

金属氧化物薄膜的多离子束反应 共溅射模型(I) *

模型建立

肖定全 韦力凡 李子森

朱建国 钱正洪 彭文斌

(四川大学材料科学系, 成都 610064)

(1994年10月8日收到)

针对作者发明的多离子束反应共溅射技术, 基于气体动力学原理, 在稳恒溅射情况下, 建立了多离子束多靶反应共溅射的基本模型, 获得了薄膜沉积速率和薄膜成分与反应共溅射工艺参数之间的关系。该模型揭示了影响薄膜成分的本质参量, 基于该模型, 提出了调控溅射速率及薄膜成分的途径与方法。

PACC: 8115C

1 引 言

溅射是一种广泛采用的薄膜制备技术, 而反应溅射(Reactive Sputtering)更是制备化合物薄膜的有力手段。很多氧化物、氮化物以及碳化物薄膜, 甚至成分复杂的多元化合物薄膜, 都可以通过反应溅射在较低的衬底温度下制备出来。例如, 人们已利用合金靶和金属拼结靶, 采用反应溅射方式制备了三元金属氧化物锆钛酸铅(PZT)铁电薄膜^[1-4], 也有人利用多个金属靶, 采用多靶直流磁控溅射的方法, 制备了四元金属氧化物锆钛酸铅镧(PLZT)铁电薄膜^[5,6]。考虑到多离子束溅射成膜的优点和制备多组元金属氧化物薄膜需精确控制各组元成分的要求, 我们独立提出并发展了多离子束反应共溅射制备金属氧化物薄膜的技术, 建立了目前国内唯一的一台多离子束反应共溅射装置, 并用它成功地在不同衬底上制备了外延或高度择优取向的 $(P_b, L_a)TiO_3$ 铁电薄膜^[7,8], 与之相关的两项中国发明专利已经授权^[9,10]。近年来, Krupanidhi 等^[11]及 James^[12]等也用类似技术制备了锆钛酸铅(PZT)铁电薄膜和钇钡铜氧(YBCO)超导薄膜。

反应溅射是一个非常复杂的非线性过程, 并常常呈现出滞后效应。在反应溅射中, 薄膜沉积速率、薄膜成分和薄膜性质与薄膜制备的技术条件关系极大。所以, 当薄膜制备工艺条件位于薄膜成分或性能与工艺关系曲线的陡变区或非稳定区时, 即使工艺条件的微小变化, 也会对薄膜沉积速率、薄膜成分和薄膜性能带来很大影响, 给工艺和生产的重复

* 国家自然科学基金资助的课题。

性带来很大困难,在批量生产或生产线上生产时尤为如此.因此,如何在反应溅射,特别是反应共溅射时能对所制薄膜的成分进行简单、有效的控制,还没有从根本上解决,制备过程的重复性也有待提高.为了正确控制反应溅射工艺,特别是为了满足计算机控制和生产自动化的要求,需要深入研究反应溅射的机制,并希望能建立合理的、比较简单的、能尽可能反映真实工艺过程的物理和数学模型,比较好地描述薄膜沉积速率与相关溅射工艺条件、薄膜组分和性能的关系.

许多作者已对反应溅射提出过相关的模型^[13-21].在已有的模型中,除了 Yoshitake 等^[21]以外,其它模型都是针对直流(DC)或射频(RF)磁控溅射来讨论单靶反应溅射的机制. Shinoki 等^[13]针对 RF 反应溅射讨论了反应气体分压对成膜的影响, Abe^[14], Lempriere^[15]和 Eltokly^[16]等,讨论了在 DC 反应制备单晶氧化物和氮化物的反应溅射过程,特别是反应气体分压对薄膜沉积速率及薄膜性能的影响. Berg 等^[17-20]对 RF 反应溅射机制进行了比较深入的研究,所得的结果对优化射频磁控反应溅射工艺条件,按预定的薄膜化学剂量比和性能制备薄膜,减少利用“炒菜式”(“Trial and error”)来制备薄膜的工作量,具有重要意义. Yoshitake 等^[21]针对单离子束反应溅射制备氧化锆薄膜的情形,

分析了氧分压对薄膜的结构和光学性能的影响.显然,在上述模型中,除 Yoshitake 模型外,其余都是针对 DC 或 RF 溅射来讨论反应溅射的机制的.即使 Yoshitake 模型,也仅针对单离子束反应溅射制备氧化锆薄膜的情形讨论了金属靶与反应气体的相互作用,以及反应气体分压对氧化锆薄膜性能的影响.就我们所知,目前还没有人研究过反应共溅射的机制,更没有人讨论过多离子束反应共溅射机制.可以相信,深入研究离子束反应溅射机制,特别是多离子束反应共溅射机制,不仅对探讨反应溅射机制具有重要意义,对进一步发展多离子束反应共溅射技术,实现制膜工艺的自动化和计算机程序控制也具有重要的参考价值.

