

УТВЕРЖДАЮ

ректор УО «Гомельский

государственный университет имени
Франциска Скорины»

доктор физико-математических наук

С.А. Хахомов



10

2023 г.

ОТЗЫВ

оппонирующей организации

на диссертационную работу **ДОАН ТХЕ ХОАНГ**

«Формирование тонкопленочных слоев с высокой диэлектрической проницаемостью на основе сложных оксидов реактивным магнетронным распылением», представленную на соискание ученой степени кандидата технических наук по специальности 05.27.06 – технология и оборудование для производства полупроводников, материалов и приборов электронной техники

1. Соответствие содержания диссертации заявленной специальности и отрасли науки

Диссертационная работа Доан Тхе Хоанг посвящена решению одной из актуальных проблем современной микроэлектроники – это внедрение в технологические процессы тонкопленочных материалов с новыми функциональными свойствами. К таким материалам, относятся сложные многокомпонентные оксиды, которые являются одним из объектов исследования в данной диссертации.

В работе исследованы процессы осаждения, роста, формирования структуры и электрофизических свойств пленок как простых оксидов металла, так и композиционных покрытий на их основе, осаждаемых с использованием метода вакуумного импульсного реактивного магнетронного осаждения, а также установлены закономерности влияния степени легирования и параметров процесса реактивного магнетронного распыления на диэлектрические характеристики пленок сложных оксидов. Показана возможность использования формируемых покрытий на основе сложных оксидов титана-алюминия и др. в качестве диэлектрических слоёв интегральных схем.

Также в работе проведен анализ и определены закономерности влияния способа подачи газа к вакуумную камеру на элементный состав покрытий и их электрофизические свойства. Разработана и экспериментально проверена модель магнетронного распыления двухкомпонентной мишени, учитывающая как энергетические параметры работы магнетронной системы, так и процессы образования оксидов. Экспериментально установлены зависимости диэлектрических характеристик пленок сложных оксидов $Ti_xAl_{1-x}O_y$, $Ti_xZr_{1-x}O_y$, $Ta_xAl_{1-x}O_y$, $Hf_xZr_{1-x}O_y$ от параметров процесса магнетронного распыления и степени легирования. Показано влияние алюминия, циркония на электрофизические свойства формируемых слоев. Определена оптимальная конструкция покрытия на основе оксида гафния-циркония позволяющая достичь наилучшее сочетание ширины запрещенной зоны, значений тангенса угла диэлектрических потерь.

Область исследований и результаты диссертационной соответствуют отрасли «технические науки». Задачи, содержание, полученные результаты соответствуют пунктам: 1. «Физико-химические процессы, протекающие при синтезе и выращивании кристаллических и аморфных материалов в объемном и пленочном состоянии для различных областей электронной техники»; 4. «Исследование электрических, магнитных, оптических, теплофизических свойств материалов и слоев»; 9. «Оборудование для электрофизических, электрохимических, ионно-плазменных и плазмохимических методов обработки, вакуумное и технохимическое оборудование» раздела III паспорта специальности 05.27.06 – технология и оборудование для производства полупроводников, материалов и приборов электронной техники.

2. Научный вклад соискателя в решение научной задачи и оценка его значимости

Одной из актуальных проблем современной микроэлектроники является внедрение в технологические процессы новых материалов с уникальными свойствами. К таким тонкопленочным материалам относятся сложные оксиды, свойства которых определяются их составом и структурой. Такие оксиды находят все большее применение в качестве функциональных слоев ячеек памяти, твердотельных газовых сенсоров и микро- электромеханических систем. Особый интерес вызывает использование сложных оксидов в качестве диэлектрика с высокой диэлектрической проницаемостью для замены подзатворного оксида кремния в МОП структурах. Первоначально в качестве таких альтернативных материалов рассматривались такие соединения как HfO_2 , ZrO_2 , TiO_2 , Al_2O_3 , Ta_2O_5 . Однако такие оксиды кроме определенных достоинств имеют ряд недостатков. Например, ряд оксидов имеет недостаточно высокие значения ϵ или E_g . Одной из задач улучшения свойств простых оксидов является их легирование и создание многокомпонентных материалов, основанных на сложных оксидах.

Автор диссертации поставил целью работы разработать методики контролируемого формирования тонких пленок сложных оксидов реактивным магнетронным распылением составных мишеней, а также предложить метод контроля и управления их составом, что позволит сформировать тонокпленочные слои с заданными электрофизическими свойствами и использовать данные тонкопленочные материалы в качестве диэлектрических слоев современных МОП интегральных схем.

