

Nb/Al-AlO_x/Nb 隧道结的制备*

张永明 李元 杨森祖 吴培亨

(南京大学信息物理系)

1987 年 6 月 22 日收到

提 要

本文报道了在射频磁控溅射装置上 Nb/Al-AlO_x/Nb 隧道结的制备工艺和所获得的结果。对 SIS 三层结构形成时基片的温度、势垒,以及电极形成方法等问题进行了讨论。

一、引 言

用 Nb 作电极制成的全 Nb 隧道结,其热循环性能和力学性能均优良。在电压基准、SQUID、微波混频等研究中得到了日益广泛的应用。

全 Nb 隧道结的势垒可采用 Nb 氧化生成,但 Nb₂O₅ 的介电常数大^[1],因此结电容大,这对某些方面的应用是不利的;而且, Nb 的氧化物成分比较复杂,除了 Nb₂O₅ 之外,还有 NbO, Nb₂O 等亚氧化物,它们的存在会造成 Nb 结的漏电流大,从而难以制出高质量的全 Nb 隧道结。全 Nb 隧道结的势垒也可以通过淀积异质膜并加以氧化来形成。通常以淀积 Al 并加以热氧化来形成 Al₂O₃ 势垒,它具有性能稳定、介电常数小的优点。用这种势垒制成的 Nb/Al-AlO_x/Nb 隧道结是目前全 Nb 隧道结中质量最好的一种^[2]。

本文报道了在国产 JS-450A 装置上,用射频磁控溅射制成了 Nb/Al-AlO_x/Nb 隧道结,结区面积为 0.01—2mm²。制备这种隧道结类似于文献[3]的方法。不同之处在于:下电极的图形用不锈钢金属掩模确定;上电极则是在不打开钟罩的条件下三层结构形成后,采用化学蚀刻和阳极氧化相结合的方法,以光刻胶为掩模来制备的。XTEM 和 AES 的分析均表明,这种工艺制备的势垒层没有针孔,界面清晰、平整。文中讨论了基片温度与结质量的关系,给出了典型的 *I-V* 曲线。该工艺已被用来制备全 Nb 的约瑟夫森传输线,并在其上研究了孤子传播的有关特性。

二、实验装置和制备过程

实验装置采用改装的 JS-450A,真空室中有 Nb 和 Al 两个高纯靶。溅射时所用的高纯 Ar 气纯度为 99.999%,氧化 Al 层所用的高纯氧气纯度为 99.999%。真空度中装有液氮冷阱,系统的极限真空度优于 8×10^{-7} Torr, Nb 膜的 *T_c* 值达 9.2K。

* 国家自然科学基金资助的课题。

样品制备过程如下:

1. 通过金属掩模淀积下电极 Nb 和势垒 Al. 下电极 Nb 膜的厚度为 2000—3000 Å (溅射速率—25 Å/s), 溅射时阳极电压为 3kV, Ar 压为 1×10^{-2} Torr, 石英基片的温度为 300—400°C. 势垒 Al 的厚度为 50—150 Å (溅射速率为 3—4 Å/s), 阳极电压为 0.8kV, Ar 压为 8×10^{-3} Torr, 基片不加热. 溅完 Nb/Al 层后, 将金属掩模弹起, 此时基片上的 Nb/Al 层结构见图 1(a) 所示.

2. 氧化 Al 势垒、淀积上电极 Nb 膜 氧化 Al 势垒时, 充入 2×10^{-1} Torr 的氧气, 氧化的典型时间为 15min^[4]. 淀积上电极 Nb 膜时基片不加热, 膜厚约为 2000 Å. 通过以上步骤, Nb/Al-AlO_x/Nb 三层结构就在不打开真空室的条件下, 用“一次叠成”法形成了, 其结构如图 1(b) 所示.

