## CC BY

http://dx.doi.org/10.35596/1729-7648-2023-21-3-17-25

Оригинальная статья Original paper

УДК 621.793; 621.3.049.77

# МОДЕЛЬ ПРОЦЕССА РЕАКТИВНОГО МАГНЕТРОННОГО РАСПЫЛЕНИЯ ДВУХКОМПОНЕНТНОЙ СОСТАВНОЙ МИШЕНИ

## Х. Т. ДОАН<sup>1</sup>, Д. А. ГОЛОСОВ<sup>1</sup>, ДЖ. ДЖАНГ<sup>2</sup>, С. М. ЗАВАДСКИЙ<sup>1</sup>, С. Н. МЕЛЬНИКОВ<sup>1</sup>, Т. Д. НГУЕН<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Белорусский государственный университет информатики и радиоэлектроники (г. Минск, Республика Беларусь) <sup>2</sup>Сианьский политехнический университет (г. Сиань, Китайская Народная Республика) <sup>3</sup>Вьетнамский государственный технический университет имени Ле Куй Дона (г. Ханой, Социалистическая Республика Вьетнам)

Поступила в редакцию 12.04.2023

© Белорусский государственный университет информатики и радиоэлектроники, 2023 Belarusian State University of Informatics and Radioelectronics, 2023

Аннотация. В статье предложена модель для прогнозирования содержания металлических составляющих пленок сложных оксидов, наносимых методом реактивного магнетронного распыления двухкомпонентной составной мишени в среде Ar/O<sub>2</sub> рабочих газов. В модели учитывались коэффициенты распыления и ионно-электронной эмиссии распыляемых металлов и их оксидов, распределение плотности ионного тока на мишени и скорости химической реакции образования оксидов этих металлов. Для верификации предложенной модели проведены исследования элементного состава пленок оксида титана-алюминия, нанесенных магнетронным распылением Ti-Al составной мишени в среде Ar и Ar/O<sub>2</sub> рабочих газов. Установлено, что модель адекватно описывает изменение содержания металлов в нанесенных пленках при изменении потока кислорода в камеру. Погрешность моделирования – не более 10 %, что позволяет применять модель для прогнозирования содержания металлов в пленке при реактивном распылении двухкомпонентных составных мишеней.

**Ключевые слова:** реактивное магнетронное распыление, составная мишень, тонкие пленки, элементный состав, модель реактивного распыления, оксид титана-алюминия.

Конфликт интересов. Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

Благодарность. Исследования выполнены в рамках совместных научных проектов № Т22КИТГ-023 (2022YFE0123400) и № Т22КИТГ-027 (2022YFE0122900) при финансовой поддержке Белорусского республиканского фонда фундаментальных исследований и Министерства науки и технологии Китайской Народной Республики.

Для цитирования. Модель процесса реактивного магнетронного распыления двухкомпонентной составной мишени / Х. Т. Доан [и др.] // Доклады БГУИР. 2023. Т. 21, № 3. С. 17–25. http://dx.doi.org/10.35596/1729-7648-2023-21-3-17-25.

## MODEL OF REACTIVE MAGNETRON SPUTTERING OF A TWO-COMPONENT COMPOSITE TARGET

## HOANG T. DOAN<sup>1</sup>, DMITRIY A. GOLOSOV<sup>1</sup>, JIN ZHANG<sup>2</sup>, SERGEY M. ZAVADSKI<sup>1</sup>, SERGEY N. MELNIKOV<sup>1</sup>, TUYEN D. NGUYEN<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Belarusian State University of Informatics and Radioelectronics (Minsk, Republic of Belarus) <sup>2</sup>Xi'an Polytechnic University (Xi'an, People's Republic of China) <sup>3</sup>Le Quy Don Technical University (Hanoi, Socialist Republic of Vietnam)

Submitted 12.04.2023

Abstract. The article proposes a model for predicting the content of metal components of complex oxide films deposited by reactive magnetron sputtering of a two-component composite target in  $Ar/O_2$  gas mixture. The model takes into account the sputtering yield and ion-electron emission coefficients of the sputtered metals and their oxides, the distribution of the ion current density on the target, and the rate of the chemical reaction of the formation of oxides of these metals. To verify the proposed model, studies of the elemental composition of titanium-aluminum oxide films deposited by magnetron sputtering of a Ti-Al composite target in Ar and  $Ar/O_2$  gas mixture were carried out. It has been established that the model adequately describes the change in the content of metals in the deposited films with a change in the oxygen flow into the chamber. The simulation error does not exceed 10 %, this makes it possible to use the proposed model for predicting the content of metals in a film during reactive sputtering of two-component composite targets.

