

面向窄线宽超导纳米线单光子探测器的 电子束曝光技术^{*}

汤演^{1,2,3}, 刘晓宇^{1,2}, 潘一铭^{1,2,3}, 周慧^{1,2}, 尤立星^{1,2,3†}

1. 中国科学院上海微系统与信息技术研究所, 信息功能材料国家重点实验室, 上海 200050;

2. 中国科学院超导电子学卓越创新中心, 上海 200050;

3. 中国科学院大学, 北京 100049

收稿日期: 2020-04-07; 接收日期: 2020-05-16

【摘要】 超导纳米线单光子探测器是新型超导电子器件, 因其具有高探测效率、低暗计数及低时间抖动等优势, 在量子信息、激光雷达等方面已得到广泛的应用. 目前主流超导纳米线单光子探测器主要工作在 $1.5\ \mu\text{m}$ 以下的可见光和近红外波段. 中红外波长的红外探测技术在基础科学、医学、日常生活以及军事等广泛领域发挥着重要作用, 中红外单光子探测器可以使得中红外波段探测技术进入量子极限灵敏度. 根据超导纳米线单光子探测器探测机理, 超窄线宽的纳米线条可以提升超导纳米线单光子探测器在中红外波长的灵敏度. 电子束曝光技术是目前实现超导纳米线单光子探测器纳米线条加工的主流技术, 电子束抗蚀剂种类繁多, 面向超窄线宽超导纳米线单光子探测器器件的制备需求, 对两款抗蚀剂进行性能测试表征, 和窄纳米线制备尝试. 根据负性电子束抗蚀剂 MaN-2401 在制备窄线宽时的显著优点, 优化工艺, 利用其成功制备出 $50\ \text{nm}$ 线宽超导纳米线单光子探测器并成功实现了 $2000\ \text{nm}$ 的单光子响应.

关键词: 超导纳米线单光子; 电子束曝光; 电子束抗蚀剂; 红外波段单光子探测; MaN-2401

PACS: 85.25.Pb, 42.82.Cr, 81.16.Nd, 85.40.Hp

DOI: 10.13380/j.ltpl.2020.04.004

Electron-beam Lithography for Narrow Linewidth Superconducting Nanowire Single-Photon Detector

TANG Yan^{1,2,3}, LIU Xiaoyu^{1,2}, PAN Yiming^{1,2,3}, ZHOU Hui^{1,2}, YOU Lixing^{1,2,3†}

1. State Key Lab of functional materials for informatics Shanghai Institute of Microsystem and Information Technology,

Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200050, China;

2. Center for Excellence in Superconducting Electronics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200050, China;

3. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China

Received date: 2020-04-07; accepted date: 2020-05-16

【Abstract】 Superconducting nanowire single photon detector (SNSPD) is a novel superconducting electronic device, which has advantages of high detection efficiency, low dark count rate and low time jitter, SNSPD has been widely used in quantum information, lidar and other fields. At present, the mainstream SNSPD mainly works in the visible and near infrared band with the wavelengths below $1.5\ \mu\text{m}$. The mid-infrared detection technology plays an

^{*} 国家重点基础研究发展计划重点专项(批准号:2017YFA0304000)和国家自然科学基金(批准号:61671438)资助的课题..

[†] lxyou@mail.sim.ac.cn

important role in basic science, medicine, daily life, military and other fields. The mid-infrared single photon detector may provide the mid-infrared detection technology with quantum limit sensitivity. According to the detection mechanism of SNSPD, ultra-narrow nanowires can improve the sensitivity of SNSPD in mid-infrared wavelength. At present, electron-beam lithography is the key nano-fabrication technique for SNSPD. There are many kinds of electron beam resists. In order to meet the fabrication requirements of SNSPD devices with ultra-narrow linewidth, we tested and characterized two resists for producing ultra-narrow nanowires. With using the negative electron beam resist MaN-2401, we optimized the fabrication processes and successfully fabricated SNSPDs with 50 nm linewidth nanowire. The single photon response of 2000 nm wavelength was demonstrated successfully.