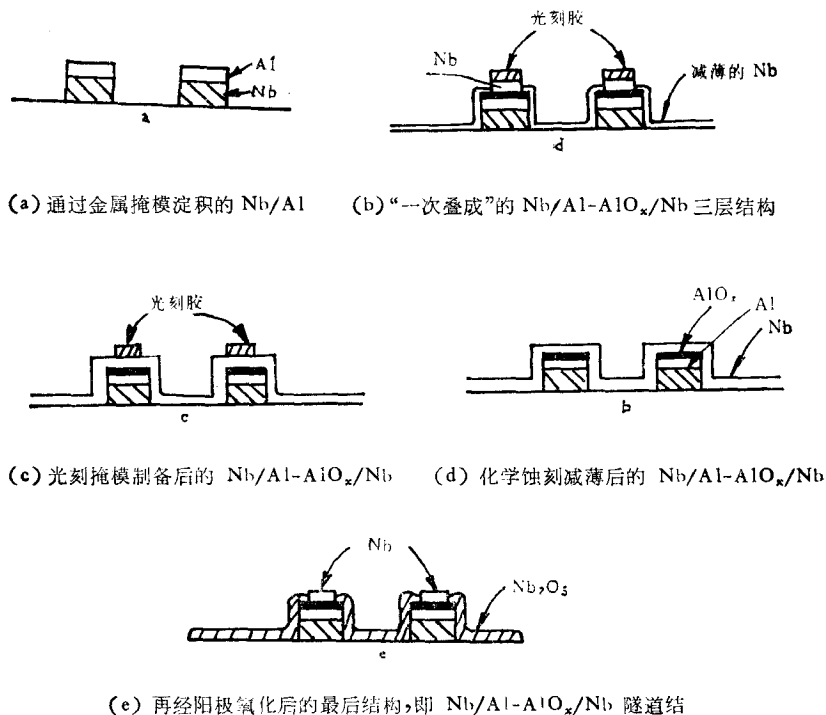


图 1 制备 Nb/Al-AlO_x/Nb 隧道结的工艺流程

3. 上电极图形的确定 我们采用 AZ1350J 正性光刻胶为掩模, 化学蚀刻和阳极氧化相结合的方法制备上电极. 当光刻胶掩模制备完毕后(结构如图 1(c)), 先用 Nb 的蚀刻液($\text{HNO}_3:\text{HF}:\text{H}_2\text{O} = 6:1:10$) 将顶层 Nb 膜的露出部分减薄到半透明状(≈ 500 Å), 其结构如图 1(d), 再用阳极氧化的方法^[5], 将这 ~ 500 Å 厚的 Nb 膜以 $0.5\text{mA}/\text{cm}^2$ 的恒流氧化成 Nb₂O₅. 这种方法制备的全 Nb 隧道结的上电极厚度不受限制, 我们取的典型值是 2000 Å. 最终制成的隧道结的结构如图 1(e) 所示. 用此工艺可以制成交叉结或共线结, 做成的共线结已用来进行孤子传播特性的研究, 并取得了初步的结果^[6].

三、讨论与结果

1. SIS 三层结构形成过程中基片的温度

适当的基片温度是制备以 Al 为势垒的全 Nb 隧道结的关键。在淀积 Al、氧化 Al 以及淀积上层 Nb 时,为防止 Al、O 扩散到 Nb 膜中,均不采用加热的方法,而是使基片冷却下来^[4],以保证 Nb 与 Al 界面的清晰,我们在氧化 Al 层前通入 1 Torr 的 Ar 气(5min),就是为了这个目的。但在淀积下电极 Nb 时,通过加热可以将基片上的杂质清除掉,减少吸附气体的影响,提高 Nb 膜的质量。所以在溅射下电极 Nb 前将基片加热到 300—400°C,以增加基片与淀积膜之间的结合力,使结构致密。

2. 电极成形方法

下电极的图形是用金属掩模来成形的。我们在成形上电极时发现,若仅用化学蚀刻的方法,上电极的图形精度难以保证,且易损伤势垒和下电极;若仅用阳极氧化的方法来形成上电极,由于光刻胶的耐压有限,而不能将较厚的上电极 Nb 膜氧化到底。而采用化学蚀刻和阳极氧化相结合的方法则既能保证上电极有一定厚度和精度,又能防止势垒层的损伤。

3. 势垒和隧道特性

在淀积 Al 时,溅射速率为 3—4 Å/s 较合适。若速率过大,会造成势垒的不均匀。

图 2 是 Nb/Al-AlO_x/Nb 三层结构的 XTEM 图。图中白的部分是势垒,黑的部分是 Nb。制备样品时均未加热。势垒的制备是以 0.8kV 的阳极电压(在 1×10^{-2} Torr 的 Ar 压下)溅射了 35s,从照片上可以直接算出势垒厚度为 150 Å 左右,这和我们从溅射速率(3—5 Å/s)推算出的厚度相符合。从图 2 中可以看出 Al 势垒的界面清晰,没有针孔。

