。オージェピークは巨大なバックグラウンドに付随して出現するため、微分処理によりそのバックグラウンドを除去してしまった方がピークの取り扱いが容易になるためである。ただし、オージェピークに付随するバックグラウンドは、XPS スペクトルの Tougaard 法による表面層構造解析[15]と同様に、固体内での非弾性散乱をスペクトル解析に積極的に利用する目的には有用である。

3. AES スペクトルに現れる化学効果の例

化学効果は、化学結合状態の変化に伴って価電子帯の電子構造が変わることに起因する。AES スペクトルに現れるピークのエネルギーシフトや波形変化などの化学効果を検知する目的には、参照スペクトルとの波形比較が一番の早道である。そのためには高エネルギー分解能測定が有利である。

Fe-Ni合金系での測定例を図1に示す。エネルギー分解能 $\Delta E/E=0.05\%$ の条件で Fe100 と Ni100 から得られたスペクトルを合成 (Fe100 と Ni100 の単純平均) して、Fe50Ni50 合金の実測スペクトルと波形比較した結果、両者はほぼ完全に一致し、合金化に由来する波形変化は認められないと結論した[12]。同じ方法論を用いれば、合金系で波形が変化している場合には容易に検知することができる。

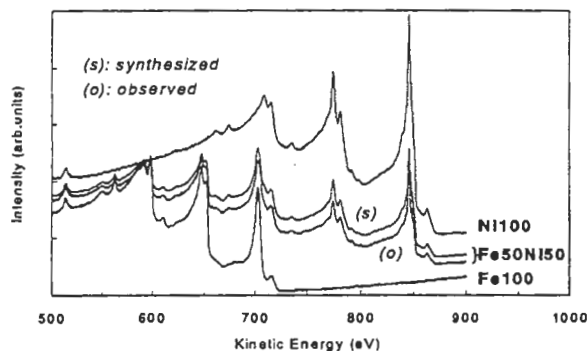


Figure 1 AES spectra from Fe, Ni and Fe50Ni50 with energy resolution of 0.05%. Data taken from ref.[12].

3.1. 化学効果とエネルギー分解能

エネルギーシフトや波形変化を明敏に捕捉し、化学状態変化を議論するためには、変化量に対して十分に高いエネルギー分解能が必要になる。 $\Delta E/E=0.1\%$ の分光条件では 0-2000 eV のエネルギー範囲にわたって $\Delta E \leq 2$ eV の関係を満足するが、より一般的な $\Delta E/E=0.5\%$ の分光条件になると、 $E=100$ eV に対しては $\Delta E=0.5$ eV であるが、 $E=1000$ eV に対しては $\Delta E=5$ eV となり、近接ピークの波形分離が十分ではなくなる。したがって低速側のオーজেピークを議論する場合にはエネルギー分解能を上げる必要はないが、高速側のピークを議論する場合には高エネルギー分解能が必須になる。

図2にエネルギー分解能 $\Delta E/E$ を0.5%から0.05%の範囲に展開して elemental Si の Si-KLL ピークを測定した結果を示す。主ピークよりも7 eV ほど低い位置に観測される微細構造 ($KL_{2,3}L_{2,3}$ には 1S と 1D の状態があり、前者は後者よりも7 eV 低い位置に現れる[2]) は、エネルギー分解能が0.1%を超えると主ピークの低速側の裾野に埋没して波形分離が困難になっている。一般にオーজেピークは、終状態の緩和過程を反映して低速側に裾を引く形状をとる場

合が多く、エネルギー分解能が十分高くない場合には低速側の微細構造は主ピークの裾野に埋もれてしまうことになる。

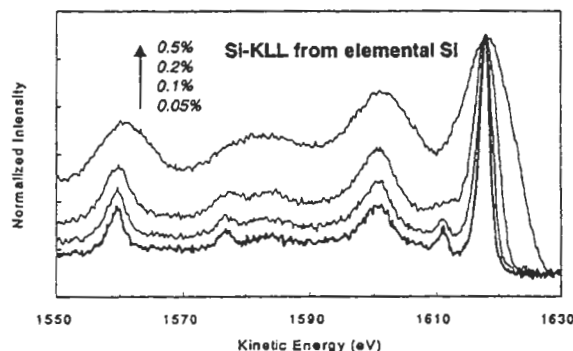


Figure 2 Si-KLL AES spectra from Si with various energy resolution.