**Keywords:** reactive magnetron sputtering, composite target, thin films, elemental composition, reactive sputtering model, titanium-aluminum oxide.

Conflict of interests. The authors declare no conflict of interests.

**Gratitude.** The research was carried out within the framework of joint scientific projects No T22KITG-023 (2022YFE0123400) and No T22KITG-027 (2022YFE0122900) with the financial support of the Belarusian Republican Foundation for Basic Research and the Ministry of Science and Technology of the People's Republic of China.

**For citation.** Doan H. T., Golosov D. A., Jin Zhang, Zavadski S. M., Melnikov S. N., Nguyen T. D. (2023) Model of Reactive Magnetron Sputtering of a Two-Component Composite Target. *Doklady BGUIR*. 21 (3), 17–25. http://dx.doi.org/10.35596/1729-7648-2023-21-3-17-25 (in Russian).

### Введение

Сложные оксиды представляют собой семейство материалов, которые в зависимости от состава и структуры обладают множеством различных свойств, включая ферромагнетизм, сегнетоэлектричество, пьезоэлектричество, высокотемпературную сверхпроводимость, гигантское магнитосопротивление и их комбинации, такие как мультиферроичность [1]. Данные оксиды находят все большее применение в качестве функциональных слоев не только в сенсорах, устройствах катализа, преобразования и хранения энергии, но и в микроэлектронике. В настоящее время улучшение функциональных свойств пленок сложных оксидов в основном происходит за счет расширения их спектра и усложнения состава [2]. Однако свойства таких материалов крайне чувствительны к элементному составу и структурному устройству. Это предъявляет жесткие требования к процессу формирования пленок. Метод нанесения должен обеспечивать воспроизводимое от процесса к процессу повторение структуры, элементного и фазового составов наносимых слоев.

Одним из перспективных способов формирования пленок сложных оксидов является метод реактивного магнетронного распыления составных мишеней, т. е. мишеней, состоящих из матрицы одного металла со вставками других металлов [3]. Метод позволяет получать многокомпонентные пленки с произвольным количеством и содержанием элементов при использовании одного магнетрона. Главный недостаток данного метода – сложность подбора размера вставок для получения требуемого содержания элементов в пленке. Практика показывает, что при магнетронном распылении составных мишеней состав наносимых пленок зависит от ряда факторов (площади вставок, коэффициента распыления каждого из элементов, распределения плотности ионного тока на мишени, энергии бомбардирующих мишень ионов и т. д.) [4]. При реактивном распылении процессы в камере значительно усложняются, и состав наносимых пленок также зависит от реакционной способности материалов мишени и давления реактивного газа. В данном случае применение методов компьютерного моделирования является единственным способом

для определения оптимальных размеров элементов составной мишени и параметров процесса нанесения с точки зрения получения пленок с заданным составом [5].

Для прогнозирования состава наносимых пленок при реактивном магнетронном распылении был предложен ряд моделей, которые в основном базируются на принципах, описанных С. Бергом в [6]. В этой модели проанализированы потоки распыленного материала и реактивного газа, скорости хемосорбции реактивного газа поверхностями мишени, подложками и стенками вакуумной камеры, что позволяет для заданного тока разряда магнетрона и расхода реактивного газа рассчитать скорость нанесения и среднюю стехиометрию наносимых пленок. В последующих работах модель Берга применялась для моделирования процессов нанесения пленок ряда оксидов и нитридов. Однако большинство этих работ было сосредоточено на моделировании реактивного нанесения пленок простых оксидов или нитридов. И только несколько статей посвящено моделированию и прогнозированию состава многокомпонентных пленок [7–10]. При этом отсутствуют работы по прогнозированию состава наносимых пленок при реактивном магнетронном распылении составных мишеней. Таким образом, целью исследований авторов статьи являлась разработка математической модели для прогнозирования состава металлических компонентов пленки тройных систем, таких как Me<sub>1-x</sub>Me<sub>x</sub>O<sub>y</sub>, наносимых реактивным магнетронным распылением составной мишени, состоящей из двух металлов.