Keywords: Superconducting nanowire single-photon detector; Electron-beam lithography; Electron beam resists; Mid-infrared; MaN-2401

PACS: 85.25.Pb, 42.82.Cr, 81.16.Nd, 85.40.Hp

DOI: 10.13380/j.ltpl.2020.04.004

Reference method: TANG Yan, LIU Xiaoyu, PAN Yiming, ZHOU Hui, YOU Lixing, Low. Temp. Phys. Lett. **41**, 0199 (2020)

1 引言

光学探测的极限是实现单个光子的探测,那么如何实现单光子探测?针对这一问题,近年来发展出了单光子探测(SPD)这一门前沿学科,各种不同原理的SPD器件应运而生,并且在激光测距、生命医学及天文学等领域发挥着不可替代的作用.特别是由于近二十年来量子信息技术的快速发展对高性能SPD提出了更加迫切的需求,SPD也逐渐成为量子领域的核心器件.

传统的SPD器件在常温下工作,比如光电倍增管(PMT)、雪崩光电二极管(APD)等.随着量子信息等领域对高性能SPD的需求,基于超导材料的多种SPD也应运而生,比如超导隧道结探测器(STJ)、微波动态电感探测器(MIKID)、超导转变沿传感器(TES)以及超导纳米线单光子探测器(SNSPD)等.自2001年SNSPD首次实验报道以来^[1],作为一种高性能SPD,其具有高探测效率^[2-4]、低暗计数^[5,6]、低时间抖动^[7-8]等优势,在量子通信^[9]、激光雷达^[10,11]、卫星激光测距、量子随机数产生等方面已得到广泛的应用.

单光子探测器的出现给众多与微弱信号探测相关的研究领域带来了革命性变化.中红外探测技术在基础科学、医学、日常生活以及军事等广泛领域都有着极为重要的应用,比如检测分子结构^[12]、检测化学反应过程中的反应产物^[13]、表征催化表面化学反应过程^[14]以及大气检测等.随着研究的深入,这些应用需要具有高灵敏度和时间分辨率的中红外单光子探测器.

基于硅材料的传统光电倍增管单光子探测器(PMT)和雪崩光电二极管单光子探测器(APD)由于半导体材料禁带宽度的制约,无法实现红外波段(1 μm 以上)单光子的有效探测.后来发展了基于窄禁带半导体材料的铟镓砷/铟磷雪崩光电二极管(InGaAs/InP-APD),也只能满足1.8 μm 以下近红外波段的基本探测需求^[15].因此,传统的半导体SPD只能实现可见光到近红外波段的单光子探测的基本需求,无法满足2 μm 以上中红外单光子探测需求.而超导纳米线单光子探测器由能隙材料为几个meV的超导材料制备,是天然的宽带探测器,可以实现从可见光到红外波段的单光子探测.

而基于热点模型的近似结论可知SNSPD的响

应波长与下面几个因素有关^[16]:

$$\frac{hc}{\lambda} = \frac{N_0 \Delta^2 \omega d}{\zeta} \sqrt{\pi D \tau} \left(1 - \frac{I_b}{I_c}\right)$$

其中 N_0 表示费米能级的载流子浓度, Δ 表示超导材料的能隙, D 表示电子扩散系数, τ 表示热弛豫时间, d 是薄膜的厚度, ω 是器件的线宽, ζ 是无量纲的转换系数.

由此可见,为实现中红外波段的单光子响应,从工艺角度考虑,需要制备超窄线宽纳米线.目前美国NIST的研究小组率先利用超窄线宽NbN-SNSPD成功实现了0.5~5 μm 的单光子探测,基于NbN材料的SNSPD在5 μm 达到2.6%的探测效率.

超窄线宽的纳米线制备主要由电子束曝光工艺决定,电子束抗蚀剂的选择对于线宽控制至关重要.目前广泛使用的PMMA电子束抗蚀剂,通常用于制备线宽100 nm左右的线条.但是其存在抗刻蚀性差、灵敏度低等缺点,用于制备高质量的超窄线宽纳米线结构存在较大困难.因此本文围绕超窄线宽纳米线制备,对两款不同类型的电子束抗蚀剂AR-P 6200和MaN-2401进行了大量性能测试和分析,并总结各自在制备窄纳米线结构时的特点.结合抗蚀剂测试结果,我们利用MaN-2401负性电子束抗蚀剂成功制备超窄线宽SNSPD,并实现了2000 nm波长的单光子响应.