3.2. エネルギーシフト

3つのエネルギー準位が関与するオージェ遷移過程では、始状態での各エネルギー準位の結合エネルギーやオージェ電子放出過程での緩和エネルギーの変化が全て反映されるため、XPS の場合の1電子遷移よりもエネルギーシフトは大きくなる場合が多い[2,9] (関根らの報告では一般に1.5倍[9])。

エネルギーシフトの代表的な例として、Si, SiN_xO_y , SiO_2 , Co-Si の4種のSi化合物から得られた AES スペクトルを図3と図4に示す。エネルギー分解能 $\Delta E/E=0.5\%$ で測定したワイドスキャンスペクトルでは、Si-LVV 及び KLL ピークに化学効果が明瞭に現れており、さらに分解能を $\Delta E/E=0.1\%$ に高めることによって、主ピークの $KL_{2,3}L_{2,3}$ のエネルギーシフトが明敏に観測されている(図4)。

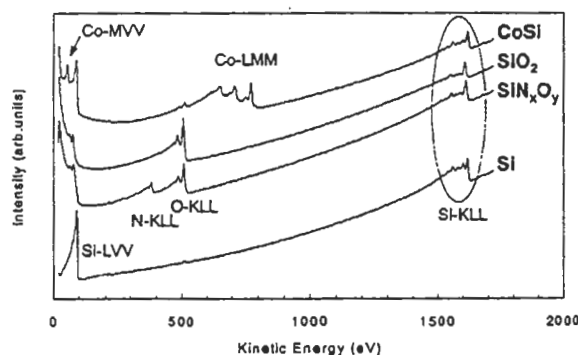


Figure 3 Wide-scan AES spectra from Si-compounds with energy resolution of 0.5%.

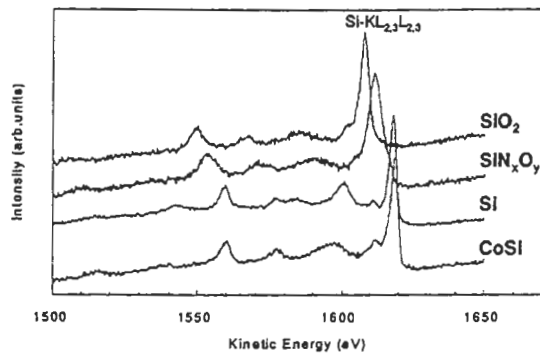


Figure 4 Si-KLL AES spectra from Si-compounds with energy resolution of 0.1%.

3.3. 波形変化

オージェ遷移に価電子が関与している場合には、エネルギーシフトに加えて波形変化が観測される場合が多い[6]。結合相手の他原子との間に原子間オージェ遷移が起きるような場合には、波形変化はよりいっそう顕著になる。こうした波形変化の方向性は一様でなく、個々の場合による。

100 eV 以下の低速領域には、二次電子による右肩下がりバックグラウンドの上に、価電子の関与する遷移に由来するあらゆる元素のオージェピークが出現するため、多成分系ではピーク干渉が深刻である。したがって 100 eV 以下の領域に出現するオージェピークは、化学効果による波形変化が顕著であっても実用上の利用は難しく、AES による状態分析では、高速側に出現するオージェピークを用いた方が議論し易い。そこで本節では、以下、100eV 以上の運動エネルギー領域に出現するオージェピークを対象を絞って実例を紹介する。