#### Описание модели

В рассматриваемой модели предполагается, что составная планарная мишень распыляется аксиальной магнетронной распылительной системой (МРС). Мишень состоит из двух металлов A и B (рис. 1), распыляется в среде Ar/O<sub>2</sub> рабочих газов при давлении в камере менее 0,1 Па. Из-за низкой энергии ионов распыление происходит только из самых верхних атомных слоев и только в виде атомов. Эмиссия частиц более высокого порядка (кластеров Me<sub>2</sub>O, MeO и т. д.) на два порядка меньше, чем скорость распыления атомов, и поэтому в модели не учитывалась. Распыление мишени идет только в зоне распыления (рис. 1, a). В MPC зона распыления определяется конфигурацией магнитной ловушки и для аксиальных планарных магнетронов представляет собой кольцо, ограниченное двумя радиусами  $R_{min}$  и  $R_{max}$ . При равномерном распределении плотности бомбардирующих мишень ионов в зоне распыления скорость распыления каждого из материалов должна быть пропорциональна площадям, занимаемым частями мишени в зоне распыления. Однако в MPC распределение плотности бомбардирующих мишень и плотности бомбардирующих мишень и онов неравномерное (рис. 1, b).



**Puc. 1.** Схема составной мишени (a) и распределение плотности ионного тока на ее поверхности (b) **Fig. 1.** Scheme of a composite target (a) and distribution of the ion current density on the target surface (b)

Плотность ионного тока имеет максимум на радиусе  $\overline{R}$  и спадает до нуля по краям зоны распыления на радиусах  $R_{\min}$  и  $R_{\max}$ . В планарных аксиальных MPC распределение плотности ионного тока на поверхности мишени с достаточной точностью может быть аппроксимировано симметричной гауссианой

$$j_{i}(r_{1}) = \frac{I_{i}}{\sqrt{2\pi^{3}(R_{\min} + R_{\max})\sigma}} \exp\left[-\frac{(r_{1} - \overline{R})^{2}}{2\sigma^{2}}\right], \sigma = \frac{R_{\max} - R_{\min}}{6},$$
(1)

где  $r_1$  – текущий радиус точки распыления;  $I_i$  – ионный ток мишени, который связан с током разряда магнетрона  $I_t$  соотношением

$$I_i = \frac{I_t}{1 + \gamma_t},\tag{2}$$

*γ<sub>t</sub>* – коэффициент ионно-электронной эмиссии материала мишени.

При распылении в среде Ar скорость распыления материала

$$v = \frac{I_i}{e} Y_i, \tag{3}$$

где  $Y_t$  – коэффициент распыления материала мишени; e – заряд электрона,  $e = 1.6 \cdot 10^{-19}$  Кл.

В случае распыления двух материалов количество распыленных атомов с каждой части мишени определяется количеством бомбардирующих эту часть мишени ионов и коэффициентом распыления каждой из частей мишени:

$$\mathbf{v}^{A} = \frac{I_{i}^{A}}{e} Y_{t}^{A}; \quad \mathbf{v}^{B} = \frac{I_{i}^{B}}{e} Y_{t}^{B}, \tag{4}$$

где  $I_i^A, I_i^B, Y_t^A, Y_t^B$  – частичные ионные токи и коэффициенты распыления частей мишеней A и B соответственно.

В случае распыления двух материалов частичные ионные токи можно рассчитать по формулам:

$$I_{i}^{A} = \int_{S} j_{i}^{A}(r_{1}, \theta) dS; \ I_{i}^{B} = \int_{S} j_{i}^{B}(r_{1}, \theta) dS,$$
(5)

где  $j_i^A$ ,  $j_i^B$  – плотности ионного тока, приходящиеся на части мишеней A и B;  $\theta$  – полярный угол на мишени.