本文以气体动力学为基础,引入了金属靶面及衬底表面上金属单质和氧化物有效面积比的概念,在稳恒溅射情况下建立了多离子束反应共溅射的基本模型,获得了薄膜沉积速率和薄膜组分与反应共溅射工艺参数之间的关系,该模型揭示了影响薄膜组分的本质参量,基于该模型,提出了在多离子束反应共溅射技术中,调控溅射速率和薄膜成分的途径和方法.根据我们实验中的实际工艺参数,利用计算机进行数值模型计算的结果及其讨论,将在另文中给出.

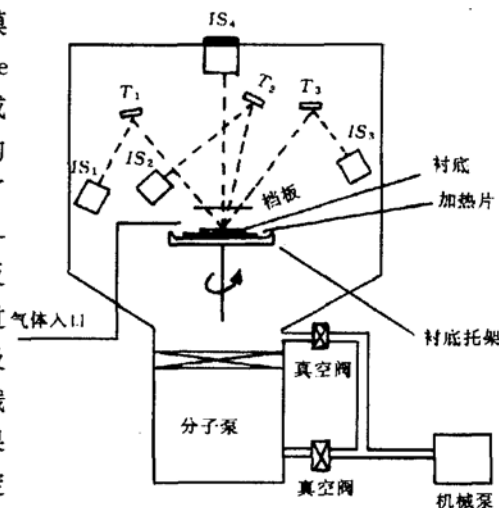


图1 多离子束反应共溅射原理图

IS表示溅射离子源;T为靶

2 多离子束反应共溅射原理

多离子束反应共溅射 MIBRECS 原理在图 1 中给出. 在该图中, IS_1 - IS_3 分别表示轰击靶材的溅射离子源. 适当调节溅射离子源和相应靶托的几何位置, 使单个溅射离子源或两、三个溅射离子源同时分别轰击不同的靶材时所溅射出来的物质(如原子、离子团)汇聚在衬底上, 在衬底加热和通入反应气体的条件下, 在位制备所需的多组元薄膜. 第四个作为辅助沉积的低能离子源(IS_4)正对衬底进行轰击, 使之在溅射前对衬底进行预清洗, 在溅射过程中, 对薄膜进行动态混合, 促进薄膜的成核和均匀生长^[9,10].

该技术的特点是, 在薄膜沉积室中安装三个考夫曼型聚焦离子源, 分别用来轰击三个靶材(如高纯金属靶); 溅射每个靶的离子束流和离子能量可分别独立地调节; 由三个靶上溅射出来的原子或原子团汇聚在衬底上, 衬底上可旋转、加热, 旋转可以使膜层均匀, 加热可满足在位制备外延生长或高度择优取向的薄膜的需要; 同时通入工作气体和反应气体完成反应共溅射. 本文所讨论的模型中, 未涉及轰击衬底的辅助离子源的作用.

3 模型的建立

考虑利用金属靶、反应气体的氧气、采用多离子束反应共溅射制备氧化物薄膜的情形. 被溅射的物质以金属单质、低价氧化物和高价氧化物三种形态存在. 除真空衬底接收被溅射出的物质外, 部分反应室腔壁也可接收被溅射物质.

溅射过程的实际情况是, 金属靶在离子束及反应气体的共同作用下, 其靶面上有单质及低价氧化物两种物质状态存在. 反应室腔壁不处于高温状态, 故可认为溅射到其上的低价金属氧化物不再进一步氧化, 因而其表面上只有金属单质和低价氧化物两种物质状态存在. 为了提高薄膜的结晶性能, 衬底的温度一般较高, 其上有金属单质、低价氧化物和高价氧化物三种物质形态存在. 考虑到这种情况, 引入了金属靶面、真实衬底, 反应室腔壁上金属单质、低价氧化物和高价氧化物覆盖率(有效面积百分比)的概念, 如图 2 所示. 图 2 中同时给出反应气体供给量与消耗量的关系示意图.