Наиболее значимыми результатами диссертации Доан Тхе Хоанг, которые определяют научную новизну работы, являются:

- экспериментальные закономерности влияния параметров процесса высоковакуумного импульсного реактивного магнетронного распыления Ti-Al , Ta-Al , Hf-Zr , Ti-Zr составных мишеней в среде Ar/O_2 газов на разрядные и эмиссионные характеристики МРС, включая зависимость напряжения разряда и скорости нанесения пленок от значений эффективного коэффициента распыления и КИЭЭ мишени;

- изменение относительного содержания металлов в пленке за счет формирования пленок оксидов на поверхности каждой из частей мишени и различием скоростей их окисления;

- линейная зависимость между содержанием металлов в пленке и отношением интенсивности контрольных линий оптического излучения атомов этих металлов в

плазме магнетронного разряда, позволяющая контролировать элементный состав пленок в процессе их осаждения;

- модель магнетронного распыления составной мишени в Ar/O₂ смеси газов, которая позволяет прогнозировать с погрешностью менее 10 % соотношение содержания металлов в пленках

Таким образом, соискателем в полной мере решены все поставленные научные и практические задачи, и полученные результаты вносят весомый вклад в разработку теории и практики применения процессов реактивного магнетронного распыления для формирования тонкопленочных оксидных слоев сложного состава и использования данных пленок в качестве элементов оптоэлектронных приборов.

3. Конкретные научные результаты (с указанием их новизны и практической значимости), за которые соискателю может быть присуждена искомая ученая степень

Основные результаты диссертации Доан Тхе Хоанг, за которые может быть присуждена ученая степень кандидат технических наук, а также положения, выносимые на защиту, являются новыми и оригинальными. Наиболее важные из них следующие:

1. Установлены и обоснованы зависимости напряжения разряда магнетрона и скорости нанесения пленок от концентрации кислорода в Ar/O₂ смеси газов при высоковакуумном импульсном магнетронном распылении двухкомпонентных (Ti-Al, Ta-Al, Zr-Hf, Ti-Zr) составных мишеней. Показано, что напряжение разряда магнетрона и скорость нанесения пленок при изменении G_{O_2} определяются эффективными коэффициентом распыления и КИЭЭ мишени, которые зависят от площади, занимаемой металлами на мишени, степени их покрытия оксидом, коэффициентами распыления и ионно-электронной эмиссии этих металлов и их оксидов.

2. Установлены и теоретически обоснованы закономерности изменения интенсивности контрольных линий оптического излучения возбужденных атомов металлов AlI (396,15 нм), TiI (395,82 нм), ZrI (338,23 нм) HfI (368,22 нм) TaI (481,27 нм) в плазме магнетронного разряда при распылении Ti-Al, Ta-Al, Hf-Zr, Ti-Zr составных мишеней. Показано, что имеется линейная зависимость между соотношением содержания металлов в пленке и соотношением интенсивности контрольных линий оптического излучения атомов этих металлов. Это позволяет эффективно использовать метод ОЭС для прогнозирования и контроля содержания металлов в пленках при реактивном магнетронном распылении составных мишеней.

3. Разработана модель магнетронного распыления двухкомпонентной составной мишени, учитывающая распределение плотности ионного тока на мишени, коэффициенты распыления и КИЭЭ металлов и их оксидов, и скорости химической реакции образования оксидов. Модель была проверена экспериментально при распылении Ti-Al составных мишеней в среде Ar и Ar/O₂ рабочих газов. Установлено, что погрешность моделирования соотношения металлов в наносимых пленках при распылении мишени в среде Ar составила менее 5 %. При реактивном распылении модель позволяет прогнозировать содержание металлов в пленке в диапазоне G_{O_2} от 0 до 100 % с погрешностью менее 10 %.

Практическая значимость полученных результатов состоит в разработке научно-обоснованных технологических решений и приемов, реализация которых

позволяет существенно расширить область применения процессов импульсного реактивного магнетронного распыления для формирования изделий микроэлектроники, а именно разработанная в диссертационной работе методика нанесения пленок сложных оксидов импульсным реактивным магнетронным распылением составных мишеней, позволяющая обеспечить воспроизводимость состава и диэлектрических свойств осаждаемых пленок за счет контроля отношения интенсивностей контрольных линий оптического излучения возбужденных атомов распыляемых металлов будет использована в работе отраслевой лаборатории новых технологий и материалов ОАО «ИНТЕГРАЛ» управляющая компания холдинга ОАО «ИНТЕГРАЛ».

Копия справки о практическом использовании результатов диссертационной работы приведена в диссертации (Приложение А).