Формулы (4), (5) позволяют рассчитать долю каждого из металлов в наносимой пленке при магнетронном распылении составной мишени в среде Ar. При условии, что все распыленные частицы достигают подложки и равномерно распределяются в растущей пленке, атомное содержание металлов *A* и *B*:

$$X^{A} = \frac{v^{A}}{v^{A} + v^{B}} 100; \quad X^{B} = \frac{v^{B}}{v^{A} + v^{B}} 100.$$
(6)

При реактивном магнетронном распылении к основному рабочему газу (Ar) в камеру добавляется реактивный газ (O<sub>2</sub>). В данном случае на поверхностях мишени, растущей пленки и стенках камеры происходят адсорбция реактивного газа и гетерогенная химическая реакция образования соединения. Скорость адсорбции реактивного газа поверхностью зависит от парциального давления реактивного газа  $p_R$  и температуры газа T

$$F_R = \frac{p_R}{\sqrt{2\pi k T m_R}},\tag{7}$$

где k – постоянная Больцмана,  $k = 1,38 \cdot 10^{-23}$  Дж/К;  $m_R$  – масса молекулы реактивного газа.

Химические реакции образования оксидов происходят на всех вовлеченных поверхностях (мишени, подложке, стенках камеры). Но на содержание металлов в пленке влияют только процессы на мишени. В результате химической реакции на поверхности мишени образуется пленка оксида. Однако на мишени одновременно с образованием пленки происходит ее удаление распылением. При этом в стационарном состоянии можно считать, что часть мишени  $\theta_t$  покрыта соединением с коэффициентом распыления  $Y_{Co}$ , а оставшаяся часть поверхности ( $1 - \theta_t$ ) не покрыта соединением и имеет коэффициент распыления чистого металла  $Y_{Me}$ . Бомбардирующий мишень поток ионов распыляет образующееся соединение с покрытой части поверхности мишени  $\theta_t$  и атомы металла с непокрытой ( $1 - \theta_t$ ) ее части. Мгновенный баланс частиц на поверхности мишени  $MeO_z$  на непокрытой ( $1 - \theta_t$ ) и распылением соединения с покрытой  $\theta_t$  частей поверхности. В данном случае уравнение для поверхности мишени приобретает вид

$$\frac{2}{z}\alpha_{s}F_{R}\left(1-\theta_{t}\right)=Y_{Co}\frac{I_{t}}{e\left(1+\gamma_{Co}\right)}\theta_{t},$$
(8)

где z – стехиометрический индекс кислорода в соединении;  $\alpha_s$  – коэффициент, учитывающий скорость химической реакции образования оксида;  $Y_{Co}$ ,  $\gamma_{Co}$  – коэффициенты распыления и ионно-электронной эмиссии оксида.

Решение этого уравнения позволяет определить степень покрытия каждой части мишени адсорбированными атомами реактивного газа. Зная степень покрытия соединением каждой части мишени, можно рассчитать скорость распыления металлов A и B. Металл распыляется как с непокрытых  $v_{Me1}$ , так и с покрытых  $v_{Me2}$  участков мишени за счет распыления соединения. Общее количество распыленных с определенного участка мишени атомов материала мишени

$$\mathbf{v} = \mathbf{v}_{Me1} + \mathbf{v}_{Me2}.\tag{9}$$

Количество атомов материала мишени, распыленных в единицу времени с участков, непокрытых и покрытых соединением, рассчитывается соответственно по формулам:

$$\mathbf{v}_{Me1} = Y_{Me} \frac{I_t}{e(1+\gamma_{Me})} (1-\theta_t); \ \mathbf{v}_{Me2} = \frac{Y_{Co}}{(z+1)} \frac{I_t}{e(1+\gamma_{Co})} \theta_t.$$
(10)

В случае распыления двух материалов с использованием формул (6)–(10) можно рассчитать долю каждого металла в нанесенной пленке при определенном парциальном давлении реактивного газа.

#### Верификация модели

Для верификации предложенной модели проведены исследования по нанесению пленок оксида титана-алюминия магнетронным распылением Ti-Al составных мишеней в среде Ar и Ar/O<sub>2</sub> рабочих газов. Схема экспериментальной установки представлена на рис. 2.