记第 i 个靶上金属单质和低价氧化物所占的有效面积比分别为 Z_{tm_i} , Z_{tl_i} ; 衬底上第 i 种金属单质、低价氧化物、高价氧化物所占的有效面积比分别为 Z_{sm_i} , Z_{sl_i} , Z_{sh_i} ; Z 代表各种物质形态所占的面积百分比, 角标中 t 代表靶, s 代表衬底, 而 m, l, h 分别代表单质、低价氧化物和高价氧化物, i 代表第 i 种金属; 记 l_i 和 h_i 为第 i 种金属的低价和高价氧化物中单个金属原子所配的氧原子数; 记通入反应室的反应气体总量为 Q , 它将分为四个部分, 即靶消耗的反应气体总量为 $\sum Q_{ti}$ (Q_{ti} 代表第 i 个靶吸收使其靶面氧化所消耗的反应气体总量), 反应室腔壁消耗的反应气体量为 Q_c , 衬底消耗的反应本量为 Q_s , 被真空系统抽走的反应气体量为 Q_o .

设实际的有效溅射过程是个稳恒过程, 即金属靶面、反应室腔壁和衬底上各组元存在的物质形态所占的面积比保持不变, 且各溅射离子源能独立控制, 各溅射组元间相互作用, 不计溅射粒子的再挥发.

首先考虑第 i 个金属靶上的平衡过程. 根据溅射过程中靶上金属氧化物所占有效面积比 Z_{di} 保持恒定值的特点, 由气体动力学理论, 可建立平衡方程

$$2\alpha_{\text{tmi}}F_{\text{ti}}(1 - Z_{\text{di}})/l_i - (J_i/e)S_{\text{ni}}Z_{\text{di}} = 0, \quad (1)$$

式中 α_{tmi} 为第 i 个金属组元单质对氧气的反应吸附系数; F_{ti} 代表该靶上的反应气体氧气的通量, 由气体动力学理论^[18] 可知,

$$F_{\text{ti}} = k_o p (2\pi k_B T_{\text{ti}} M)^{-1/2},$$

式中 k_o 为统一量纲所需的常数, p 为反应气体氧气的分压, k_B 为玻耳兹曼常数, F_{ti} 为第 i 个金属靶的绝对温度, M 为反应气

体的分子质量; J_i 为轰击第 i 个金属靶的离子源的离子束流, 相应地 (J_i/e) 为轰击第 i 个金属靶的离子数; S_{ni} 为第 i 个靶上金属氧化物的溅射产额. 方程(1)等号左边第一项代表靶上金属单质氧化使金属氧化物所占的有效面积比 Z_{di} 上升的过程, 其中的系数 2 代表一个氧分子包含两个氧原子; 方程(1)等号左边第二项代表金属氧化物被溅射引起其有效面积比 Z_{di} 下降的过程. 因为稳恒溅射过程中 Z_{di} 保持不变, 第一项与第二项的作用互抵消, 故得方程(1).

再考虑衬底上第 i 个组元的平衡情况. 由于讨论的是稳恒溅射过程, 衬底上第 i 个组元的单质、低价氧化物和高价氧化物所占的有效面积比 Z_{smi} , Z_{sli} 和 Z_{shi} 都保持不变. 因此当第 i 个靶上溅射出金属单质落到衬底上所有金属组元的各种氧化物以及其它靶上溅射出的金属单质部分时, 将引起衬底上该金属单质所占的有效面积比 Z_{smi} 上升, 这个过程用

$$(J_i/e)S_{\text{mi}}(1 - Z_{\text{di}})(1 - Z_{\text{smi}})(A_{\text{ti}}/A)$$

来表征, 其中 S_{mi} 为第 i 个靶上金属单质的溅射产额, A_{ti} 为第 i 个靶的面积, A 为包括衬底及接收溅射物质的反应室腔壁在内的总的沉积面积. 衬底上第 i 种金属单质吸附氧气反应生成相应的低价氧化物将使该金属单质所占的有效面积比下降, 这个过程由

$$2\alpha_{\text{smi}}F_s Z_{\text{smi}}/l_i$$

来表征, 其中 α_{smi} 为衬底上该金属单质对氧气的反应吸附系数, F_s 为衬底表面的反应气体通量, 与前文讨论 F_{ti} 的情况一样, F_s 可表示为

