

## 研究論文

## スパッタリング速度の定量的評価とそれを用いた表面組成回復速度の測定

吉武道子、吉原一紘

金属材料技術研究所 〒305 つくば市千現1-2-1

2kVのアルゴンイオンでSi上のSiO<sub>2</sub>膜(104nm)を種々のスパッタリング条件でスパッタし、SiO<sub>2</sub>膜が除去されるまでの時間をXPSにより測定してスパッタ速度を求めた。スパッタ速度はイオン電流密度と良い比例関係にあり、単位イオン電流密度(nA/mm<sup>2</sup>)当たり $1.34 \times 10^{-3}$ (nm/s)であった。このスパッタ速度計算法を適用して、ゲッター作用を持つTi偏析Nb膜表面におけるTiの組成回復速度を測定したところ、735Kにおいて50s程度で一原子層分のTiが供給されることがわかった。

## 1. はじめに

我々の研究室では、極高真空を発生させ清浄な表面で表面自由エネルギーにより駆動される現象の観測と、この現象を利用した材料開発を行っている<sup>(1)</sup>。そして、基板金属上に別の金属の薄膜を蒸着し、真空中で加熱すると基板元素が薄膜上に拡散して偏析する現象について報告をしてきた。Nb膜上にTiが偏析する場合の偏析挙動については既に報告している<sup>(2-4)</sup>が、この系では真空中の残留ガスに対するゲッター作用も見いだされている<sup>(5)</sup>。この系では、Tiの吸着活性が高いこととNb中では酸素の拡散係数が大きいことが相まって、比較的低温において効率の良いゲッター作用が得られると推測される。このような機能は表面にNbとTiの両原子が存在していることが必要であり、表面組成が破壊された場合には、組成がただちに回復することが重要である。そこで、Nb膜上のTi偏析層のイオンスパッタリング中の組成回復速度を測定し、ゲッター膜としての使用条件を明らかにすることを目指している。組成回復速度を定量的に測定するには、まず、スパッタリング速度を定量的に制御する必要がある。そこで、本研究では、イオンスパッタリング速度の空間的均一性や、イオン銃の条件によるスパッタリング速度の変化について、定量的に評価を行った。また、その結果を利用してNb膜上のTi偏析層の組成回復速度を測定した。

## 2 実験方法

## 2.1 スパッタリング速度の校正

イオンスパッタリング条件によりスパッタリング速度がどのように変化するかを定量的に調べるために、104nmの熱酸化シリコン膜

がシリコンウェーハー上に形成されているものを用いてX線光電子分光法(XPS)により種々のスパッタリング条件において酸化膜がスパッタリングされるまでの時間を測定した。Table 1にスパッタリング速度校正に用いた種々のスパッタリング条件を示した。イオンの加速電圧は2kVで一定とし、イオン電流とイオンビーム走査範囲を変化させた。電子線照射では酸化シリコン中の酸素が抜けてイオンビームによるスパッタリング以上にスパッタリングが進むことが知られている<sup>(6)</sup>が、XPSではその心配はない。用いたイオン銃はPHI社製04-303をイオン銃コントロールII-065で制御したもので、これにBalzers社製のサーモバルブコントロールRVG050を接続して、イオン化室のアルゴン圧力を一定に保つようになっている。イオン化室において、フィラメントからグリッドへの電子の引き出し電圧を200Vとし、フィラメントからグリッドへの電子電流であるエミッション電流を25mAにした状態で、エミッション電流測定計のスイッチを切り替えることにより、フィラメント-イオン引き出し電極(エクストラクター)間のイオン電流が測定できるようになり、電離真空計の原理と同様にしてイオン化室のアル

Table 1 conditions for the calibration of sputtering rate

ion current (nA)	raster area (mm <sup>2</sup> )	current density (nA/mm <sup>2</sup> )
10	1.0	10
20	1.0	20
30	1.0	30
40	1.0	40
50	1.0	50
50	2.25	22.2
50	4.0	12.5
50	6.25	8.0
50	9.0	5.56