**Рис. 2.** Схема установки магнетронного нанесения тонких пленок FERO-001 **Fig. 2.** Experimental setup for magnetron deposition of thin films FERO-001

Камера вакуумной установки ВУ-1Б была оборудована МАРС.011-80 с мишенью Ø80 мм, ионным источником на основе торцевого холловского ускорителя ЕНРМ.100.005 и вращаемым подложкодержателем. Для распыления использовались Ti-Al-мишени с разным содержанием алюминия. Составные мишени TiAl-10 и TiAl-20 (рис. 3, *a*, *b*) представляли собой Ti-основу (99,5 % чистоты) Ø80 мм и толщиной 5 мм, в которую были впрессованы четыре цилиндрических Al-вставки (99,9 % чистоты). Вставки диаметрами 6 и 8 мм соответственно были равномерно распределены по диаметру 46 мм.



**Fig. 3.** Scheme of Ti-Al compound targets: a - TiAl-10; b - TiAl-20; c - TiAl-40; d - TiAl-70

Мишень TiAl-40 состояла из трех частей – центральной Al-вставки шириной 18,5 мм и двух боковых Ті-сегментов (рис. 3, с), ТіАl-70 – из центральной Ті-вставки шириной 30 мм и двух боковых Al-сегментов (рис. 3, d). При этом размеры Al-вставок подбирались так, чтобы атомное соотношение Al/Ti в наносимых пленках, рассчитанное по методике [4], составляло 1:9 для мишени TiAl-10, 2:8 – для TiAl-20, 4:6 – для TiAl-40 и 7:3 – для TiAl-70. В ходе экспериментов подложка из монокристаллического кремния *n*-типа ЭКЭС-0.01 (100) устанавливалась на подложкодержатель на расстоянии 120 мм от поверхности мишени магнетрона. Смещение оси подложкодержателя относительно оси магнетрона составляло 100 мм. Скорость вращения подложки 24,5 об/мин. Камера вакуумной установки откачивалась до давления 10-3 Па, и производилась ионная очистка подложек. Для этого в ионный источник подавался Аг, поток которого составлял 20 мл/мин. Время очистки, напряжение и ток разряда во всех экспериментах были постоянными: t = 2 мин,  $U_d = 90$  B,  $I_d = 6$  A. Затем наносили пленки. Распыление Ті-Аl-мишеней осуществлялось в Ar/O2 смеси газов при общем расходе газов 60 sccm и концентрации кислорода в смеси газов (Г<sub>02</sub>) от 0 до 25 %. Во всех экспериментах использовали режим стабилизации тока разряда магнетрона  $I_t = 1,5$  A (частота следования импульсов F = 10 кГц, коэффициент заполнения 80 %). Толщина нанесенных пленок составляла около 100 нм и регулировалась временем нанесения. Элементный состав пленок анализировали методом атомной эмиссионной спектроскопии на оптико-эмиссионном спектрометре тлеющего разряда GD-Profiler 2 (HORIBA Jobin Yvon S.A.S.). Первоначально исследовали элементный состав пленок, нанесенных при распылении Ti-Al составных мишеней в среде Аг. Данные о содержании алюминия в пленках приведены в табл. 1.

| Мишень /<br>Target | $C_{ m Al}$ , at.%          |   |  |
|--------------------|-----------------------------|---|--|
|                    | Эксперимент /<br>Experiment | Предварительное моделирование /<br>Preliminary simulation | Уточненное моделирование /<br>Refined simulation |
| TiAl-10            | 10,2                        | 10,2  | 9,8  |
| TiAl-20            | 16,1                        | 19,6  | 15,5   |
| TiAl-40            | 35,6                        | 40,8  | 36,0   |
| TiAl-70            | 65,3                        | 69,5  | 66,2   |

**Таблица 1.** Концентрация алюминия в пленках  $Ti_{1-x}Al_x$ **Table 1.** Aluminum concentration in  $Ti_{1-x}Al_x$  films