4. Соответствие научной квалификации соискателя ученой степени, на которую он претендует

Анализ содержания диссертации Доан Тхе Хоанг позволяет сделать вывод, что соискатель обладает необходимыми знаниями и понимает разнообразные процессы, протекающие при высоковакуумном импульсном магнетронном осаждении композиционных оксидов.

Все основные результаты, определяющие научную и практическую значимость работы, теоретические расчеты и интерпретация полученных данных выполнены автором лично или совместно с научным руководителем.

Результаты диссертационного исследования опубликованы в таких журналах как «Проблемы физики математики и техники», «Журнал технической физики», «Доклады БГУИР», а также «Электронная обработка материалов», которые соответствуют требованиям ВАК Республики Беларусь для публикации результатов диссертационных исследований.

Приведенные в диссертации результаты и рекомендации объективны и являются обоснованными, выводы аргументированы, вытекают из содержания проведенных исследований и отражают научные положения, представленные в работе.

Автореферат в полной мере отражает содержание диссертации. Достоверность результатов и выводов подтверждена публикациями в научных изданиях. Новизна и значимость, полученных в диссертации научных и практических результатов, и общий научный уровень работы свидетельствуют о высокой научной квалификации соискателя. Диссертация отвечает требованиям «Положения о присуждении ученых степеней и присвоении ученых званий в Республике Беларусь».

Совокупность научных и прикладных результатов диссертационной работы свидетельствует о высокой научной квалификации соискателя и его соответствии ученой степени кандидата технических наук по специальности 05.27.06 – технология и оборудование для производства полупроводников, материалов и приборов электронной техники.

С учетом выше указанного можно заключить, что *научная квалификация Доан Тхе Хоанг соответствует искомой степени кандидата технических наук.*

5. Замечания по диссертации

1. Пункт «Цель, задачи, объект и предмет исследования» включает «...является разработка методов контролируемого формирования тонких пленок

сложных оксидов реактивным магнетронным распылением составных мишеней, методов контроля...» однако в выводах диссертации и в автореферате нет информации о таких разработанных методиках.

2. Научная новизна Пункт 1. Не совсем понятно, в чем заключается новизна? В установленных рабочих давлениях, частоте следования импульсов или коэффициенте заполнения?

3. Из текста автореферата и диссертации не понятно каким образом полученные теоретические закономерности и методика нанесения пленок сложных оксидов будет применяться при нанесении термочувствительных структур на основе пленок легированного оксида ванадия.

4. В диссертации приведена методика определения ширины запрещенной зоны по методу Тауца, показано:

а-«...Для определения ширины запрещенной зоны пленки наносились на подложки из полированного оптического кварца марки JGS-1 (Япония). Данный кварц имеет коэффициент пропускания более 80 % на длине волны 190 нм...» При этом значения ширины запрещенной зоны достигали значений 5.5 эВ, что превышает область прозрачности подложки. Каким образом учитывалось влияние оптических свойств подложки (поглощение) на полученные результаты.

б- коэффициент поглощения рассчитывался по формуле 2,5, при этом отсутствует информация о методике получения спектра отражения.

5. В главе 2 указано что для контроля расхода рабочих газов использовали автоматические регуляторы расхода рабочих газов РРГ-1 м максимальным расходом газа 50 мл/мин. При этом в тексте диссертации указывается покрытия осаждали при изменении расхода Γ_{O_2} от 0 до 100 % в смеси рабочих газов Ar/O₂ что составляло 60 мл/мин.

6. В чем отличия методики формирования покрытий указанных в главе 2 от приведенной в главе 5 (пункт 5.1)? Целесообразность ее выделения отдельным пунктом.

7. В диссертации отсутствует информация о статистических методах обработки полученных экспериментальных данных, большинство полученных величин, значений приведено без указания погрешности измерения.

8. Из текста диссертации не понятно наличие пункта 3.7.2 в котором исследовалось влияние способа подачи газа в камеру при распылении оксида тантала. В последствии проводятся исследования о влияние способа подачи газа на формирование оксидных слоев Ti-Al.

9. Рисунок 5.46 а не правильно выбран масштаб оси Y, в результате чего наблюдается почти линейная зависимость диэлектрической проницаемости от частоты.

10. В работе допускаются, методические неточности, дискуссионные определения. В частности:

- используется термин высоковакуумного магнетронного осаждения – при давлении менее 0,1 Па– возможно ли использовать термин «высоковакуумное осаждение»?

- формулы в автореферате и диссертации не содержат размерности величин;

- в таблицах отсутствует размерность, указанных в ней величин (например таблица 3.7, страница 97 диссертации)

- встречаются опечатки, например в таблице 1.1. «... анатас...», а также не корректно сформулированные выражения, например стр. 30 диссертации

«... Хотя концептуально реактивное распыление просто, фактически, это сложный и нелинейный процесс...»