ゴン圧を測定するようになっている。このイオン電流の出力を用いて、バルブコントロールはアルゴン圧が一定になるようにバリアブルリークバルブを加熱して熱膨張によりリークバルブからイオン化室へのアルゴンリーク量を制御し、イオン化室のアルゴン圧を保つようになっている。実験は、エミッション電流を25mAにした状態でイオン化室のアルゴン圧力が15mPaと計測される状態までアルゴンを導入して、すべてのスパッタリングを行った。イオン電流の測定は約0.07mm<sup>2</sup>のホールを持つサンプルホルダー（ファラデーカップ）のホールの中にはいったイオンの電流を計測することによって行った。イオン加速電圧が2kVにおいて、レンズ系によりビームを絞ることによりエミッション電流25mAで50nAのイオン電流が得られた。ファラデーカップを移動させてイオン電流の変化を測定したところ、イオン電流は位置が中心からのずれると非常に敏感に減少した。0.63mm離れたところではイオン電流は3分の1まで減少した。したがってイオンビームは良く絞られていることがわかる。そこで本報告では、ファラデーカップで測定された電流値をイオン走査面積で割ってイオン電流密度とした。走査していないときのイオンビームの電流の分布幅をxとすると、スパッタクレーターの平らな部分の距離は、走査距離-x、となり、スパッタクレーター斜面の傾斜の微分がイオンビーム形状になるはずである。実験的には、種々の走査範囲におけるスパッタクレーターの平らな部分の距離とスパッタクレーター斜面の傾斜の微分形状にはばらつきが大きい、xはせいぜい1mmぐらいである。中心から外れた部分でもイオン量に比例してスパッタリングが起こるとすると、ファラデーカップに入らず電流値として計測されなかったがスパッタリングに寄与したイオン量は計測値の3倍以内と推定される。従って、ファラデーカップで測定された電流値をイオン走査面積で割ってイオン電流密度としたことによるイオン電流密度の誤差は、実際のイオン電流密度の3倍以内に収まっている。エミッション電流は25mAに保ったまま、イオン走査範囲を1~9mm<sup>2</sup>まで変化させることによりイオン電流密度を変化させた。また、イオン走査範囲は1mm<sup>2</sup>で一定として、エミッション電流を変えることによりイオン電流を10~50nAまで変化させた。スパッタ速度は、XPSで基板からの単体状シリコンのSi2pピークと酸化膜の酸化シリコン状

Si2pピークの比が1:1になるところを界面とし、ここまでのスパッタリング時間から求めた。また、スパッタリング終了後、試料を取り出しスパッタクレーターの様子を光学顕微鏡で観察するとともに、段差計を用いてスパッタクレーターの形状を測定した。なお、本実験でイオンは試料法線に対して40度の角度で入射している。

## 2. 2 組成の測定

表面組成は、MgK $\alpha$ 線を励起源とするXPSにより測定した。エネルギー分析器と試料法線のなす角は45度、エネルギー分析器とX線源のなす角は54.7度で測定した。分析面積は、R2 (4mm<sup>2</sup>) より広い走査範囲でスパッタしているときは1.1mm $\phi$ 、これより狭い走査範囲でスパッタしているときは0.6mm $\phi$ を用いた。Nb膜上のTi偏析層の表面組成は、純金属の光電子ピークの面積強度から求めた相対感度を用いて計算した。本実験では、Ti2p (結合エネルギー465~450eV) とNb3d (結合エネルギー209~199eV) のピークを用い、その相対感度は1:1.341であった。表面組成の情報が得られる深さは光電子のエネルギーに依存するが、TPP-2法による計算では、それぞれ単体中の非弾性平均自由行程はTi2pは1.93nm、Nb3dは2.34nmである<sup>(7)</sup>。

## 2. 3 組成回復速度の測定

実験は、Tiが偏析した表面を一定温度に保ちながら、アルゴンイオンスパッタリングにより既知の速度で剥がしつつ表面組成を観測するもので、スパッタリング速度を変化させたり、温度を変化させたりすることによって、偏析層の回復速度が明らかになる。具体的な実験手順としては以下のように行った。まず、粒径0.25 $\mu$ mのダイヤモンドペーストで機械研磨したTi板をアセトン中で超音波洗浄し、この上に膜厚約1 $\mu$ mのNb膜を高周波マグネトロンスパッタ蒸着法により蒸着し試料とした。蒸着条件は以前の実験と同じである<sup>(2)</sup>。この試料をXPS装置中で、まず820KでTiが表面で飽和偏析するまで(60Ti原子%)加熱した。次に、設定温度まで温度を下げ、スパッタリングを開始するとともにXPSの測定も開始した。XPSの測定は結合エネルギー1000~0eVの範囲で行い、測定には2分間を要した。XPS測定中もスパッタリングを行ったままであり、3分おきに測定をスタートした。測定は、スパッタリング時間1800sまで行った。以上の

Table 2 sputtering conditions for the measurements

condition name	raster area (mm <sup>2</sup> )	current density (nA/mm <sup>2</sup> )
R1.5	2.25	22.2
R2	4.0	12.5
R3	9.0	5.56
R4	16.0	3.13
R4(20nA)	16.0	1.25

実験を、イオンスパッタリング条件を制御することによりTable2に示すようにイオン電流密度を1.25~22.2nA/mm<sup>2</sup>まで変化させて、また、試料のスパッタリング中の設定温度を室温、640K、690K、735K、775K、810Kと変化させて行った。