Как видно из табл. 1, результаты экспериментальных исследований показали меньшие значения содержания алюминия в нанесенных пленках по сравнению с предварительными расчетными данными. Это отклонение связано с тем, что при расчетах принимались табличные данные коэффициентов распыления титана и алюминия при энергии бомбардирующих ионов 300 эВ ( $Y_{Al} = 0,65$ ,  $Y_{Ti} = 0,33$ ) [11]. В магнетронном разряде средняя энергия бомбардирующих мишень ионов составляет порядка 0,6 от напряжения разряда [12]. При распылении Ti-Al составных мишеней напряжение разряда магнетрона изменялось от 296 до 348 В, что соответствует средней энергии ионов порядка  $E_i = 180-210$  эВ. При таких энергиях ионов коэффициенты распыления алюминия и титана составляют  $Y_{Al} = 0,35$ ,  $Y_{Ti} = 0,20$ . При этом соотношения этих коэффициентов  $Y_{Al}/Y_{Ti} = 1,96$ , если  $E_i = 300$  эВ, и  $Y_{Al}/Y_{Ti} = 1,75$ , если  $E_i = 200$  эВ. Поэтому с использованием формул (1)–(6) и значений  $Y_{Al} = 0,35$ ,  $Y_{Ti} = 0,20$  провели уточненные расчеты содержания металлов в пленках. Погрешность моделирования не превышала 5 %, и данные коэффициенты использовали в дальнейшем при моделировании процессов реактивного распыления.

Получены зависимости элементного состава пленок от содержания кислорода в Ar/O<sub>2</sub> смеси газов при реактивном распылении Ti-Al-мишеней. На рис. 4 представлена зависимость атомного содержания элементов в нанесенных пленках  $Ti_{1-x}Al_xO_y$  от концентрации кислорода в Ar/O<sub>2</sub> смеси газов при распылении мишени TiAl-40. В случае добавления кислорода в камеру наблюдалось резкое увеличение его содержания в пленке. При концентрации кислорода Г<sub>O2</sub> в Ar/O<sub>2</sub> смеси газов до 7 % его содержание в пленках достигало 40 %. При дальнейшем увеличении  $\Gamma_{O2}$  до 15 % содержание кислорода в Аr/O<sub>2</sub> смеси газов. Однако особый интерес для моделирования представляет содержание металлов в нанесенных пленках без учета кислорода (рис. 5, кривые ехр).



Рис. 4. Зависимость содержания элементов в пленках  $Ti_{1-x}Al_xO_y$  от концентрации кислорода в Ar/O<sub>2</sub> смеси газов (TiAl-40) Fig. 4. Dependence of the content of elements in  $Ti_{1-x}Al_xO_y$  films on the oxygen concentration in the Ar/O<sub>2</sub> gas mixture (TiAl-40)



Puc. 5. Экспериментальные (exp) и расчетные (cal) зависимости содержания металлов в пленках от потока кислорода в камеру (TiAl-40)
Fig. 5. Experimental (exp) and calculated (cal) dependences of the content of metals in films on the flow of oxygen into the chamber (TiAl-40)

Как видно из рис. 5, резкое уменьшение содержания алюминия в пленке происходило при потоке кислорода в камеру  $Q_{O2}$  более 6 sccm, и при  $Q_{O2} = 7,5$  sccm наблюдался минимум содержания алюминия –  $C_{A1} = 26$  ат.%. В случае дальнейшего увеличения  $Q_{O2}$  содержание алюминия в пленках практически линейно увеличивалось и достигало своего начального значения при  $Q_{O2} = 15$  sccm. Данное поведение связано с процессами формирования пленки оксида на поверхности Ti и Al частей мишени и различием скоростей окисления алюминия и титана. При  $Q_{O2} < 6$  sccm только малая доля титановой и алюминиевой частей мишени покрыта пленкой оксида, а образующиеся пленки оксидов эффективно удаляются распылением. В случае дальнейшего увеличения  $Q_{O2}$  в первую очередь происходит окисление алюминия, что приводит к снижению скорости его распыления и, как следствие, к уменьшению его содержания в пленке.