2 抗蚀剂测试

2.1 工艺基础

高性能SNSPD对于纳米线的质量提出极高的要求,因此必须采用一种成熟稳定而又符合实际工艺需求的曝光技术进行超导纳米线的制备.电子束曝光技术作为近三十年来逐步发展起来的一项新兴技术,它集电子光学、精密仪器、超高真空、计算机自动控制等近代高新技术于一体,是推动微电子技术发展的关键技术之一^[19,20].根据物质波波长公式可以得到,当加速电压足够的时候,电子束的束斑尺寸可以达到纳米量级.

SNSPD器件的制备工艺要求加工精度高,其核心曲折纳米线结构利用电子束曝光技术来实现.高线条一致性,以及满足各种参数要求的曲折纳米线制备技术是SNSPD的基础.

结合目前微加工工艺开展的实际情况,电子束曝光技术是非大规模制备微纳光刻技术研究与开发

的理想工具. 目前中国科学院超导电子学卓越创新中心拥有国际先进水平的超导工艺平台, 其中, 电子束曝光工艺为日本电子(JEOL)公司的 JBX-6300FS 电子束光刻系统来进行. 其主要性能参数如表 1 所示.

表 1 EBL 主要性能参数

主要参数	数值
加速电压	100 kV
最小电子束束斑	≤ 3 nm
电子束写场	$62.5 \mu\text{m} * 62.5 \mu\text{m}$ (高分辨率模式)
对准精度	≤ 20 nm
拼接精度	≤ 20 nm
电子束扫描速度	50 MHz

2.2 抗蚀剂工艺研究

2.2.1 工艺参数

我们在实验中比较了两款新型电子束抗蚀剂,

表 2 AR-P 6200 和 MaN-2401 两款新型电子束抗蚀剂测试参数

抗蚀剂名称	正负性	分辨率	推荐剂量	烘烤温度	显影液	显影时间
MaN-2401	负性	< 10 nm	$350 \sim 550 \mu\text{C}/\text{cm}^2$	$90^\circ\text{C}, 1 \text{ min}$	TMAH 2.38% 溶液	10s
AR-P 6200	正性	6nm	$300 \sim 400 \mu\text{C}/\text{cm}^2$	$150^\circ\text{C}, 1 \text{ min}$	邻二甲苯	49 s

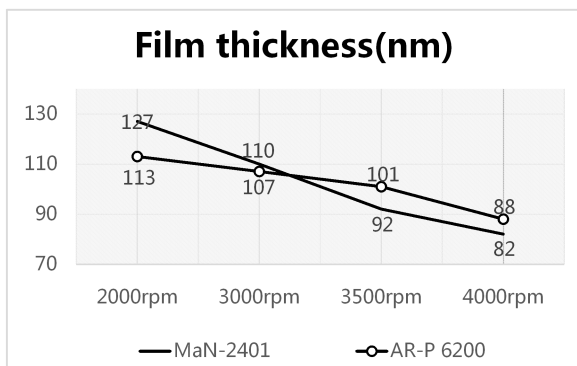


图 1 AR-P 6200 和 MaN-2401 两款新型电子束抗蚀剂胶厚测试数据

2.2.2 MaN-2401 性能测试

根据测量得到的抗蚀剂参数, 针对窄线宽纳米线的制备需求设计了 MaN-2401 的性能测试实验, 进行了纳米线结构制备尝试.

经样品剂量测试, 我们得到 MaN-2401 在匀胶速度 4000 rpm 下制备常规纳米线结构的中心剂量

MaN-2401 是一款新型负性电子束抗蚀剂, AR-P 6200 是由德国 ALLRESIST 公司研发的高分辨率高对比度正性电子束抗蚀剂. 结合 SNSPD 所需的纳米线结构制备需求, 我们对两款抗蚀剂的基础工艺参数进行了测试及归纳, 如表 2 及图 1 所示.

可以看到与常用的 PMMA 系列正性电子束抗蚀剂相比, 两款新型抗蚀剂在具备高分辨率特点的同时, 在纳米线结构制备中的中心剂量也显著低于 PMMA950A2 电子束抗蚀剂的 $800 \mu\text{C}/\text{cm}^2$. 这意味着两款抗蚀剂的曝光效率相对 PMMA 系电子束抗蚀剂提高显著. 两款抗蚀剂 4000rpm 时 80 纳米左右的胶厚对于刻蚀出极窄线宽纳米线结构也是较理想的.