$$F_s = k_o p (2\pi k_B T_s M)^{-1/2}$$

其中 T_s 为衬底的绝对温度, k_o , p , k_B , M 的意义同前; 此外, 所有金属组元的各种氧化物, 以及其它靶上溅射出的金属单质落在衬底上第 i 种金属单质部分亦将引起 Z_{smi} 下降, 这个过程由

$$\begin{aligned} & \sum_j (J_j/e)[S_{\text{mj}}(1 - Z_{\text{tj}}) + S_{\text{nj}}Z_{\text{tj}}]Z_{\text{smi}}(A_{\text{tj}}/A) \\ & - (J_i/e)S_{\text{mi}}(1 - Z_{\text{di}})Z_{\text{smi}}(A_{\text{ti}}/A) \end{aligned}$$

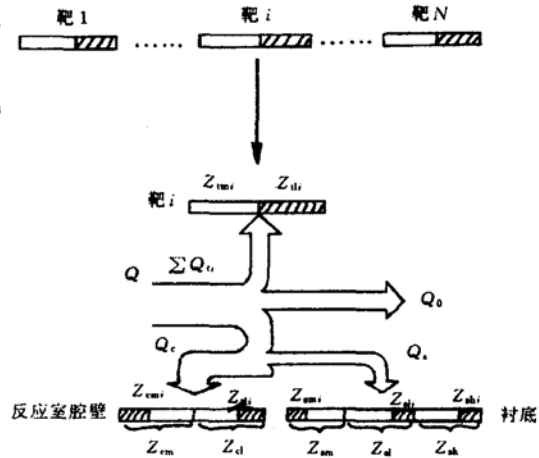


图2 反应气体供应量与消耗量关系示意图

(图中符号表示的含义请参照正文)

来表征. 由于考虑稳恒溅射, 上述两个过程所起的作用互相抵消, 才能使衬底上该金属单质所占的有效面积比 Z_{smi} 保持恒定. 由此得平衡方程

$$(J_i/e)S_{mi}(1-Z_{tli})(A_{ti}/A) - \sum_j (J_j/e)[S_{mj}(1-Z_{tlj}) + S_{nj}Z_{tlj}]Z_{smi}(A_{tj}/A) - 2\alpha_{smi}F_s Z_{smi}/l_i = 0, \quad (2)$$

式中 $\sum_j$ 为对所有的组元求和.

引起衬底上第 i 种金属低价氧化有效面积比 Z_{sli} 上升的原因之一是, 衬底上该种金属单质吸氧生成低价氧化物, 其作用由

$$2\alpha_{smi}F_s Z_{smi}/l_i$$

来表征; 引起 Z_{sli} 上升的另一个原因是, 第 i 个靶上溅射出的低价金属氧化物落在衬底上该种金属单质及其它金属各种氧化区, 其作用由

$$(J_i/e)S_{ni}Z_{tli}(1-Z_{sli})(A_{ti}/A)$$

来表征. 引起 Z_{sli} 下降的原因之一是各种金属单质及其它金属的低价氧化物落在衬底上该种金属的低价氧化物部分, 其作用由

$$\sum_j (J_j/e)[S_{lj}Z_{tlj} + S_{mj}(1-Z_{tlj})]Z_{slj}(A_{tj}/A) - (J_i/e)S_{li}Z_{tli}Z_{sli}(A_{ti}/A)$$

来表征; 引起 Z_{sli} 下降的另一个原因是, 衬底上该种金属的低价氧化物吸氧反应生成高价氧化物, 其作用由

$$2\alpha_{sli}F_s Z_{sli}(h_i - l_i)$$

来表征. α_{sli} 为衬底上第 i 种金属的低价氧化物对氧气的反应吸附系数. 由于是稳恒溅射, Z_{sli} 应保持恒定, 由此得方程

$$2\alpha_{smi}F_s Z_{smi}/l_i + (J_i/e)S_{li}Z_{tli}(A_{ti}/A) + 2\alpha_{sli}Z_{sli}F_s/(h_i - l_i) - \sum_j (J_j/e)[S_{lj}Z_{tlj} + S_{mj}(1-Z_{tlj})]Z_{slj}(A_{tj}/A) = 0. \quad (3)$$