Окисленный алюминий практически не поглощает кислород, и начинается интенсивное окисление титана. Это приводит к тому, что поверхность титановой части мишени также покрывается пленкой оксида, и скорость его распыления снижается. Дальнейшее изменение концентраций титана и алюминия в пленке определяется коэффициентами распыления их оксидов. С помощью формул (6)–(10) рассчитали содержание металлов в нанесенной пленке при распылении мишени TiAl-40 для исходных данных:  $Y_{Al} = 0.35$ ,  $Y_{Ti} = 0.2$ ;  $\gamma_{Al} = 0.091$ ,  $\gamma_{Ti} = 0.11$ ;  $Y_{Al2O3} = 0.062$ ,  $Y_{TiO2} = 0.009$ ;  $\gamma_{Al2O3} = 0.19$ ,  $\gamma_{TiO2} = 0.078$ . Эмпирическими коэффициентами являются константы скорости химической реакции образования оксидов алюминия и титана. На рис. 5 кривые саl построены по результатам моделирования содержания металлов в нанесенной пленке с использованием коэффициентов скорости химической реакции  $k_{Al2O3} = 2.35$  и  $k_{TiO2} = 1.00$ .

Предложенная модель довольно точно описывает изменение содержания элементов в пленке при изменении потока кислорода в камеру. Аналогичные результаты получены в случае прогнозирования металлических составляющих в пленках при распылении мишеней TiAl-10, TiAl-20, TiAl-70. Погрешность моделирования – не более 10 %. Значительные отклонения наблюдались при небольших потоках кислорода в камеру, что, скорее всего, связано с тем, что в модели не учитывалось уменьшение парциального давления реактивного газа в камере за счет его поглощения поверхностями мишени и растущей пленки при малых значениях степени покрытия поверхностей мишени и пленки.

## Выводы

1. Предложена модель для прогнозирования содержания металлических составляющих в пленках оксидов, наносимых реактивным магнетронным распылением двухкомпонентной составной мишени в среде  $Ar/O_2$  рабочих газов. Модель проверена экспериментально при реактивном распылении Ti-Al составных мишеней в среде Ar и  $Ar/O_2$  рабочих газов. Установлено, что при реактивном распылении содержание металлов в пленке зависит от потока кислорода в камеру. Данное поведение связано с процессами формирования пленки оксида на поверхности Ti и Al частей мишени и различными скоростями окисления алюминия и титана.

2. При использовании коэффициентов распыления металлов  $Y_{Al} = 0,35$ ,  $Y_{Ti} = 0,20$  и коэффициентов ионно-электронной эмиссии металлов  $\gamma_{Al} = 0,091$ ,  $\gamma_{Ti} = 0,110$  погрешность моделирования при прогнозировании состава пленок для всех мишеней в случае распыления в среде Ar составила менее 5 %. При реактивном распылении предложенная модель позволяет предсказать содержание металлов в наносимой пленке с погрешностью менее 10 %.

### Список литературы / References

- 1. Robertson J., Wallace R. M. (2015) High-K Materials and Metal Gates for CMOS Applications. *Materials Science and Engineering R*. (88), 1–41. DOI: 10.1016/j.mser.2014.11.001.
- 2. Madhuri K. V. (2014) Transition Metal Oxides and their Composite Thin Films. Advanced Research in Engineering Sciences "ARES" Journal. 2 (3), 2–13.
- Nakano J., Miyazaki H., Kimura T., Goto T., Zhang S. (2004) Thermal Conductivity of Yttria-Stabilized Zirconia Thin Films Prepared by Magnetron Sputtering. J. Ceram. Soc. of Jap. 112, S908–S911. DOI: 10.14852/jcersjsuppl.112.0.S908.0.
- Golosov D. A., Melnikov S. N., Dostanko A. P. (2012) Calculation of the Elemental Composition of Thin Films Deposited by Magnetron Sputtering of Mosaic Targets. *Surface Engineering and Applied Electrochemistry*. 48 (1), 52–59.
- 5. Depla D., Mahieu S. (ed.) (2008) Reactive Sputter Deposition. Springer Publ.
- Berg S., Blom H. O., Larsson T., Nender C. (1987) Modeling of Reactive Sputtering of Compound Materials. J. Vac. Sci. Technol. A. 5 (2), 202–207. DOI: 10.1116/1.574104.
- Barankova H., Berg S., Nender C., Carlsson P. (1995) Hysteresis Effects in the Sputtering Process Using Two Reactive Gases. *Thin Solid Films*.260 (2), 181–186. DOI: 10.1016/0040-6090(94)06501-2.
- Dreer S., Krismer R., Wilhartitz P. (1999) Multidimensional Optimisation of Process Parameters by Experimental Design for the Deposition of Aluminium and Silicon Oxynitride Films with Predictable Composition. *Surface and Coatings Technology*. 114 (1), 29–38. DOI: 10.1016/S0257-8972(99)00017-1.
- 9. Moradi M., Nender C., Berg S., Blom H. O., Belkind A., Orban Z. (1991) Modeling of Multicomponent Reactive Sputtering. J. Vac. Sci. Technol. A. 9 (3), 619–624. DOI: 10.1116/1.577376.
- Martin N., Rousselot C. (1999) Modelling of Reactive Sputtering Processes Involving Two Separated Metallic Targets. Surface and Coatings Technology. 114 (2–3), 235–249. DOI: 10.1016/S0257-8972(99)00051-1.
- 11. Laegreid N., Wehner G. K. (1961) Sputtering Yields of Metals for Ar<sup>+</sup> and Ne<sup>+</sup> Ions with Energies from 50 to 600 eV. J. Appl. Phys. 32 (3), 365–369. DOI: 10.1063/1.1736012.
- 12. Goeckner M. J., Goree J. A., Sheridan T. E. (1991) Monte Carlo Simulation of Ions in a Magnetron Plasma. *IEEE Trans. Plasma. Sci.* 19 (2), 301–308. DOI: 10.1109/27.106828.