AR-P 6200 正性电子束抗蚀剂经测试对剂量较为敏感, 提高了窄线宽器件的制备难度, 现有测试系统暂未测出较理想的结果, 因此本文性能测试及制备实验选用 MaN-2401 进行.

在 $350 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ 左右, MaN-2401 有较高的灵敏度, 当剂量调整至 $450 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ 到 $550 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ 之间时, 通过工艺参数的调整, 可以制备出符合目标需求的纳米线结构. 在工艺中发现由于其曝光的剂量相对较小, 所以邻近效应的效果相较于正性抗蚀剂也要弱很多, 能够很好的控制线条的均匀性和准直性, 提高图形侧壁陡直度. 制备线条边缘粗糙度优于正性抗蚀剂, 为后期制备出高效率的器件打好了良好的工艺基础.

通过优化曝光条件, 我们得到了 40 nm 至 100 nm 线宽的纳米线线条和对应剂量. 图 2 展示了设计线宽为 45 nm, 占空比 0.5 的 NbN 线条在不同曝光剂量下, 制备的纳米线结构的线条质量 SEM 图像. 实验选用的曝光剂量间隔为 $50 \mu\text{C}/\text{cm}^2$, 可以看到 MaN-2401 负性抗蚀剂对于中心剂量 $350 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ 有较大的剂量窗口, 线条对于剂量的变化不敏感, 在剂量达到 $500 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ 时线条均未出现明显变形情况. 这也降低了制备极窄线宽结构时的难度.

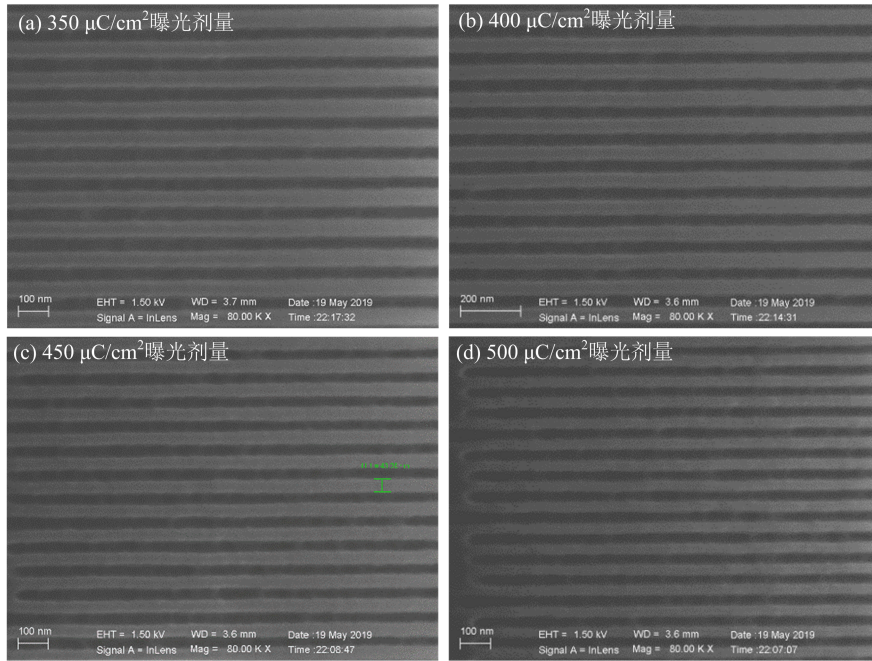


图 2 45 nm 制备结构线宽与曝光剂量的关系

为了得到更好的线条均匀性,我们在实验中增加了曝光剂量,使用 $550 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ 的剂量制备设计线宽 40 nm 线宽的纳米线结构,纳米线经蚀刻后的 SEM 图像如图 4 所示.使用软件工具 ProSEM,对制备的纳米线结构的线宽进行了采样测量,并对边缘粗糙度进行了量化评估.

边缘粗糙度是指图形边缘的粗糙程度.使用软件对一段距离内的纳米线进行 N 点采样,计算出同一条纳米线的平均线宽 $\bar{x}$,将每个采样位置与平均线宽的偏差定义为 δx_i .定义线条的边缘粗糙度为:

$$\sigma_{LER} = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (\delta x_i)^2}$$

使用三倍的边界误差来定量描述制备纳米线结构的边缘粗糙度,量化表征的计算结果如表 5 所示.

从计算结果可以看到,使用 MaN-2401 制备的 40 nm 左右的纳米线结构边缘粗糙度 3σ 值约为 2.2,表现优秀.

