

行政院國家科學委員會專題研究計畫成果報告

二維約瑟芬界面三角陣列與熱電子輻射偵測混波元件 之製備與特性研究(第一年)

Fabrication and characterization of 2D-triangular Josephson Junction array and Hot electron Bolometer Mixer(I)

計畫編號：NSC 87-2112-M-009-024

核准執行期限：86年8月1日至87年10月31日

(註：本計劃因主持人出國進修一年，故曾申請並獲准延長執行期限三個月，核准文號：87臺會綜二字 022219 號)

主持人：莊振益教授(交通大學電子物理系)

一、中文摘要

本計劃在第一年執行期限內，在嘗試於超導薄膜上的各項蝕刻技術，均遭遇重大阻礙後，乃於最近改以選擇性磊晶成長法(Selective Epitaxial Growth: SEG)臨場(In-situ)形成微米尺寸薄膜元件結構。所謂 SEG 法，係在單晶基板上濺鍍(或以電子束蒸鍍)一層鈦金屬層後，將之圖案化(此過程可以用濕蝕刻或反應式離子蝕刻 Reactive ion etching 進行)，將之作為成長 YBCO 超導薄膜的模板(template)。初步結果顯示，在被 Ti 覆蓋的基板區域之 YBCO 薄膜非超導薄膜，且顯微結構相當粗糙，而直接成長於曝露之單晶基板上的 YBCO，則成臨場性質與構造均相當優異的超導薄膜。由於此法可免去直接在超導薄膜上進行圖案化製程的各種缺點，將很適合本計劃所擬研製的元件構造之製備。進一步地製程最佳化，刻正進行中。

關鍵詞：選擇性磊晶成長、超導薄膜、臨場形成微米尺寸元件構造、圖案化鈦金屬薄膜。

Abstract

In the first year period of the present three-year project, we have successfully demonstrated a viable process of fabricating micron-size YBCO thin film structures in-situ. The selective epitaxial growth (SEG) process can be briefly described as followings. A titanium layer (about 100 nm thick) is deposited (by either sputtering or e-beam evaporation) on the single crystalline ceramic substrates. The Ti-layer is then patterned into desired device structure either

by wet etching or reactive ion etching technique. The patterned substrate is then used as the growth template for YBCO films deposited by pulsed laser deposition. The preliminary results showed that, for films grown on areas covered by Ti pattern, the grain morphology is very rough and not superconducting. Whereas, for films deposited directly on the exposed substrate area, the microstructure is very smooth and superconductivity is obtained in-situ. To us, this is indeed a very encouraging result. It implies that the shortcomings of patterning directly on YBCO films (that we have been encountering and trying to overcome very hard over most period of last year) can be completely avoided. We believe this would become the major breakthrough for preparing the device structures proposed in the present three-year project.

Keywords:

YBCO superconducting films; selective epitaxial growth; in-situ formation of micro-sized structure; Titanium layer patterning.

二、緣由與目的

1989 年，在高溫超導剛被發現的兩年以後，John Rowell[1]曾經展望高溫超導發展的前景。他認為影響高溫超導步調的兩個最重要的因素為：市場需求及吾人對於高溫超導氧化物這類材料的瞭解與製程掌握。在市場需求方面，他當時認為大部分的技术與發展將在尋求取代目前的 Nb 材料。亦即大部分的元件，不管是高磁場運用或電子元件，將仍大量運用由傳統超導

所獲得的知識與技術概念。所以最關鍵的因素仍在於對材料的瞭解與製程的掌握。現在，高溫超導的研究已走過了第一個十年，檢視十年來高溫超導研究所走過的足跡，我們不禁佩服 John Rowell 的洞見。在經過十年的全球性努力之後，如何將研究重點從材料製程的最佳化迅速轉換至實際上的應用，已成為這個領域的大部分研究者所達成的少數幾項共識之一。在這種大環境的趨勢背景下，如何在現有的基礎上開拓新境，就是我們研究群的參與者在多次 meeting 時所思考的問題。