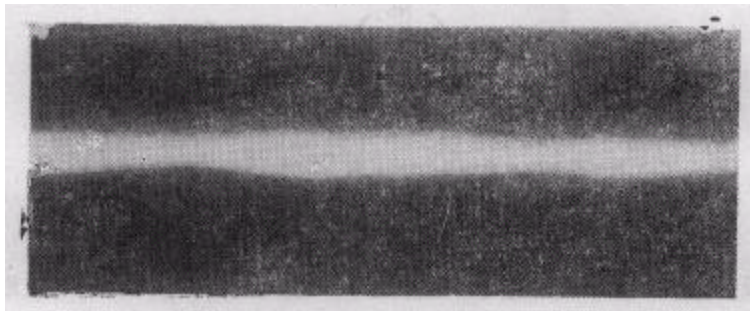
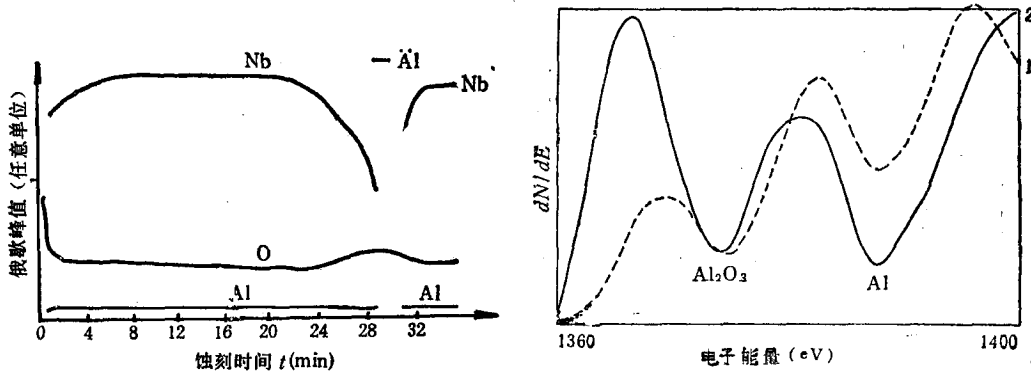


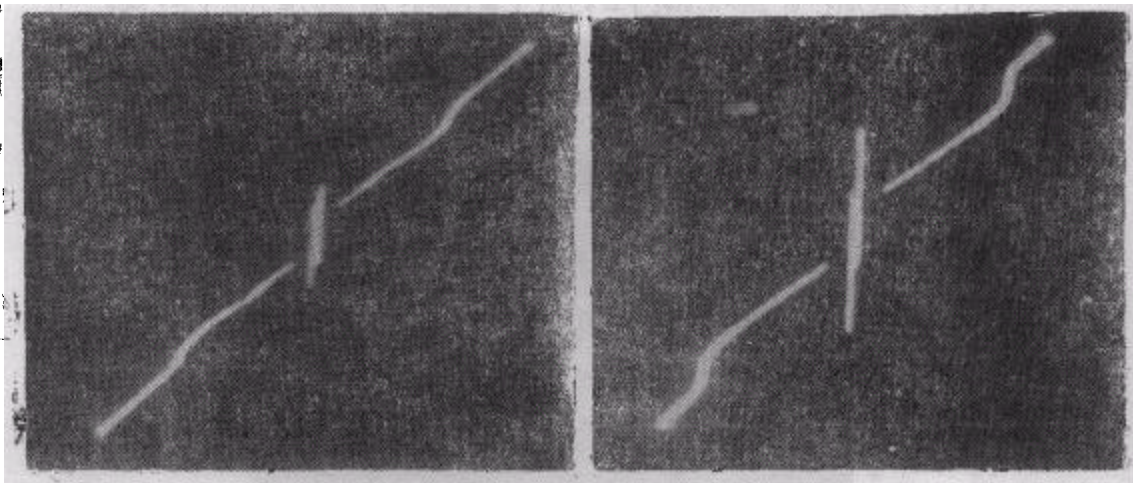
图 2 Nb/Al-AlO_x/Nb 隧道结剖面的 XTEM 图 (x 284,000)