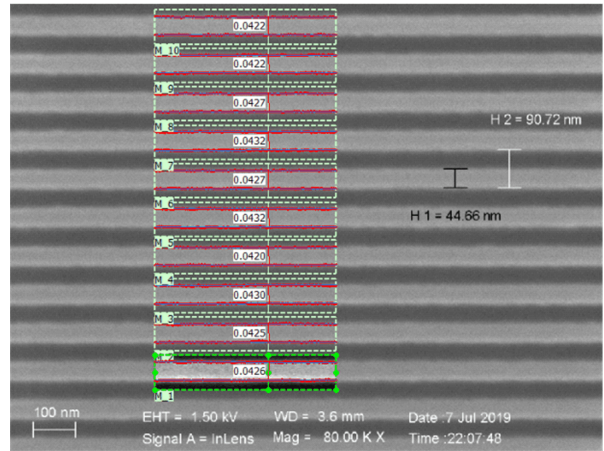


图 3 MaN-2401 测试结构线宽测量结果

表 5 线条边缘粗糙度量化结果

	M1	M2	M3	M4	M5	M6	M7	M8	M9	M10	Mean
线宽/nm	42.8	42.6	42.9	42.0	43.2	42.6	43.3	42.7	42.2	42.3	42.7
LER-3σ/nm	1.9	2.7	1.8	2.2	2.4	2.3	2.4	2.2	2.0	2.2	2.2

3 器件制备和测试

3.1 器件制备

目前在电子束曝光领域使用最为广泛的是

PMMA 系列的抗蚀剂,而负性电子束抗蚀剂 MaN-2401 经工艺实验发现在制备超窄线宽纳米线结构上具有灵敏度高、剂量窗口大、受邻近效应影响小、边缘陡直度好的优势,选用 MaN-2401 负性电子束

进行超窄线宽 SNSPD 器件的制备实验步骤如下.

采用了 6.5 nm 的超薄 NbN 薄膜来制备超导纳米线单光子探测器. 在实验中, 首先使用磁控溅射技术在衬底上生长 NbN 薄膜. 利用电子束曝光工艺将目标纳米曲折线转移至 NbN 薄膜上. 之后通过 RIE 进行薄膜刻蚀, 再利用光学曝光技术将外围电极图案制备完成, SNSPD 器件的具体制备方法请参阅文献^[21]. 图 3 给出了 SNSPD 器件的主要工艺流程.

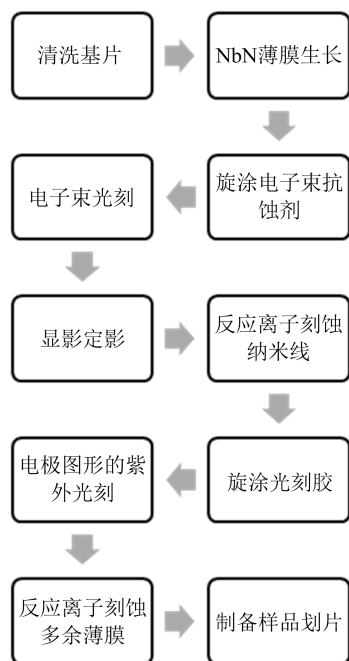


图 4 SNSPD 器件主要工艺流程

实验所用的衬底为硅衬底, 将 MaN-2401 旋涂在薄膜的表面, 旋涂转速为 4000 rpm, 然后在 90 °C 的烤台上进行 1 min 的前烘, 所得胶厚在 80 nm 左右. 器件正片的版图设计为 50 nm, 0.5 占空比光敏面尺寸 50 μm 的圆形器件, 完成纳米线版图设计绘制后使用 GenISys 公司的软件工具 Beamer 对图形的描画方式进行编辑并导出与机器对应的图形文件. 我们在进行图形转换时, 借助 Tracer 软件工具对不同衬底及纳米线图形器件曝光时可能的邻近效应进行蒙特卡罗模拟, 调整各不同区域的电子束曝光剂量, 以消除邻近效应的影响, 优化纳米线的线条均匀性.

电子束曝光在 JBX-6300FS 系统上进行, 加速电压选用 100 kV, 束流 100 pA. 显影选用 2.38% 的 TMAH 溶液, 显影时间 10 秒. 由于曝光后的胶体于

TMAH 中溶解速率依然较快, 在显影时间达到 20 秒时即出现曝光图形消失的情况, 因此在利用 MaN-2401 进行工艺实验时需精确控制显影时间.