本計劃乃在前述的背景與研究群的共識下，提出以本研究群目前在高溫超導薄膜製備與特性研究的豐富經驗為基礎，進一步對超導元件應用作更具體的研究。如所週知，超導元件，不管是在主動元件或被動元件，和相似的半導體或金屬元件比較，其最大的優點，除了具低失真、低損耗及快速反應特性外，最重要的一項優點就是可適用於較寬廣的頻率範圍。以約瑟芬接面為例，本質上就是一個同時具有精巧(compact)與可調(tunable)特性的毫米波(視其能隙大小而定)之輻射源(radiation source)。但其最大的缺點是各別元件所能釋放的輻射功率大約僅在 10 ~ 500 奈瓦之譜，並不適用一般商用的規格。因此在應用的實務上，便有如：一維或二維的陣列設計應運而生[2][3]。期能藉元件間的耦合，提升其輸出的輻射功率。然而在這類矩形的陣列中，有其本質上的困難。近年來，乃有所謂一維三角陣列的構想被提出[4]。計算顯示，在一維三角陣列的組態中，所有的約瑟芬振盪元件，可以有很強的耦合，因此可以大幅提升其輸出功率。而在二維三角陣列中，由於多了一個可以調變相鄰陣列間的耦合強度，而可產生鎖模脈衝源(mode-locked pulsed source)(當耦合弱時)或成為單頻輻射源(monochromatic source)(當耦合因陣列間的對稱性被破壞而增強時)[5]。這種套特性不惟在其他形式的元件中無法得到，其若可實際上製備成功，則將一個可產生脈衝的陣列和一天線陣列整合在一起

在同一晶片上，將可在高解析度雷達成像及通訊應用上有極大的應用。這也是本計劃的最主要研究目標之一。

在另一方面，熱電子輻射偵測元件(Hot Electron Bolometer Mixer)則是三年多以前方由耶魯大學的 D. E. Prober[6]所提出的一種用於 THz 混波偵測的新的觀念。傳統上在 THz 範圍的混波偵測元件主要是由 Schottky diode 積聚天線結構，或由超導-絕緣-超導(S-I-S)接面元件所構成，前者受限於 Schottky diode 的本質特性，(noise temperature 可高達 8000K)，後者則受限於超導材料的能隙產生 quasiparticle 而無法在更高的頻率範圍上當作 reciver 使用，由於 HEB 的主要概念係利用超導薄膜在接受輻射照射後，電子之溫度提高，故在其臨界轉變(critical transition)附近時，薄膜本身之電阻係數將產生很大變化，且因其係經由聲子冷卻(phonon cooling)或擴散冷卻(diffusion cooling)等機制產生變化，故基本上並無偵測之上限，而且其 noise temperature 隨著使用材料之不同，(Nb、NbN 或 YBCO)約在 50 - 500K 之範圍[7]。顯示其在 THz 之異類混波偵測(heterodyne detection)上之應用潛力，亦是不可限量。

由於要達成前述之研究目的，除了薄膜蒸鍍技術之外，最重要的是如何製備可靠的微米尺寸以下的元件構造。在本計劃的第一年研究中，蝕刻及圖案化超導薄膜乃為首先要克服的課題。

三、結果與討論

本計劃第一年規劃的主要工件乃是製備性質、結構均勻的超導薄膜及在這些薄膜上製作各種不同尺寸大小及造型之微橋構造。在研究進行初期，主持人因奉準出國前往美國國家標準暨技術研究所研究一年，實驗工作進程雖仍照常進行，但許多結果及中間遭遇的問題，則不易及時解決。再加上原擬使用的反應式離子蝕刻機因無經費於當機後無法適時修復，而使這部分的工作遭到延遲。再加上溼蝕刻技術，在形成微米尺寸微橋結構時，效果並不穩定。此時吾人正好在期刊上發現由

Damen 等人[8]的論文。該論文述及以 Ti、Nb 或 W 圖案化基板表面而得到臨場成長微米尺寸之 YBCO 薄膜超導結構的結果。由於此一製程係圖案化該金屬而非超導薄膜本身，而金屬層的圖案化又是半導體的標準製程。因此在本年度的後半段，吾人乃開始此製程的研究工作。由於這部分的工作目前仍持續進行改進之中。在此一進度報告中，吾人僅告一些初步結果，以顯示此一製程發展，對本計劃下兩年研究工作得以順利進行的重要性。