- Часть отображенных на графиках зависимостей приведены в некорректно выбранном интервале масштаба оси Y, что не позволяет точно определить их вид.

Приведенные замечания не затрагивают основных положений и выводов, содержащихся в диссертации, и не снижают значимости полученных результатов.

6. Заключение

Диссертационная работа Доан Тхе Хоанг «Формирование тонкопленочных слоев с высокой диэлектрической проницаемостью на основе сложных оксидов реактивным магнетронным распылением» соответствует требованиям ВАК Республики Беларусь, предъявляемым к кандидатским диссертациям в области технических наук, соответствует требованиям «Положения о присуждении ученых степеней и присвоении ученых званий в Республике Беларусь», содержит новые научно обоснованные результаты, совокупность которых вносит вклад в развитие оборудования и технологий для производства полупроводников, материалов и приборов электронной техники.

Соискатель Доан Тхе Хоанг заслуживает присуждения ученой степени кандидата технических наук по специальности 05.27.06 – «Технология и оборудование для производства полупроводников, материалов и приборов электронной техники» за новые научные результаты, включающие:

– экспериментально установленные зависимости изменения напряжения магнетронного разряда и скорости нанесения пленок композиционных оксидов от концентрации кислорода в Ar/O₂ смеси газов при распылении двухкомпонентных составных (Ti-Al, Ta-Al, Zr-Hf, Ti-Zr) мишеней, включая влияние отношения площадей занимаемых этими металлами в мишени, степени их окисления, а также изменения коэффициентов электронной эмиссии этих металлов и их оксидов.

– зависимость изменения концентрации элементов (металлов и кислорода) в покрытии от способа подачи газа в вакуумную камеру, включающую эффект увеличения GO_2 до 30 % для отдельной подачи газов, что связано с процессами формирования пленок оксидов на поверхности частей мишени и различием скоростей окисления металлов.

– улучшение диэлектрических характеристик сложных оксидов, а именно для Ti_{0,64}Al_{0,36}O_y покрытий увеличение ϵ от 7 – 13 до 17 – 23 и снижение $tg\varphi$ от 0,025 – 0,04 до 0,011 – 0,02 на частоте 1 кГц, при их осаждении высоковакуумным импульсным магнетронным распылением двухкомпонентных составных мишеней при отдельной подаче газов.

– установленные зависимости диэлектрических характеристик пленок сложных оксидов Ti_xAl_{1-x}O_y, Ti_xZr_{1-x}O_y, Ta_xAl_{1-x}O_y, Hf_xZr_{1-x}O_y от параметров процесса магнетронного распыления и степени легирования.

Отзыв оппонировавшей организации, подготовленный экспертом к.т.н., доцентом, ведущим научным сотрудником НИСа Пилипцовым Д.Г., назначенным приказом ректора УО «ГГУ им. Ф. Скорины» № 1176 от 27.09.2023 г. «О назначении эксперта по диссертации», рассмотрен и обсужден на расширенном заседании научного семинара научно-исследовательского физико-химического института УО «Гомельский государственный университет имени Франциска Скорины (протокол

№ 2 от 09 октября 2023 г.), на котором соискатель Доан Тхе Хоанг выступил с докладом.

На заседании присутствовали члены научного собрания:

всего – 17 чел., из них – 1 доктор химических наук, член-корреспондент НАН Беларуси (Рогачев А. В.), 1 доктор технических наук (Ярмоленко М. А.), 9 кандидатов технических наук (Купо А.Н., Пилипцов Д.Г., Аль-Камали М., Шершнев Е.Б., Федосенко Н.Н., Руденков А.С., Косенок Я. А., Воруев А.В., Голосов Д.А.- научный руководитель соискателя), 5 кандидатов физико-математических наук (Алешкевич Н.А., Семченко А.В., Тюменков Г.Ю., Гайшун В.Е., Самофалов А.Л.), магистрант (Фролов С.А.)

Результаты открытого голосования по отзыву оппонировавшей организации присутствовавших на заседании, которые имеют ученые степени:

за – 15, против – нет, воздержавшихся – нет.

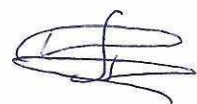
Председатель научного собрания
член-корреспондент НАН Беларуси,
доктор хим. наук, профессор

 А.В. Рогачев

Секретарь собрания
кандидат технических наук, доцент

 Н.Н. Федосенко

Эксперт
кандидат технических наук, доцент

 Д.Г. Пилипцов