3.2 测试结果

结合近一年的制备实验, 目前制备的器件已经取得了初步响应结果. 通过优化电子束曝光工艺, 采用负胶 MaN-2401 成功实现了 30 ~ 60 nm 线宽 SNSPD 器件的制备.

由于 40 纳米以下的极窄线宽制备的器件 I_c 较低, 信噪比低, 因此为了配合已有的成熟测试电路, 我们选择了 50 nm 线宽的器件进行测试. 制备完成的器件有效区域整体结构及纳米线线条的 SEM 图像如图 7 所示, 器件为 50 nm 线宽, 周期 90 nm. 从 SEM 图像可以看出器件纳米线的质量良好. 尽管线条边缘存在少量残留电子束抗蚀剂, 这对测试结果没有明显的不良影响.

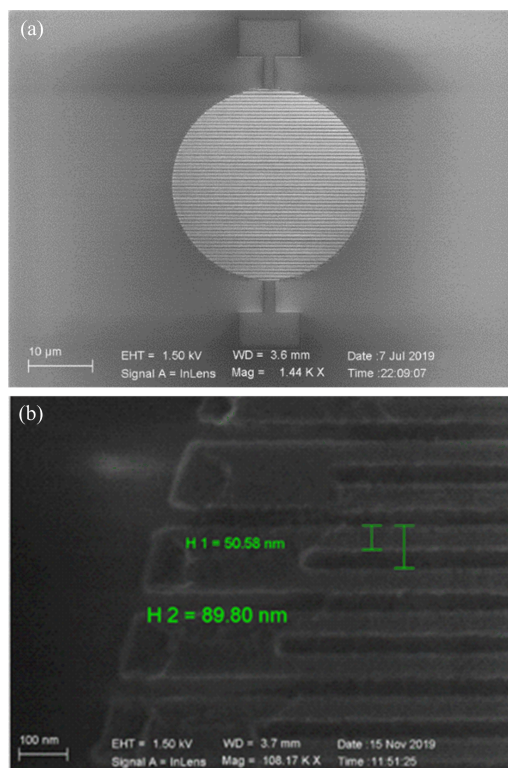


图 5 (a) 器件有效区域 SEM 图像;
(b) 纳米线 SEM 图像, 线宽约 50 nm

器件在 1550 nm 和 2000 nm 波段均成功探测到单光子响应, 测得的系统归一化探测效率如图 8 所示. 从测试结果来看, 器件在 1550 nm 波段呈现了明显的饱和特性, 并在 2000 nm 波段呈现了接近饱和的特性. 这也表明使用 MaN-2401 制备的器件

纳米线线条具有较好的均匀性,无明显缺陷.说明上述窄线宽电子束曝光工艺基本达到了器件制备的需求,为后续制备高性能中红外 SNSPD 器件打下良好基础.

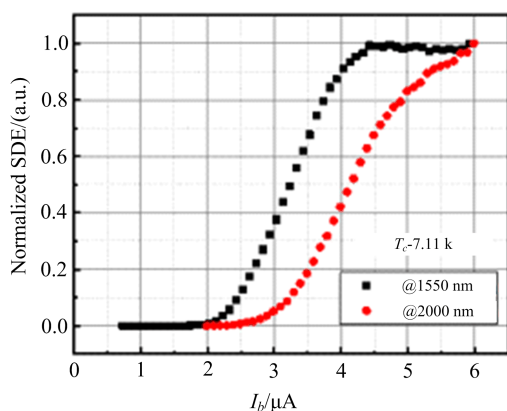


图6 器件本征响应,方块线条为 1550 nm,
圆点线条为 2000 nm

4 结 论

目前红外单光子探测器需求旺盛,针对此需求,对两款新型电子束抗蚀剂 AR-P 6200 与 MaN-2401 进行了大量性能测试和分析,总结了在制备超窄纳米线结构时的特点.基于 MaN-2401 测试出的良好工艺结果,通过建立并优化工艺方法,利用 MaN-2401 负性电子束抗蚀剂成功制备出 40 nm 线宽 SNSPD 器件并成功实现了 2000 nm 波长单光子探测响应测试.未来将进一步优化工艺,提高电子束曝光工艺效率和成品率,并继续尝试亚 30 nm 线宽器件的制备和测试,同时进一步需要优化测试系统,提高系统信噪比,将 SNSPD 的响应波段拓展至 5~10 μm .