### 3. 結果

#### 3. 1 スパッタリング速度

まず、エミッション電流を25mAにした状態でイオン化室のアルゴン圧力が15mPaと計測される状態までアルゴンを導入して、エミッション電流を変化させたときに得られるイオン電流がどのように変化するかを調べた。その結果がFig.1である。エミッション電流を25mAから徐々に小さくしていくと、あるところでイオン化室で発生しているプラズマが不安定になり、急激にイオン電流が減少する。逆に、エミッション電流を小さい方から徐々に大きくしていくときは、何かきっかけがないとなかなかプラズマが立たないが、あるところでプラズマが立ちイオン電流が急激に増加する。従って、エミッション電流を減少させていくときと増加させていくときとは、図のようにヒステリシスが見られたが、このヒステリシス自体の再現性は高かった。この図を用いて、エミッション電流を減少することにより、得られるイオン電流を制御した。

次に、イオン電流を50nAで一定とし、イオン走査範囲を変化させたときの、走査面積とスパッタリングに要した時間の関係をFig.2に示した。イオン走査範囲とスパッタリング時間との間にはよい比例関係がある。このことは、イオン電流密度がイオン走査範囲の逆数に、スパッタリング時間がスパッタリング速度の逆数に比例することから、イオン電流密度とスパッタリング速度との間に良い比例関係が成立していることを示している。

イオン走査範囲を1mm<sup>2</sup>で一定とし、イオン電流を変化させたときの、イオン電流とスパッタリング速度との関係をFig.3に示した。図に見られるように両者の間にはよい比例関

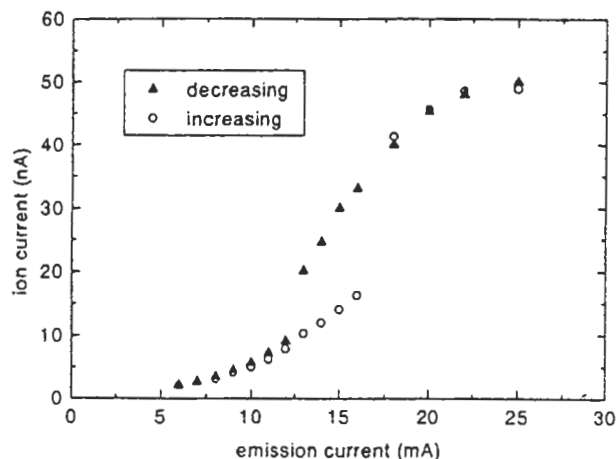


Fig.1 Relation between emission current and ion current

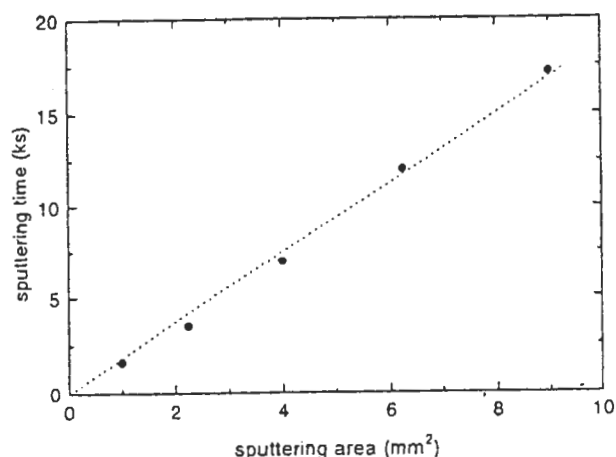


Fig.2 Relation between sputtering area and sputtering time

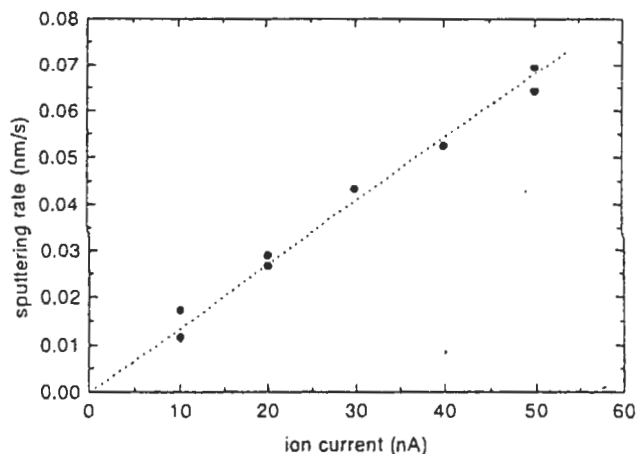


Fig.3 Relation between ion current and sputtering rate

係がある。

イオン電流を変化させたときと、イオン走査範囲を変化させたときの両方の結果を、横軸をイオン電流密度で統一してプロットしたものがFig. 4である。この図から、スパッタ速度はどのような方法によってもイオン電流密度に比例していることがわかる。また、直線の傾きから、単位イオン電流密度 ( $\text{nA}/\text{mm}^2$ ) 当たりのスパッタ速度は  $1.34 \times 10^{-3}$  ( $\text{nm}/\text{s}$ ) であることがわかる。