引起衬底上第 i 种金属高价氧化物有效面积比 Z_{shi} 上升的原因是衬底上该种金属低价氧化物进一步地氧化, 这一过程由

$$2\alpha_{slj}F_s Z_{sli}/(h_i - l_i)$$

来表征; 引起 Z_{shi} 下降的原因是各靶上溅射下的物质落在衬底上该金属的高价氧化物部分, 这一过程由

$$\sum_j (J_j/e)[S_{lj}Z_{tlj} + S_{mj}(1-Z_{tlj})]Z_{sli}(A_{tj}/A)$$

来表征. 由于是稳恒溅射, Z_{shi} 应保持恒定, 于是得方程

$$2\alpha_{slj}Z_{sli}F_s/(h_i - l_i) - \sum_j (J_j/e)[S_{lj}Z_{tlj} + S_{mj}(1-Z_{tlj})]Z_{shi}(A_{tj}/A) = 0. \quad (4)$$

方程(1), (2), (3)和(4)构成了本模型的基本方程组.

设被溅射的各金属靶的温度都为 T_i , 第 i 个靶的溅射速率为 R_i , 根据定义, 得

$$R_i = (J_i/e)[S_{li}Z_{tli} + S_{mi}(1-Z_{tli})]$$

令

$$B_t = k_o / (2\pi k_B M T_t)^{-1/2}, \quad B_s = k_o / (2\pi k_B M T_s)^{1/2},$$

则由基本方程组容易导出如下关于靶及衬底上相关组元的不同物质形态有效面积比的方程组:

$$Z_{ti} = \frac{2\alpha_{tm_i} B_t}{2\alpha_{tm_i} B_t + S_{li} (J_i / ep) l_i}, \quad (5)$$

$$Z_{sm_i} = \frac{(J_i / ep) S_{mi} (1 - Z_{ti}) (A_{ti} / A)}{2\alpha_{sm_i} B_s / l_i + G}, \quad (6)$$

$$Z_{sl_i} = \frac{2\alpha_{sm_i} B_s Z_{sm_i} / l_i + (J_i / ep) S_{li} Z_{ti} (A_{ti} / A)}{2\alpha_{sl_i} B_s / (h_i - l_i) + G}, \quad (7)$$

$$Z_{shi} = \frac{2\alpha_{sl_i} Z_{sl_i} B_s / (h_i - l_i)}{G}, \quad (8)$$

其中

$$G = \sum_j (R_j / p) (A_{tj} / A) = \sum_j (J_j / ep) [S_{li} Z_{ti} + S_{mi} (1 - Z_{ti})] (A_{tj} / A).$$

由某金属组元在衬底上的单质、低价氧化物和高价氧化物的有效面积比, 可以确定该组元在衬底上的含量; 各组元的相对含量比, 确定了薄膜中各金属组元的比例, 亦即可以确定薄膜的成分. 换言之, 方程(6)~(8)中的 Z_{sm_i} , Z_{sl_i} 和 Z_{shi} 最终决定了薄膜的成分. 因此本模型中关于组分比的方程组(5)~(8)揭示了薄膜成分与离子束溅射工艺中控制参数的关系.

在方程组(5)~(8)中, 各个靶的离子束束流 J_i 是独立可调的物理量, 而反应气体分压 p 则不然. 当反应气体进气量 Q 恒定时, 溅射出的金属原子越多, 吸收的反应气体越多, 将引起反应气体分压下降. 这表明调节各 J_i 就将引起 p 的改变. 在真空泵抽气速率固定的情况下, p 由 J_i 及反应气体进气量 Q 决定. Q 为独立、直接可调的物理量. 因此, 若进一步引进附加方程组, 则可最终确立薄膜上各组元有效面积比与独立可调物理量 Q 及各 J_i 之间的关系.

考虑到反应室腔未加高温, 故可认为其上沉积物主要由各种金属单质及其低价氧化物构成, 它们的有效面积比分别用 Z_{cm_i} 和 Z_{cl_i} 表示.

当第 i 种金属的单质沉积到反应室腔壁上所有金属的氧化物及其它金属的单质部分时, 可使其在反应室腔壁上的有效面积比 Z_{cm_i} 上升, 而其它金属的单质及所有金属的氧化物落到反应室腔壁上该金属的单质部分时, 将使 Z_{cm_i} 下降. 在稳恒过程中, Z_{cm_i} 将保持不变, 由此得如下平衡方程:

$$(J_i / e) S_{mi} (1 - Z_{ti}) (A_{ti} / A) - \sum_j R_j Z_{cm_i} (A_{tj} / A) - 2\alpha_{cm_i} Z_{cm_i} F_t / l_i = 0, \quad (9)$$