3.3.1. ピーク幅の変化

波形変化の中で最も単純に検知できるのは主ピークの幅の変化である。ピーク幅を調べる場合、積分形スペクトルではピークのエネルギー範囲(上端と下端)を決めてバックグラウンド除去後の半値全幅(FWHM)を評価することになるが、両端の決定には任意性が大きい[16]。明確な規準がない限りは、微分形スペクトル上で正側のピークと負側のピークとのエネルギー間隔を読み取る方がよほどてっとり早い。

また、微分形スペクトルでは、ピーク幅が広がると微分ピーク高(Auger Peak-to-Peak

Height; APPH)が減少するため、APPH の評価を通してピーク幅の変化が議論できる。

◇遷移金属炭化物の C-KLL 幅

グラファイトと遷移金属炭化物(Transition Metal Carbide; TMC)から得られる C-KLL ピークの波形が顕著に異なることは良く知られている[1-3,8]。TMC では金属 d 軌道と炭素 2p 軌道が混成して価電子帯を形成し、炭素の 2s 軌道と 2p 軌道の混成がない[17]という電子構造の違いを反映していると考えられる。

ゲラー社から購入した AES 用標準試料セットを利用して、Ti, V, Zr, Nb, Mo, Ta, W の炭化物について C-KLL の波形を比較した結果を図 5 に示す[18]。測定は JEOL 製 JAMP-30 型 AES 装置で行い、エネルギー分解能 $\Delta E/E = 0.6\%$ の条件で、ロックインアンプによる微分モードでデータ収集した。同一周期列では 3d 系(Ti->V), 4d 系(Zr->Nb->Mo), 5d 系(Ta->W)ともに d 電子数の増加に伴って C-KLL ピークの負側のピーク成分に拡幅化がみられる(図 6)。

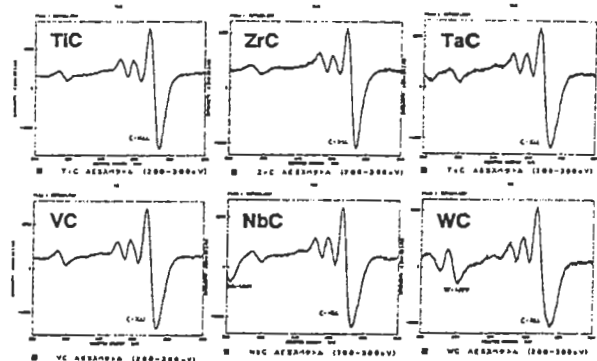


Figure 5 C-KLL AES spectra from various transition metal carbides (differentiated).

Data taken from ref.[18].

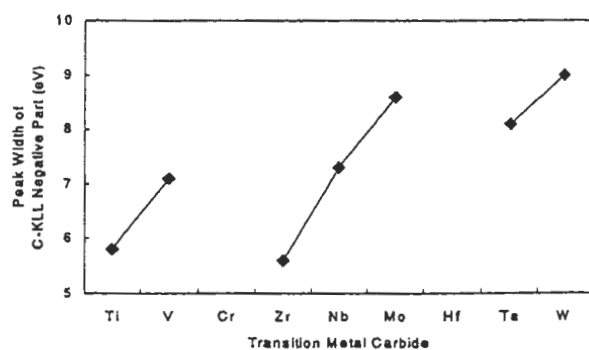


Figure 6 Peak width of C-KLL negative

part estimated from fig.5.