### 3. 2 スパッタリングクレーターの形状

Fig. 5には、スパッタリング後のシリコン板の写真を示した。イオン銃が試料法線に対し40度の角度で入射しているため、スパッタリングクレーターは長方形をしているが、イオン走査範囲に忠実にクレーターが形成されていることがわかる。ここでは、角度の効果でスパッタリング領域が長方形になることを無視して、R1は  $1\text{mm} \times 1\text{mm}$ 、R2は  $2\text{mm} \times 2\text{mm}$ 、等の走査範囲として扱う。スパッタクレーターの光学顕微鏡による観察から、R1では写真a)のように長方形の端がだれているが、これより走査範囲を大きくした場合には写真b)のR2程度のシャープな端が得られていることがわかった。

R2のスパッタリングクレーターについて、段差計を用いてそのスパッタリングの均一性を調べた結果がFig. 6である。Fig. 5に示したようにスパッタリングクレーターは長方形をしており、クレーターの形状はイオンの入射方向によって異なると考えられるので、Fig. 6ではクレーターの長軸方向短軸方向それぞれについて、2方向から調べた結果を示している。スパッタリングされていない両端の部分が左右で同じ高さになっていないのは、Si板自体が段差計に対してわずかに傾いているためである。両端を直線で結んでスパッタされる前の高さとする、酸化シリコン膜の厚さ  $104\text{nm}$  にほぼ相当する深さのクレーターが生成していることがわかる。また、クレーターの底の深さはかなり広い領域にわたってほぼ均一であることもFig. 6より見て取れる。このように均一にスパッタリングされるので、Fig. 4のようにイオン電流密度とスパッタ速度との間に良い比例関係が得られたと考えられる。平均的には均一な深さのクレーターとなっているが、場所によっては酸化シリコンから成る数  $\mu\text{m}$  の不規則な形をした粒子や数百  $\text{nm}$  の突起が生成していることが、二次電子像

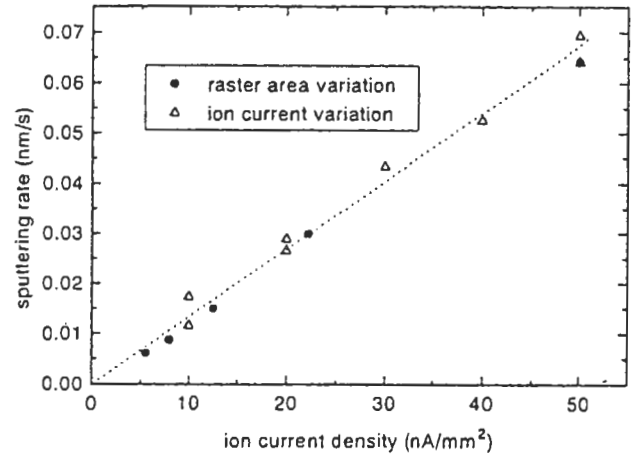


Fig.4 Relation between ion current density and sputtering rate

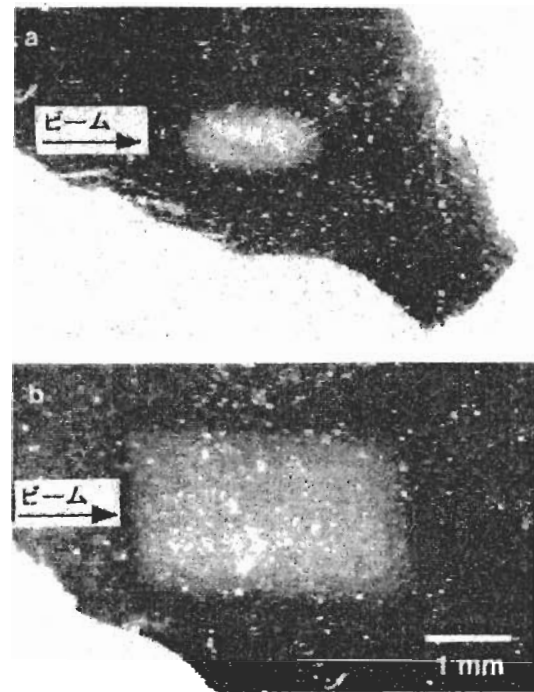


Fig. 5 Photos of sputtering craters  
a) R1: b) R2

及びオージェ点分析によりわかった。Fig. 6のクレーターの底の部分に見られるパルス状のノイズのような線は、段差計の探針がこれらの粒子や突起に引っかかってできたものである。