### Вклад авторов / Authors' contribution

Авторы внесли равный вклад в написание статьи / The authors contributed equally to the writing of the article.

**Доан Х. Т.,** аспирант Белорусского государственного университета информатики и радиоэлектроники

Голосов Д. А., к. т. н., доцент, ведущий научный сотрудник центра электронных технологий и технической диагностики технологических сред и твердотельных структур (Центр 2.1) научно-исследовательской части Белорусского государственного университета информатики и радиоэлектроники

Джанг Дж., к. т. н., научный сотрудник ведущей лаборатории провинции Шэньси в области технологии тонких пленок и оптических исследований Сианьского политехнического университета

Завадский С. М., к. т. н., доцент, начальник Центра 2.1 научно-исследовательской части Белорусского государственного университета информатики и радиоэлектроники

Мельников С. Н., к. т. н., ведущий научный сотрудник Центра 2.1 научно-исследовательской части Белорусского государственного университета информатики и радиоэлектроники

**Нгуен Т.** Д., к. т. н., преподаватель Вьетнамского государственного технического университета имени Ле Куй Дона

## Адрес для корреспонденции

220013, Республика Беларусь, г. Минск, ул. П. Бровки, 6 Белорусский государственный университет информатики и радиоэлектроники Тел.: +375 17 293-80-79 E-mail: dmgolosov@mail.ru Голосов Дмитрий Анатольевич

## Information about the authors

**Doan H. T.,** Postgraduate at the Belarusian State University of Informatics and Radioelectronics

**Golosov D. A.,** Cand. of Sci., Associate Professor, Senior Researcher at the Center of Electronic Technologies and Technical Diagnosis of Technological Media and Solid State Structures (Center 2.1) of R&D Department of the Belarusian State University of Informatics and Radioelectronics

**Jin Zhang,** Cand. of Sci., Researcher at the Shaanxi Province Key Laboratory of Thin Films Technology and Optical Test of the Xi'an Polytechnic University

**Zavadski S. M.,** Cand. of Sci., Associate Professor, Head of the Center 2.1 of R&D Department of the Belarusian State University of Informatics and Radioelectronics

**Melnikov S. N.,** Cand. of Sci., Senior Researcher at the Center 2.1 of R&D Department of the Belarusian State University of Informatics and Radioelectronics

Nguyen T. D., Cand. of Sci., Lecturer at the Le Quy Don Technical University

## Address for correspondence

220013, Republic of Belarus, Minsk, P. Brovki St., 6 Belarusian State University of Informatics and Radioelectronics Tel.: +375 17 293-80-79 E-mail: dmgolosov@mail.ru Golosov Dmitriy Anatol'evich