◇3d 遷移金属の初期酸化解析

3d 遷移金属 (3d Transition Metal ; 3d-TM) の Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn に関して、金属とその安定酸化物の LMM オーজে遷移系列の波形変化が系統的に研究されている [19]。その結果、一般的な傾向として、価電子が関与するピークは酸化によって幅広がりなどの形状変化を起こし、波形変化が大きい場合には微分ピーク高が減少するため感度が低下することが指摘されている。

筆者も、化学情報を含んだ深さ分析 (chemical depth profiling) を目的に、ハードディスクや光磁気ディスクなどの磁気記録媒体に用いられる 3d-TM (Cr, Fe, Co, Ni) 表面で酸素吸着実験を行い、酸素吸着から初期酸化に至る過程を AES 波形変化に注目して追跡した [20]。

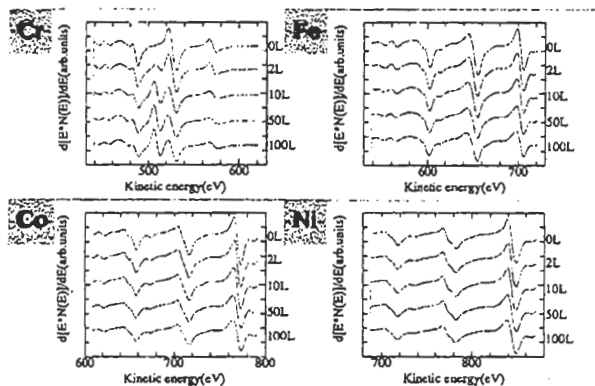


Figure 7 Cr, Fe, Co and Ni -LMM AES spectra with increasing oxygen exposure (differentiated). Data taken from ref.[20].

JEOL 製 JAMP-30 型の AES 装置内で、Ar イオンスパッタにより清浄化した表面を高純度酸素ガスに暴露し、所定量の酸素暴露と AES スペクトル測定 ($\Delta E/E = 0.6\%$ の分光条件で、微分モードで収集) を交互に繰り返して、酸素暴露量に対するピーク波形の変化を調べた結果を図 7 に示す。APPH を用いて LMM オージェ遷移系列の $LM_{2,3}M_{2,3}$ (LMM), $LM_{2,3}M_{4,5}$ (LMV), $LM_{4,5}M_{4,5}$ (LVV) 三重線の強度変化を調べた結果 (図 8)、酸素暴露に伴って、遷移過程に価電子が関与する LVV に最も大きな強度低下傾向が認められ、LMV との強度比 LMV / LVV は O-KLL 強度と相関して変化した (図 9)。そこで、 LMV / LVV 強度比を 3d-TM 表面の酸化度合いを表す指標として提案している。APPH の相

対変化は、石黒らの報告 [19] 通り、酸化に伴うピークの拡幅化が LMM, LMV, LVV の順に大きいことに起因している。

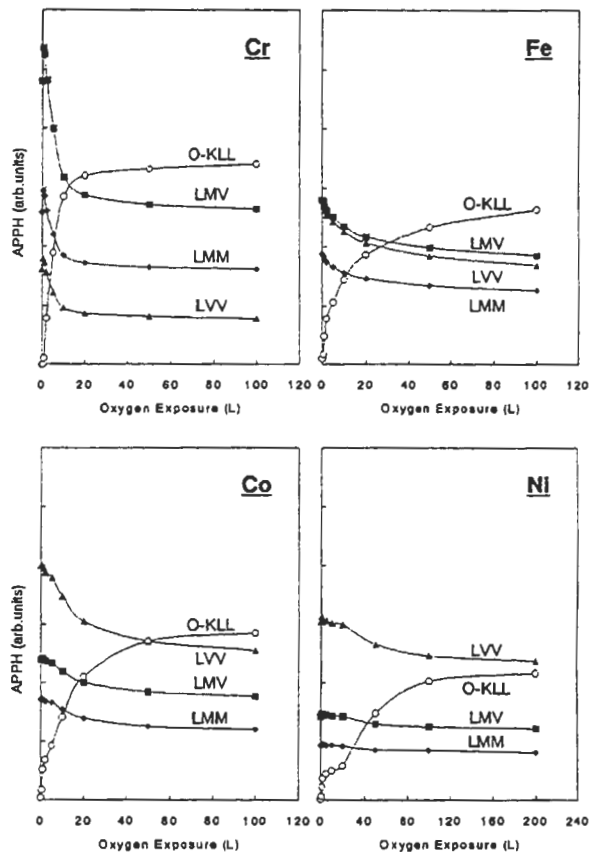


Figure 8 Variation of APPH as a function of oxygen exposure. Data taken from ref.[20].