参 考 文 献

- [1] G. N. Gol'tsman, O. Okunev, G. Chulkova, A. Lipatov, A. Semenov, K. Smirnov, B. Voronov, A. Dzardanov, C. Williams, R. Sobolewski, *Applied Physics Letters*, **79** (2001), 705
- [2] F. Marsili, V. B. Verma, J. A. Stern, S. Harrington, A. E. Lita, T. Gerrits, I. Vayshenker, B. Baek, M. D. Shaw, R. P. Mirin, S. W. Nam, *Nature Photonics*, **7** (2013), 210
- [3] I. Esmaeil Zadeh, J. W. N. Los, R. B. M. Gourgues, V. Steinmetz, G. Bulgarini, S. M. Dobrovolskiy, *APL Photonics*, **2** (2017), 111301
- [4] W. Zhang, L. You, H. Li, J. Huang, C. Lv, L. Zhang, X. Liu, J. Wu, Z. Wang, X. Xie, *Science China Physics, Mechanics & Astronomy*, **60** (2017), 120314
- [5] H. Shibata, K. Shimizu, H. Takesue, Y. Tokura, *Applied Physics Express*, **6** (2013), 072801
- [6] X. Yang, H. Li, W. Zhang, L. You, L. Zhang, X. Liu, Z. Wang, W. Peng, X. Xie, M. Jiang, *Opt Express*, **22** (2014), 16267
- [7] V. Shcheslavskiy, P. Morozov, A. Divochiy, Y. Vakhtomin, K. Smirnov, W. Becker, *Rev Sci Instrum*, **87**(2016), 053117
- [8] J. Wu, L. You, S. Chen, H. Li, Y. He, C. Lv, Z. Wang, X. Xie, *Appl Opt*, **56**(2017), 2195
- [9] B. S. Robinson, A. J. Kerman, E. A. Dauler, R. O. Barron, D. O. Caplan, M. L. Stevens, J. J. Carney, S. A. Hamilton, *Optics Letters*, **31**(2006), 444
- [10] H. Li, S. Chen, L. You, W. Meng, Z. Wu, Z. Zhang, K. Tang, L. Zhang, W. Zhang, X. Yang, X. Liu, Z. Wang, X. Xie, *Opt Express*, **24**(2016), 3535
- [11] L. Xue, Z. Li, L. Zhang, D. Zhai, Y. Li, S. Zhang, M. Li, L. Kang, J. Chen, P. Wu, Y. Xiong, *Opt Lett*, **41** (2016), 3848
- [12] J. Oomens, B. G. Sartakov, G. Meijer, G. Helden, *International Journal of Mass Spectrometry*, **254**(2006), 1
- [13] Y. J. Chabal, *Surface Science Reports*, **8**(1988), 211
- [14] K. I. Hadjiivanov, *Catalysis Reviews*, **42**(2000), 71
- [15] L. Xu, E. Wu, X. Gu, Y. Jian, G. Wu, H. Zeng, *Applied Physics Letters*, **94**(2009), 161106
- [16] A. Engel, A. Aeschbacher, K. Inderbitzin, A. Schilling, K. Il'in, M. Hofherr, M. Siegel, A. Semenov, H.-W. Hubers, *Applied Physics Letters*, **100**(2012), 062601
- [17] F. Marsili, "Mid-Infrared Single-Photon Detection with Tungsten Silicide Superconducting Nanowires." *2013 Conference on Lasers and Electro-Optics (Cleo)*, 2013.
- [18] Marsili, F. "Efficient Single Photon Detection From 0.5 To 5 Micron Wavelength." *2012 Conference on Lasers and Electro-Optics (Cleo)*, 2012.
- [19] 刘明,陈宝钦,梁俊厚,李友,徐连生,张建宏,张卫红, *微电子学*, **30**(2000), 117
- [20] 陈宝钦, *微纳电子技术*, **48**(2011), 345
- [21] 杨晓燕,尤立星,张礼杰,黄少铭, Mintu Mondal, Sanjeev Kumar, John Jesudasan, Pratap Raychaudhuri, *低温与超导*, **38** (2010), 1