式中 α_{cm_i} 为衬底上金属单质对反应气体的吸附系数. 方程(9)又可简化为

$$Z_{cm_i} \frac{(J_i / ep) S_{mi} (1 - Z_{ti})}{2\alpha_{cm_i} B_t / l_i + G} \left(\frac{A_{ti}}{A} \right). \quad (10)$$

记各靶消耗的氧气量分别为 Q_{ti} , 则

$$Q_{ti} = \alpha_{tmi}(1 - Z_{tli})A_tPB_t. \quad (11)$$

记衬底上消耗的氧气量为 Q_s , 则

$$\begin{aligned} Q_s &= \sum_j (\alpha_{smj}pB_sA_sZ_{smj} + \alpha_{slj}pB_sA_sZ_{slj}) \\ &= A_s p B_s \sum_j (\alpha_{smj}Z_{smj} + \alpha_{slj}Z_{slj}), \end{aligned} \quad (12)$$

式中 A_s 为衬底面积.

记反应空腔壁上消耗的氧气量为 Q_c , 则

$$Q_c = (A - A_s) \sum_j (\alpha_{cmj}Z_{cmj}pB_t). \quad (13)$$

记真空泵抽走的氧气量为 Q_0 , 则

$$Q_0 = k_{01}ps/(Nk_B T_c), \quad (14)$$

式中 k_{01} 为平衡量纲的常数, N 为阿伏伽德罗常数, s 为真空泵的抽气速率, T_c 为反应室腔壁温度.

因为处于稳恒状态, 消耗的氧气量和供应的氧气量 Q 相等, 所以

$$Q = \sum_j Q_{ij} + Q_s + Q_c + Q_0. \quad (15)$$

方程组(11)–(15)是引进的附加方程组, 其中 Z_{cmi} 由方程(10)给出.

至此我们建立了多离子束多金属靶的反应共溅射模型的完整方程组, 据此可计算各组元在衬底上的有效面积比与可独立控制的工艺参数 Q 及各 J_i 之间的关系.

4 讨 论

反应溅射是制备单元和多元氧化物、氮化物和碳化物等多种薄膜的有效方法. 但反应溅射是一个非常复杂的非线性过程. 只有弄清反应溅射的机制, 建立适当的、能反映基本溅射过程的物理数学模型, 才有助于实现薄膜制备的自动化和程序控制.

已有的反应溅射模型, 主要是针对射频磁控溅射制备单元氧化物或氮化物薄膜进行讨论的. 本文中, 作者基于自己独立提出和发展的多离子束反应共溅射薄膜制备技术, 提出了金属氧化物薄膜的多离子束多金属靶反应共溅射模型. 考虑到在反应溅射过程中, 每个金属靶有一部分被低价金属氧化物所覆盖, 在真空衬底上有金属单质、低价和高价氧化物存在, 在反应室腔壁, 则可能存在被溅射金属组元的单质和低价氧化物. 因此, 文中引入了金属靶面及衬底(包括部分反应室腔壁)表面上金属单质、低价氧化物和高价氧化物有效面积比的概念. 基于气体动力学原理, 在稳恒溅射条件下, 分别建立了描述金属靶面及衬底表面上金属单质、低价和高价氧化物的四个平衡方程. 此四个方程构成了本模型的基本方程组, 由此可以得出衬底上薄膜组分与离子束溅射参数的关系. 考虑到反应气体总供应量与反应气体消耗量之间的平衡, 建立了附加方程组. 上述基本方程组和附加方程组, 便是多组元金属氧化物薄膜的多离子束反应共溅射模型的数学表达式, 由此即可计算各组元在衬底上所占的有效面积比(即薄膜成分)以及薄膜的沉积速率与可独立、直接控制的相关溅射技术参数(如反应气体的总通入量、各溅射离子束流等)之间的关系.

在另一文献^[22]中,将利用本文提出的模型,结合实际的溅射技术参数进行计算机数值模拟,并对结果进行讨论.所得的结果表明,该模型反映了溅射的本质特征,所得结论至少在定性和半定量方面与实际结果相符合.此外,现有的文献中关于单靶溅射的模型,正好可视为本模型在靶数为1时的特例.