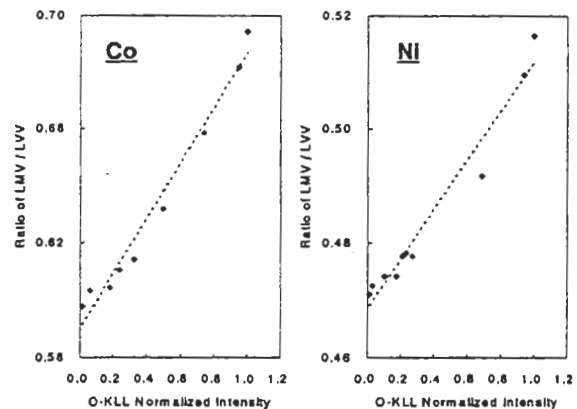


Figure 9 Relationship between O-KLL normalized intensity and APPH ratio of LMV / LVV, in the case of Co and Ni. Data taken from ref.[20].

3.3.2. エネルギー損失ピークの変化

オージェピークにはエネルギー損失ピークが付随して現れることがある。Al, Si と 3d-TM の

AES, REELS スペクトルを図 10 に示す (Al, Si の AES スペクトルは割愛)。自由電子に近い電子をもつ Al や Si ではプラズモン損失ピークが強く観測され、Zn ではバンド間遷移による損失ピーク[21]が強く現れる。強い損失ピークをもつ元素の場合には、価電子帯の電子構造変化に伴って固体内でのエネルギー損失過程が変わるため、オーজেピークに付随して現れるエネルギー損失ピークの波形が変化する。

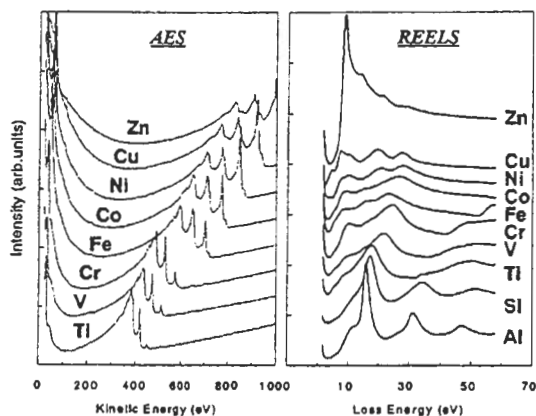


Figure 10 AES and REELS spectra from 3d-TM. REELS spectra from Al and Si are also shown.

◇Si-KLL の波形解析

Si と SiO_2 から得られた REELS スペクトルを図 11(a)に示す。elemental Si の場合にのみバルクプラズモンによる強い損失ピークが約 17 eV の間隔で観測されている。elemental Si の AES スペクトルと REELS スペクトルを対比させると、 $\text{KL}_{2,3}\text{L}_{2,3}$ オーজেピークに付随して現れる微細構造のいくつかはプラズモン損失に由来することがわかる (図 11(b))。この損失ピークは elemental Si に固有で、Co-Si にはみられない (図 4)。

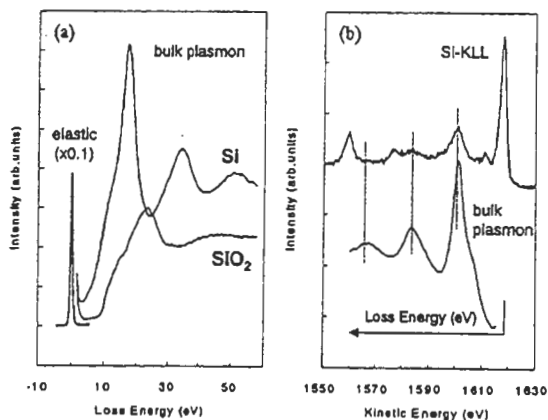


Figure 11 (a) REELS spectra from Si and SiO_2 . (b) Spectral comparison between

Si-KLL AES and REELS.