圖一和圖二分別顯示以 SEM 成像之在有鈦層覆蓋和基板表面直接曝露區域，所成長之鈮系薄膜的顯微結構。可以發現二者的顯微結構有非常明顯的差異。其中圖二的結構甚至比我們往常直接在單晶基板上成長的 YBCO 薄膜還要平整。而圖一中的顆粒狀物質，則顯示以脈衝雷射蒸鍍上的 YBCO 在近 700°C 的成長溫度下，可能有與鈦層有某種程度的化學反應。由於在 YBCO 的成長環境下，腔體內通常有 200mtorr 左右的氧氣，吾人相信，該等顆粒應是 Ba-Ti-O 的反應生成物。X-光繞射分析亦顯示在不同區域上成長的薄膜於結構上亦有相當的差異，除了超導區域確定為 c-軸取向的超導相之外，非超導區域所含的相則刻正分析研究中。另由初步的電性測量結果顯示超導相的超導溫度幾可和一般直接成長的薄膜相當，而非超導相區域則為絕緣體。此一結果(將發表於 1999 年物理年會，如附件)顯示吾人應可直接以此一製程來形成微米尺寸微橋及形成網狀微橋以製備約瑟芬接面陣列。目前我們正和美國馬里蘭大學電機系合作，製作所需之光罩，期能在近期內對本研究計劃所擬進行之研究工作有進一步之重大突破。

四、計劃成果自評

如前面所述，本計劃在第一年執行期間因主持人出國研究一年，以及設備故障等因素，研究進度顯有落後，不過在嘗試新的製程及大部分儀器設備均已陸續修復恢復工作後，吾人相信必可在短期內趕上進度，並如期完成第二年的研究進度。尤其是主持人在出國一年期間，亦和國際間幾個研究單位建立了實質的合作研究關係，此對本計劃的執行應都有正面的幫助。(註):出國研究期間，研究題目主要集中在超導薄膜的微波表面電阻量測，其成果已呈交回國結案報告中，此不另再贅述。

五、References :

- [1] M. Rowel, "Historical Perspection on today's progress towards application of High-Tc Superconductors", 2nd workshop on High-Temperature Superconducting Electronic Device, June 7-9, 1989, Japan.
- [2] S. P. Benz et. al., Appl. Phys. Lett. 58, 2161(1991); J. S. Martens et. al., Appl. Phys. Lett. 63, 1681(1993).
- [3] S. Han et. al., Appl. Phys. Lett. 64, 1424(1994).
- [4] S. P. Yukon and N. C. H. Lin, IEEE Trans. Appl. Supercond. 5, 2959(1996).
- [5] S. P. Yukon and N. C. H. Lin, IEEE Trans. Appl. Supercond. 7, 3115(1997).
- [6] D. E. Prober, Appl. Phys. Lett. 62, 2119(1997).
- [7] Yu. P. Gousser et. al., Supercond. Sci. Technol. 9, 779(1996).
- [8] C. A. J. Damen, H-J. H. Smilde, D. H. A. Blank, and H. Rogalla, Supercond. Sci. Technol. 11, 437(1998).

附 件

Selective epitaxy of patterned YBCO structures on Ti-masked substrates

J.Z. Lin (林均姿), Y.K. Cheng (鄭裕國), Y.C. Chuang (莊直霖), S.P. Chen (陳世濤), W.J. Huang, J.Y. Juang, K.H. Wu, T.M. Uen, and Y.S. Gou

Department of Electrophysics, National Chiao-Tung University, Hsinchu, Taiwan, Republic of China

One of the key obstacles of fabricating YBCO structures with feature sizes in the submicron range is the inevitable fatal damage commonly encountered in various etching and patterning processes. Here we present results of a recently developed process which could be viable of making YBCO superconducting thin films with desired feature sizes and structures *in-situ*. Electron beam evaporated and rf-sputtered titanium films (about a few tens of nanometers thick) on single substrates of SrTiO₃ and MgO were first patterned and etched by usual photolithography processes to create Ti-masked substrates. The YBCO films were subsequently deposited by pulsed laser deposition. The resultant films show excellent *in-situ* superconductivity in areas without Ti coverage. Whereas in areas covered by Ti the films appeared to be transparent, instead of shining blackish appearance as expected for superconducting YBCO, and no sign of superconductivity was observed. In addition, the boundary between those two are as appears to be very sharp and well defined by the underlying pattern of the titanium layer. The results indicate that well-behaved selective epitaxial growth prevails. Detailed results on the microstructure and superconducting property characterizations of micron-sized selective epitaxial structures will be presented. The nature and possible mechanisms responsible for the observed selective epitaxy will be discussed, as well.