### 3. 3 組成回復速度の測定

Fig. 7には、設定温度を室温 (a) と  $735\text{K}$

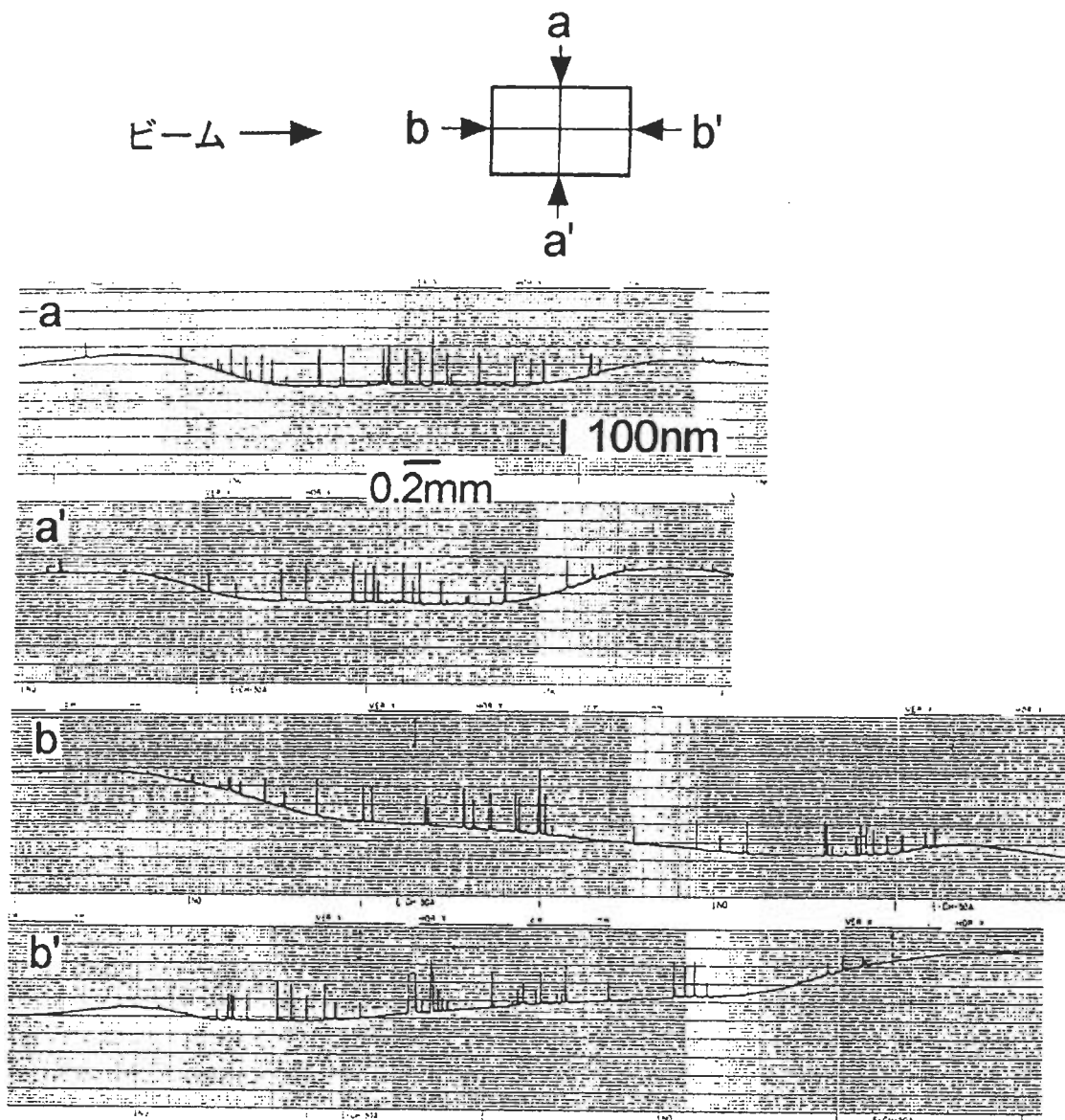


Fig. 6 Profiles of a sputter crater

(b)にした場合の、スパッタリング中のTiの表面濃度の変化を、様々なスパッタリング条件下で測定した結果を示す。スパッタリング条件はR2などの記号で示されているが、各記号に対応するイオン電流密度はTable 2に示してある。なお、以下、スパッタリング速度はすべてSiO<sub>2</sub>における速度を用いて議論する。イオンのエネルギー500eVで垂直入射の場合には、SiO<sub>2</sub>とTiのスパッタリング速度はともに33nm/min.となっている<sup>(8)</sup>ので、本実験の条件下でSiO<sub>2</sub>における速度を用いても、それほど大きな誤差は生じないと思われる。

室温ではTiの組成回復は起こっておらず、Fig. 7 (a)に見られる濃度の時間変化は単純にスパッタ速度に依存して表面のTi濃縮層が

剥ぎ取られているものと思われる、R1.5では1000s程度でほぼTi層はなくなっている。735KにおけるTi濃度は、どのスパッタリング条件で比較しても室温での結果より高くなっており、スパッタリングにより除去されてもTiが供給されていることがわかる。また図より、735Kでは、R3とR4の間のスパッタリング条件で、スパッタリング速度と組成回復速度が同程度になっていることも明らかである。R3、R4の条件におけるスパッタリング速度は、それぞれ、 $7.5 \times 10^{-3}$ nm/s、 $4.15 \times 10^{-3}$ nm/sなので、735Kにおいては、一原子層の厚さ約0.3nmのTi層を回復するのに必要な量のTiが50s程度の時間で供給されることが明らかになった。