CHAを搭載した機種では、AESとREELSの並行デプスプロファイリング[14]が可能であり、オーজেピークの変化に加えて、REELS スペクトルに現れるプラズモンやバンド間遷移に由来する損失ピークの変化を追うこともできる。図 12 に SiO_2/Si 多層薄膜の測定例を示す。2 keV の一次電子線を用いて、Si-LVV, O-KLL のオーজেピーク (Si-KLL は励起エネルギーが不足するため測定していない) とプラズモン損失ピークの深さ方向の変化を追うと、 SiO_2 から Si への層変化に対応して急峻な波形変化が観測される。

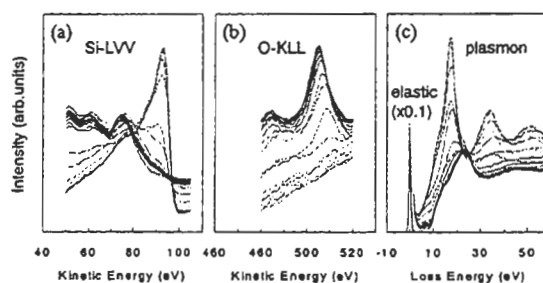


Figure 12 AES and REELS parallel depth profiling of SiO_2/Si multilayer. Variation of (a) Si-LVV, (b) O-KLL and (c) REELS spectra are shown, respectively.

3.3.3. 随伴ピークの変化

主ピークに付随する随伴ピークの波形変化が顕著である場合には、主ピークに対する相対強度の変化が有効な指標になる。

◇微分ピーク高を利用した Tb 初期酸化解析

3.3.1.節と同様に、JEOL 製 JAMP-30 型の AES 装置内で、Ar イオンスパッタにより清浄化した表面を高純度酸素ガスに暴露し、所定量の酸素暴露と AES スペクトル測定 ($\Delta E/E=0.6\%$ の分光条件で、微分モードで収集) を交互に繰り返して、酸素暴露量に対するピーク波形の変化を調べた結果を図 13 に示す[20]。

酸素暴露に伴って Tb-NOO オーজে遷移系列の双頭ピークの間にならなピーク (図 13 の b)) が出現したため、APPH を用いて NOO 主ピーク (図 13 の c)) に対する強度比を調べた結果、NOO-ox / NOO-main 強度比は O-KLL 強度の増加に対して直線的に変化した (図 14)。そこで、NOO-ox / NOO-main 強度比を Tb 表面の酸化

度合いを表す指標として提案している。

化学状態変化に伴って原子間オージェ遷移などに起因する新たなピーク構造が出現すれば、その強度を指標として、化学情報の抽出が可能である。

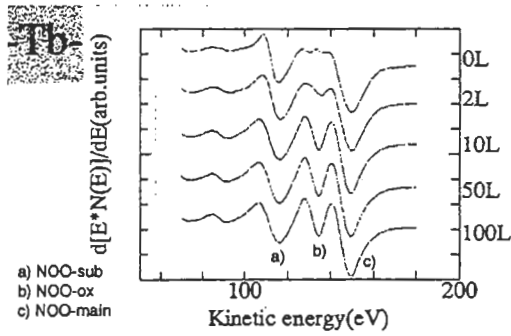


Figure 13 Tb-NOO AES spectra with increasing oxygen exposure (differentiated). Data taken from ref.[20].