- [1] T. Fukami and T. Sakuma, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **20**(1981), 1599.
- [2] T. Fukami, T. Sakuma, K. Tokunaga and H. Tsuchiya, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **22 Suppl 2**(1983), 18.
- [3] K. Sreeniras and M. Sayer, *J. Appl. Phys.*, **64** (1988), 1484.
- [4] A. Croteau and M. Sayer, in *Proceedings of the 6th IEEE International Symposium on Applications of Ferroelectrics*, Bethlehem, PA (1986), edited by V. E. Wood (IEEE, New York, 1986), pp. 606—609.
- [5] H. Adachi, T. Mitsuyu, O. Yamazaki and K. Wasa, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **24 suppl 3**(1985), 13.
- [6] H. Adachi and K. Wasa, *Ferroelectric Thin Films*, MRS Symposium Proceedings, Vol. 200. Eds, E. R. Myer and A. I. Kingon, MRS, PA, USA (1990), pp. 103—114.
- [7] D. Q. Xiao, Z. L. Xiao, J. M. Zhu, D. R. Wan, H. C. Guo, B. Z. Xie and H. Yuan, *Appl. Phys. Lett.*, **58** (1991), 36.
- [8] D. Q. Xiao, J. M. Zhu, J. G. Zhu, Z. L. Xiao, Z. H. Qian and H. L. Zhang, *Ferroelectrics*, **141** (1993), 327.
- [9] 肖定全、肖志力、朱居木、郭华聪、谢必正, 多组元金属氧化物薄膜4的制备方法, 中国发明专利, 91105788.6, (1990).
- [10] 郭华聪、肖定全、谢必正、邵启文、朱居木、肖自力, 用离子束溅射成膜的装置, 中国发明专利, 88109745.4, (1989).
- [11] S. B. Krupanidhi, H. Hu and V. Kumer, *J. Appl. Phys.*, **71** (1992), 376.
- [12] J. H. James, B. J. Kellett, A. Ganzzi, B. Dwiri and D. Pavuna, *Appl. Surf. Sci.*, **43** (1989), 393.
- [13] F. Shinoki and A. Itoh, *J. Appl. Phys.*, **46** (1975), 3381.
- [14] T. Abe and T. Yamashina, *Thin Solid Films*, **30** (1975), 19.
- [15] G. Lemperiere and J. M. Poitevin, *Thin Solid Films*, **111** (1984), 339.
- [16] A. H. Eltoukly, B. R. Natarajan, J. E. Green and T. L. Barr, *Thin Solid Films*, **69**(1980), 229.
- [17] S. Berg, H-O. Blom, T. Larsson and C. Nender, *J. Vac. Sci. Technol.*, **A5** (1987), 202.
- [18] S. Berg, T. Larsson, C. Nender and H-O. Blom, *J. Appl. Phys.*, **63**(1988), 887.
- [19] T. Larsson, H-O. Blom, C. Nender and S. Berg, *J. Vac. Sci. Technol.*, **A6**(1988), 1832.
- [20] S. Berg, H-O. Blom, M. Morodi, C. Nender and T. Larsson, *J. Vac. Sci. Technol.*, **A7**(1989), 1225.
- [21] M. Yoshitake, K. Takiguchi, Y. Suzuki and S. Ogawa, *J. Vac. Sci. Technol.*, **A6** (1988), 2326.
- [22] 肖定全、韦力凡、李子森、朱建国、钱正洪、彭文斌, 物理学报, **45** (1996), 本刊本期.

MODELLING OF MULTI-ION-BEAM REACTIVE COSPUTTERING OF METAL OXIDE THIN FILMS (I) ESTABLISHMENT OF THE MODEL

XIAO DING-QUAN WEI LI-FAN LI ZI-SEN
ZHU JIAN-GUO, QIAN ZHENG-HONG, PENG WEN-BIN

(*Department of Materials Science, Sichuan University, Chengdu 610064*)

(Received 8 October 1994)

ABSTRACT

Reactive sputtering is a very useful technique for fabricating oxides and other compound thin films. Very recently, we developed a technique named multi-ion-beam reactive cosputtering (MI-BRECS) for preparing multi-component metal oxide thin films. In order to promote the development of this technique, it is necessary to investigate the mechanisms of thin film growth of reactive cosputtering. Based on the well-known gas kinetics, we established a fundamental model of multi-ion beam, multi-target reactive cosputtering under stable sputtering circumstances, and obtained the relationships between both the deposition rate and composition of thin films and the controllable reactive cosputtering parameters. This model reveals the essential parameters that affect the composition of thin films and the methods for controlling the deposition rate and the composition of thin films can be obtained from the model.

PACC: 8115C