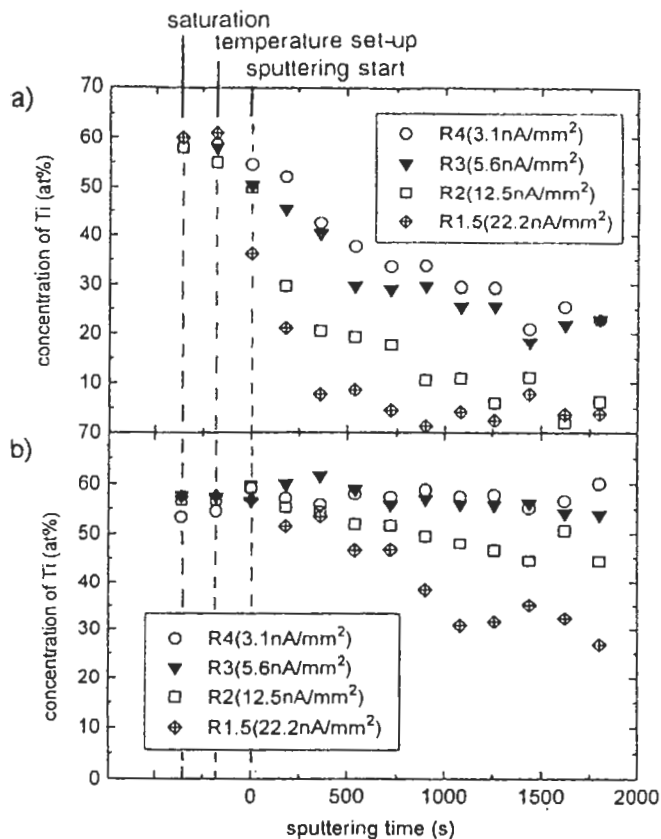


Fig.7 Surface concentration of Ti under ion irradiation  
a) room temperature: b) 735K

#### 4. まとめ

スパッタリング条件がスパッタリング速度に及ぼす影響を定量的に把握するため、シリコン上に104nmの熱酸化シリコン膜が形成されている試料を用いて種々のスパッタリング条件でアルゴンイオンスパッタを行った。酸化シリコン膜が除去されるまでの時間をXPSにより測定してスパッタ速度を求め、スパッタクレーターの形状を光学顕微鏡及び段差計により観測した。その結果、イオン走査領域に忠実に均一な深さのスパッタクレーターが形成されており、スパッタ速度はイオン電流密度と良い比例関係にあることが明らかになった。また、実験を行った2kVのアルゴンイオンでは、スパッタ速度は単位イオン電流密度 ( $\text{nA}/\text{mm}^2$ ) 当たり、 $1.34 \times 10^{-3}$  (nm/s)であった。この値を用いれば、どんなスパッタリング条件でもイオン電流密度を測定するだけでスパッタ速度を計算することができる。

上記のスパッタ速度計算法の適用として、Getter作用を持つTi偏析Nb膜表面において、種々のスパッタリング条件下でスパッタリングしながらTiの表面組成をXPSで測定することにより、Tiの組成回復速度を求めた。その

結果、735Kにおいて50s程度で一原子層分のTiが供給されることがわかった。

#### 参考文献

- (1) 吉武道子, JSA, 2, 177(1996).
- (2) 吉武道子, 吉原一紘, 日本金属学会誌, 54, 1013(1990).
- (3) 吉武道子, 吉原一紘, 日本金属学会誌, 56, 89(1992).
- (4) 吉武道子, 吉原一紘, 日本金属学会誌, 58, 768(1994).
- (5) 吉武道子, 吉原一紘, 真空, 33, 198(1990).
- (6) 藤原純, 吉原一紘, 新居和嘉, 表面科学, 8, 148(1987).
- (7) S. Tanuma, D. R. Penn and C. J. Powell, Surf. Interf. Anal., 11, 577(1988).
- (8) 志水隆一, 吉原一紘編: 实用オーグ電子分光法, 共立出版, 234(1989).

The quantitative evaluation of sputtering rate and its application to measurement of recovering rate of segregated layer on film surface

Michiko Yoshitake and Kazuhiro Yoshihara  
National Research Institute for Metals  
1-2-1, Sengen, Tsukuba 305 Japan

$\text{SiO}_2$  layer on Si wafer formed by thermal oxidation was sputtered by 2 kV argon ion under various sputtering conditions. The sputtering rate at each condition was obtained by the time used to sputter away  $\text{SiO}_2$  layer. It is concluded that the sputtering rate is proportional to ion beam current and the proportional constant is  $1.34 \times 10^{-3}$  (nm/s) per ion current density of  $\text{nA}/\text{mm}^2$ . By using this relation, the recovering rate of Ti surface concentration on Ti-segregated Nb-film, which gets residual gas, was measured. The time to recover one atomic Ti layer at 735 K was obtained to be approximately 50 seconds.