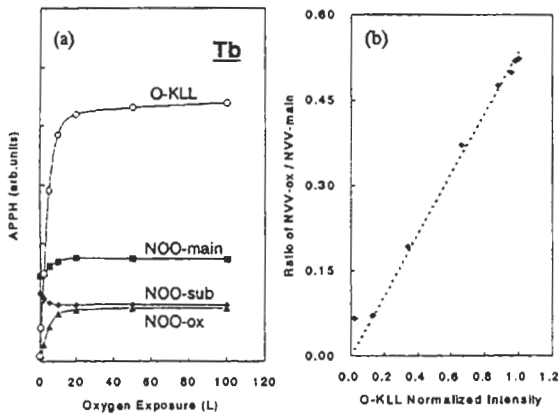


Figure 14 (a) Variation of APPH as a function of oxygen exposure. (b) Relationship between O-KLL normalized intensity and APPH ratio among Tb-NOO. Data taken from ref.[20].

◇積分ピーク高を利用した Gd 初期酸化解析

Tb を Gd に代えて、VG 製 MICROLAB 310-F 型の FE-AES 装置内で同様の実験を行った。所定量の酸素暴露と AES スペクトル測定 ($\Delta E/E=0.5\%$ または 0.1% の分光条件で、積分モードで収集) を交互に繰り返して、酸素暴露量に対するピーク波形の変化を調べた結果を図 15 に示す[13]。Gd-NOO ピークは通常のエネ

ルギーシフトも議論した。

Tb 同様に、酸素暴露に伴って Gd-NOO オージェ遷移系列の双頭ピークの中に新たなピーク構造 (NOO-oxide と呼ぶ) が出現した。微分形スペクトルの場合の APPH に代わる指標として、最も単純に、積分ピーク高を利用 (図 16(a)) して、NOO 主ピークに対する強度比を調べた結果、NOO-oxide / NOO-main は O-KLL 強度の増加に対して直線的に変化した (図 16(b))。同時に、O-KLL ピークには低速側へのエネルギーシフトが観測された。そこで、NOO-oxide / NOO-main 強度比を Gd 表面の酸化度合いを表す指標として提案している。

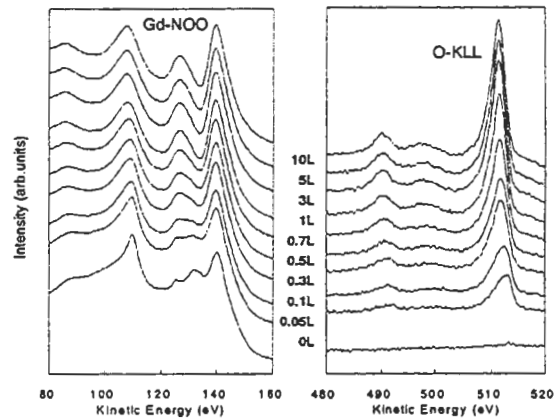


Figure 15 Gd-NOO and O-KLL AES spectra with increasing oxygen exposure. Data taken from ref.[13].

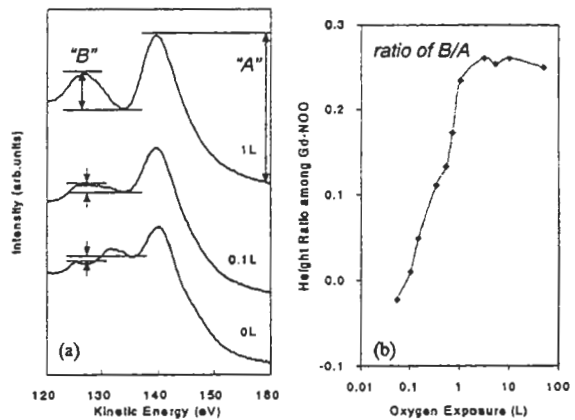


Figure 16 (a) Evaluation of peak heights among Gd-NOO on the direct spectra. (b) Relationship between O-KLL area intensity and height ratio among Gd-NOO. Data taken from ref.[13].