对于全 Nb 隧道结,可以用俄歇电子能谱来分析它各层结构中的成份。在 PHI550 型仪器上对一个下电极淀积时不加热的全 Nb 隧道结进行了蚀刻分析,图 3(a) 是所测得 Nb, O, Al 三种元素的俄歇谱峰-峰值与蚀刻时间的关系。上电极 Nb 中,间隙氧原子的百分比浓度为 1.7%,而在 Al 势垒层下面的下电极中,间隙氧原子的百分比浓度为 5.3%,据文献 [5] 的结果, Nb 膜的 T_c 值上电极为 7.8K,下电极为 4.5K。该样品对应的 $I-V$

(a) Nb/Al-AlO_x/Nb 隧道结的俄歇谱蚀刻图

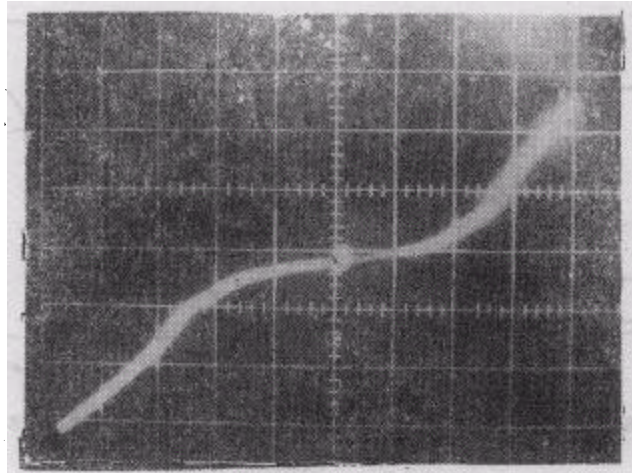
(b) Al 势垒的 AES 分析曲线

图 3

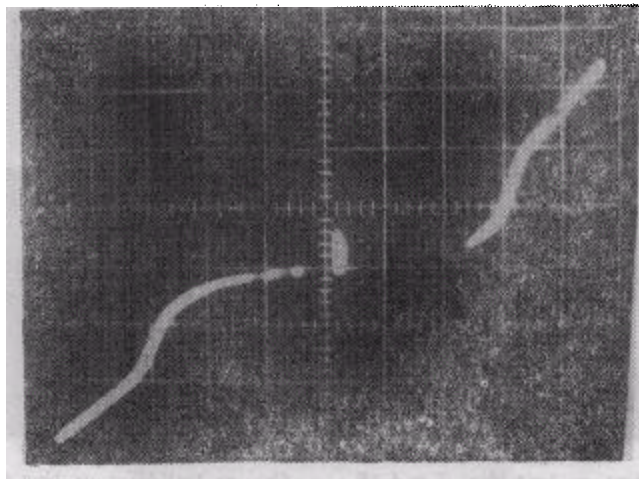
(a) $x: 1\text{mV/div}; y: 1\text{mA/div}; T = 4.2\text{K}$ (b) $x: 1\text{mV/div}; y: 1\text{mA/div}; T = 2.2\text{K}$ 图 4 Nb/Al-AlO_x/Nb 的 I - V 特性曲线(基电极淀积时不加热,结面积 $\sim 1\text{mm}^2$)

曲线见图 4, 从图 4 中可看出当 $T = 4.2\text{K}$ 时, $|\Delta_1 - \Delta_2|/e \approx 0.9\text{mV}$, $\frac{|\Delta_1 + \Delta_2|}{e} \approx 1.8\text{mV}$; 当 $T = 2.2\text{K}$ 时, $|\Delta_1 + \Delta_2|/e \approx 2.2\text{mV}$, 且 I_c 变大, 这和一个电极 T_c 高、另一个电极 T_c 低以及 $\Delta(T)$ 随温度降低而变大的事实相符. 图 3(b) 是这个样品的窄带俄歇谱分析曲线. 图中的曲线 1 是刚蚀刻完上电极 Nb 时做的分析, 可看出此时是以 Al_2O_3 为主; 曲线 2 是蚀刻 Al 势垒层快结束时做的分析, 此时 Al_2O_3 和 Al 的成份均有, 但以 Al 居多. 注意图 3(a) 中的 Al 的俄歇谱蚀刻图可以看出势垒层的界面是清楚的, 故只有在很短一段蚀刻时间内有 Al 元素的 AES 峰.