「スパッタリング速度の定量的評価とそれを用いた表面組成回復速度の測定」

著者：吉武道子・吉原一紘 に対するコメント

査読者：田中（アルバックファイ）

査読者：

全体を通して

実験条件を煮詰め、Tiの表面偏析速度を巧妙な実験で計測されています。特に、スパッタエッチング速度とのバランスで偏析速度を計測されたのは、精度の高い計測を可能にする可能性があると感じました。

実験条件を再現が可能になるようにという思想かと思いますが、かなり正確に記述していただきました。横着な記述であるために、再現実験は事実上不可能な記述が世の中には氾濫しているように思います。それに対して、このような記述が一般化して、同一装置でなくとも再現ができるか否か、あるいは手持ちの装置で再現実験を行える可能性があるのか否かというような検討が可能になることは重要なことと思います。そのような点も含めて、貴重な論文であると思います。

記述の方法・数値に疑問を感じた点がありました。ご検討下さい。

p.2 左カラム

line 13-15 「イオン電流の測定は約0.07mm<sup>2</sup>のホールを持つサンプルホルダー（ファラデーカップ）」

元々は0.05mm<sup>2</sup>の穴を設けており、nA単位で読みとった穴を通る電流値を二倍すれば、そのままμA/cm<sup>2</sup>と読み替えることができるように細工がしてあるものです。この0.07という値は、長い間のご利用で、穴径が20%ほど大きくなり約0.3mmとなっていたのでしょうか？

著者：確かにマニュアルには0.05mm<sup>2</sup>と書いてありますが、目視でどうもそれより大きいように思われたので、Olympusの光学顕微鏡とそれに付属するスケールを用いて穴径を実測した結果、約0.07mm<sup>2</sup>となっていることがわかりました。

査読者：line 20-35 「ファラデーカップを移動させて・・・イオン電流は全体の約27%に相当する。」

→Stylusを用いた形状測定を実施なさっていらっしゃると思いますので、推定だけではなく合致するか否かを検討できる状態かと存じます。この場合、Stylus profilometryの結果を微分したものがイオンビームの形状になると思うのですがいかがでしょうか？

著者：原理的にはおっしゃるとおりだと思います。査読用に送付されたStylusを用いた形状測定のデータが鮮明だったかどうかわかりませんが、実

際のデータではクレータ周辺へのスパッタ粒子の再蒸着によると思われる盛り上がりなどが見られ、クレータ側面の形状は場所依存性が大きくなっています。そのため、推定に留めました。これらの説明を本文に付け加えました。

査読者：line 33-35 「ファラデーカップで測定しているイオン電流は全体の約27%に相当する。」  
→静止ビームの中心を穴の中心に合わせた状態としてこの記述は理解できます。ところが、現状では静止状態で使われているビームではなく、1.5mm～4mmのラスティングが行われています。つまりビームをラスターしている状態での計測と、ビームプロファイルの計測とが整合しているようには読みとれませんでした。ために、少々意味をつかみかねた点がございました。ご検討をいただきたく思います。

著者：ファラデーカップで測定しているイオン電流値をどのようにイオン電流密度の計算に使っているか、ファラデーカップに入らなかったイオンによるスパッタの影響をどのように扱って、上のイオン電流密度の計算方法が実際とどれだけの誤差を生じ得るか、が理解されるよう表現をかなり修正しました。

査読者：line 47-50 「XPSで基板からの単体状シリコンのSi2pピークと酸化膜の酸化シリコン状Si2pピークの比が1：1になるところを界面とし」

→確かに、Siをスパッタエッチングする場合には、酸化層から下地シリコンへと移るときに合計のピーク面積はほとんど一定値を保ちます。従って、試料がSiO<sub>2</sub>/Siという系であるときに限ってこの記述は正しいのですが、手続きとしての一般性がありません。やはり、「酸化層ピークの面積が1/2となり、かつ下地信号の面積も十分にエッチングして一定になった値の1/2になるまでのエッチング時間を界面に至るまでの平均時間」と記述するのが良いのではないのでしょうか。このような記述ならば、λに比べて十分に厚い皮膜を持つ試料系の界面までの平均エッチング時間を求めるための記述として一般性があると思います。

著者：おっしゃるとおり、ピーク面積そのものの値で評価すれば一般性のある記述になったと思います。が、残念ながら、実際の実験時に、X線源と試料の位置が測定ごとに変化しているなど、ピーク面積の絶対値に意味を持たせられる条件で実験を行っていません。そこでピーク比のみを指標として実験を行いました。