積分形スペクトルを利用して化学状態変化をより定量的に議論するためには、ピーク高よりもピーク面積を用いた方が望ましいが、バックグラウンドの処理が懸案の問題として残るため、こ

ここでは、ピーク高を利用するに留めている。

4. 結言

AES スペクトルに現れる化学効果を積極的に利用できれば、AES の持つ局所性を活かした化学状態分析が可能となる。

注目するピークの運動エネルギーが高いほど、エネルギーシフトや波形変化を議論する目的には高エネルギー分解能測定が有利になる。エネルギー分解能を高めることで微細構造が波形分離されてくるが、そのうちのいくつかは REELS スペクトルとの対比からエネルギー損失ピークに帰属できる場合があり、強い損失ピークをもつ元素の場合には AES と REELS の並行測定が有効である。

また、ピーク幅の変化が有用な化学情報を与える場合があり、ピーク幅を議論する目的には微分形での APPH の変化が利用しやすい。

現時点ではまだ、積分形で取得した AES スペクトルを数値微分して微分形で取り扱うことが多いが、今後、積分形スペクトルでのピークの手扱いがより汎用化してくれば、その状態分析への利用が拡充してくるものと期待している。

参考文献

まず、AES 実用分析の全般的な入門書、総説として[1]-[5]を挙げる。特に、C.D.Wagner がまとめた[2]の付録 4 はエネルギーシフトの参照として有用である。

- [1] 志水隆一, 吉原一紘 編, “ユーザーのための実用オージェ電子分光法”, 共立出版 (1989).
- [2] D.Briggs and M.P.Seah 編, 合志陽一, 志水隆一 監訳, 表面分析研究会 訳, “表面分析(上・下)-基礎と応用-”, アグネ承風社 (1990).
- [3] 大西孝治, 堀池靖浩, 吉原一紘 編, “固体表面分析 I”, 講談社 (1995).

- [4] 日本表面科学会 編, “表面分析技術選書 オージェ電子分光法”, 丸善 (2001).
- [5] 中村誠, *JSA*, **7**, 91 (2000).

続いて、AES スペクトルに現れる化学効果を探り上げた総説として[6-9]を挙げる。特に、[8]は 350 通を超える文献を引用して波形変化の本質が解説されている。

- [6] 二瓶好正, 日本化学会 編, 化学総説 電子分光, **16**, 217 (1977).
- [7] H.H.Madden, *Surf. Sci.*, **126**, 80 (1983).
- [8] D.E.Ramaker, *Critical Reviews in Solid State and Materials Sciences.*, **17**, 211 (1991).
- [9] T.Sekine, N.Ikeo and Y.Nagasawa, *Appl. Surf. Sci.*, **100/101**, 30 (1996).
- [10] 例えば, 藤田大介, 吉原一紘, 表面科学, **13**, 286 (1992).
- [11] 三浦薫, *JSA*, **7**, 49 (2000).
- [12] Y.Abe and SASJ-MMG, *JSA*, **5**, 266 (1999).
- [13] 阿部芳巳, *JSA*, **7**, 203 (2000).
- [14] 阿部芳巳, *JSA*, **6**, A-8 (1999), presented at PSA-99.
- [15] S.Tougaard, *J.Vac.Sci.Technol.*, **A14**, 1415 (1996); 荒井正浩, *JSA*, **8**, 55 (2001).
- [16] 當麻肇, *JSA*, **8**, 49 (2001).
- [17] 枝元一之, 関根理香, 宮崎栄三, 穴澤俊久, 表面, **33**, 570 (1995).
- [18] 加藤彰子, 阿部芳巳, 社内報告書 (1992).
- [19] 石黒勝彦, 本間禎一, 日本金属学会誌, **45**, 360 (1981).
- [20] Y.Abe, A.Kato and T.Nakamura, *SLA*, **22**, 14 (1994), presented at ECASIA'93.
- [21] 名越正泰, PSA-97 要旨集, P-41 (1997), presented at PSA-97.