图 5 是另一样品的 I - V 曲线, 其下电极淀积时基片加热到 360°C , 可以看出结的特性有很大改善. 在 4.2K 时, $|\Delta_1 + \Delta_2|/e \approx 2.8\text{mV}$; 而在 2.2K 时, $|\Delta_1 + \Delta_2|/e \approx 3.1\text{mV}$, 达到了全 Nb 隧道结较大的能隙电压值^[6]. 此样品的 $V_m (= I_c \cdot R_j (2\text{mV}))$ 值在 4.2K 时约为 3.8mV ; 而在 2.2K 时, V_m 值约为 16mV . 可见 Nb/Al-AlO_x/Nb 隧道结在淀积下电极时, 加热基片确实有助于提高样品的质量.



(a) x : 1mV/div; y : 200 μ A/div; $T = 4.2\text{K}$; $I_c = 150\mu\text{A}$; $R_j(2\text{mV}) = 25\Omega$; $V_g \approx 2.8\text{mV}$



(b) x : 1mV/div; y : 200 μ V/div; $T = 2.2\text{K}$; $I_c = 330\mu\text{A}$; $R_j(2\text{mV}) = 50\Omega$; $V_g \approx 3.1\text{mV}$

图5 Nb/Al-AlO_x/Nb 的 I - V 特性曲线(基电极淀积时加热, 结面积 $\sim 0.1\text{mm}^2$)

I_c 是根据文献[7]推出

四、结 论

我们的实验结果表明:

1. 在 JS-450A 装置上采用本文方法可以制备出令人满意的 Nb/Al-AlO_x/Nb 隧道结, 能隙电压 V_g 达 3mV, V_m 值达 16mV (2.2K 时).

2. 制备样品过程中基片的温度与结的质量密切相关. 溅射下电极时, 应加热基片到 300—400°C, 溅射、氧化 Al 以及溅射上电极 Nb 时应使基片不加热, 并设法使之冷却下来.

3. “一次叠成” SIS 三层结构是制备高质量全 Nb 隧道结的另一关键. 由于采用了金属掩模来确定下电极图形, 故结的尺寸不能做得太小, 但这已允许我们做出共线式的隧道结, 并用于研究孤子的传播特性.

4. 上电极采用化学蚀刻和阳极氧化相结合的方法, 既保证了上电极图形的精度和厚度, 又能防止势垒和基电极的损伤。

5. XTEM 和 AES 分析表明, Al 势垒的界面清晰, 没有针孔。在势垒的上层以 Al₂O₃ 为主, 在势垒的下层以 Al 为主, Al 的氧化物为 Al₂O₃, 性能稳定。

文中的 XTEM 照片是中国科学院北京电子显微镜实验室的褚一鸣研究员和都安彦同志帮助拍摄的, 在此表示感谢。

参 考 文 献

- [1] L. Young, *Anodic Oxide Films*, Academic Press, New York, (1971).
- [2] S. Morohashi *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **48**(1986), 254.
- [3] H. Kroger *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **39**(1981), 280.
- [4] H. A. Huggins and M. Gurvitch, *J. Appl. Phys.*, **57**(1985), 2103.
- [5] C. C. Koch *et al.*, *Phys. Rev.*, **B9**(1974), 888.
- [6] 张永明, 约瑟夫森传输线中孤子传播的研究, 硕士论文, 南京大学, (1987).
- [7] R. F. Broom *et al.*, *IBM. J. Res. Develop.*, **24**(1980), 212.
- [8] J. Bostock *et al.*, in: *Superconductivity in d-and f-Band Metals*, 2nd Rochester Conference, D. H. Douglas (Ed.), New York, (1976).

PREPARATION OF Nb/Al-AIO_x/Nb TUNNEL JUNCTION

ZHANG YONG-MING LI YUAN YANG SEN-ZHU WU PEI-HENG

(Department of Information Physics, Nanjing University)

ABSTRACT

This paper reports the process for fabricating Nb/Al-AIO_x/Nb tunnel junction using rf-magnetron sputtering. The S-I-S sandwich structure is prepared without breaking vacuum. A detailed AES and XTEM analysis of the Nb/Al-AIO_x/Nb sandwich structure shows the good quality of Al barrier. Typical *I-V* characteristic curves of tunnel junction are also given.