査読者：イオン銃と試料法線のなす角

→確か、NRIMの5400MCは、イオン銃の取り付け角が、鉛直線から40degの傾斜角、21degの回転方位角となっていたかと思いますが。この記憶が正しけ

れば、試料を水平に置いている今回の実験では、試料法線と入射イオンのなす角は40degのはずで、この値はエッチング速度に効きますので記述されるべきかと存じます。

(拝読して、どこかに45degという記述があったように思ったのですが、どちらが正しいか、小生の持っているだけのデータでは分かりませんでした。)

著者：マニュアルに角度記載がなく、目視測定では45度ぐらいだったのですが、問い合わせた結果40度ということなので、イオンスパッタの項目に記述を加え、かつクレター形状の項で記述している値を修正しました。

査読者：2.2組成の測定

line 16-18 「TPP-2法による計算では、Ti2pは1.93nm、Nb3dは2.34nmである。」

→それぞれ、imfpを考えるべきmatrixはどちらなのでしょうか？ この場合、どちらも検討できる余地があり、本文の記述からは分かりませんでした。

著者：この偏析層の構造は非常に複雑で（調べた結果は文献にあげてあります）、どちらのマトリックスで議論しても正しいといえないので、単体中のIMFPの数字をあげました。この数字が単体中のIMFP値であることを明記するよう原稿を修正しました。

査読者：細かい点で、推敲をお願いしたいと感じる点がありました。editorialな点が大半ですが、よろしくをお願いしたいと存じます。私流だとこんな風ですという例を記しましたが、ご参考になりますでしょうか？

1.はじめに

line 9-11 「この系では真空中の残留ガスに対するゲッター作用も見いだしている。」

→・・・も見いだされている。

著者：ご指摘のように修正しました。

査読者：line 11-15 「この系では、Tiの吸着活性が高いこととNb中では酸素の拡散係数が大きいことを利用することによって、比較的低温において効率の良いゲッター作用が得られると推測される。」

→・・・拡散係数が大きいことと相まって、比較的低温においても効率の良い・・・。

著者：ご指摘のように修正しました。

査読者：句点や読点が行頭に出ている部分や英文

字が途中で切れている部分はかなり沢山あります。元素記号や数値、単位などを半角文字に変更すると解決できるところが多いように思いました。いただいたFaxの気づいた場所には矢印を記入してあります。ご検討下さい。

著者：元素記号や数値、単位などの記述について半角にして、見やすいようにしました。

査読者：2. 実験方法

2.1 スパッタリング速度の較正

p.1右カラム

line 1 「1 0 4 n m」→半角文字とすれば、その後のTable1も切れなくなると思います。

著者：この箇所のみでなく、文字の半角化と単語の切れに気をつけて修正しました。

査読者：line 5-7 「Table1に示したのがスパッタリング速度較正に用いた種々のスパッタリング条件である。

→Table1にスパッタリング速度較正に用いた種々のスパッタリング条件を示した。」

著者：ご指摘のように修正しました。

査読者：line 8 「イオンの加速エネルギーは2kV」→「・・・加速電圧は・・・」もしくは「イオンのエネルギーは2keV」

著者：「・・・加速電圧は・・・」に修正しました。

査読者：line 14 「パーキンエルマー社製」

→パーキンエルマーの事業部から独立した会社になっておりますので、「フィジカルエレクトロニクス社製」、「Physical Electronics社製」、「PHI社製」というような当たりからお選び下さい。

著者：「PHI社製」に修正しました。

査読者：line 25 - p.2 左カラム line 1 「エクストラクター」

→カタカナ化する場合にはローマ字読みすることが多く「エクストラクター」としている場合が多いのではないのでしょうか？ 用語の統一のようなことも考えるべき立場になってしまっておりますので、敢えてお尋ねします。

著者：ご指摘のように「エクストラクター」と修正しました。

査読者：2.2組成の測定

line 12-13 「Ti2p(405~450eV)とNb3d(209~199eV)」

→エネルギー範囲を記述する向きが統一されてい



ません。大→小 もしくは 小→大 のいずれかに統一下さい。またXPSを生業としていれば、この数値がBinding Energyであることは自明なのですが、黙ってEnergyというときには、原則的には Kinetic energy, potential energy, free energyのようなのを指し、binding energyを無条件に示すことはあまりないと思います。その意味で、binding energyであることを明記なさるか、MgK $\alpha$  X線を用いていることは明記されてありますのでkinetic energyで記述するかのどちらかかと思います。後の記述では結合エネルギーと明記なさっていますので、前者かと思いますが・・・。

著者：原稿は「Ti2p(465～450eV)とNb3d(209～199eV)」で大→小としてあります。たぶんFAXが不鮮明だったのだと思います。ご指摘のように、結合エネルギーであることを明記するようにしました。