宜讀論文或壁報論文，由主辦單位決定。

宜讀論文者姓名：林均姿 小姐 職稱：碩士班研究生

摘要分類：超導

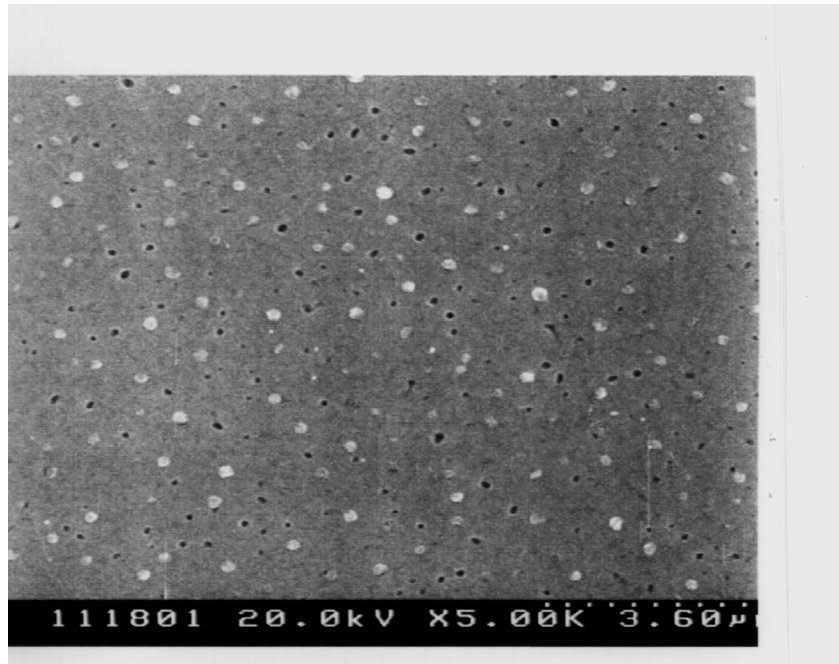
聯繫的作者姓名：莊振益

地址：新竹市大學路 1001 號交通大學電子物理系

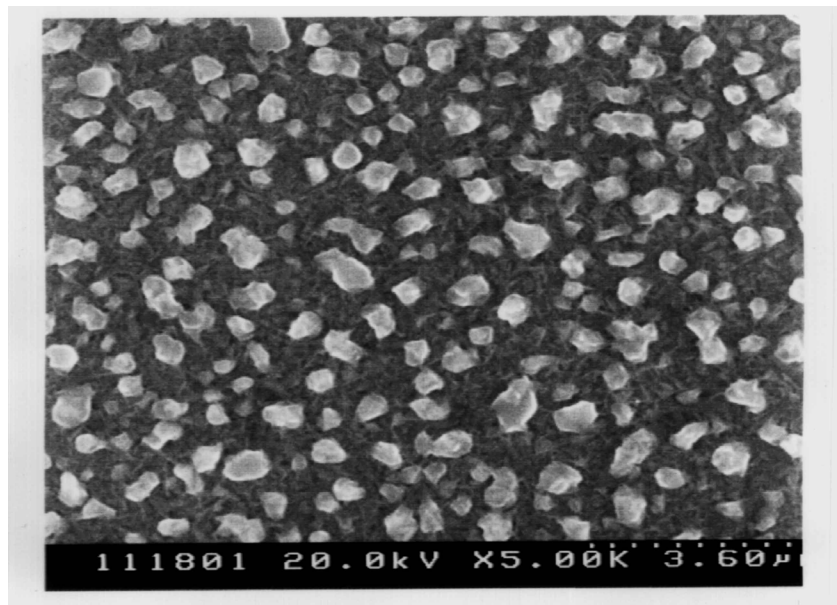
E-mail: jjjuang@cc.nctu.edu.tw

Fax: 03-5725230

Phone: 03-5712121 ext. 56116



圖一：以 SEM 成像之在基板表面直接曝露區域所成長之鈮系薄膜的顯微結構。



圖二：以 SEM 成像之在有鈦層覆蓋區域所成長之鈮系薄膜的顯微結構。