

# 單晶二氧化鈾薄膜於鋁氧基板之室溫生長與結構特性研究

張國樞<sup>1\*</sup> 何焱騰<sup>2</sup> 吳建忠<sup>1</sup> 朱富權<sup>1</sup> 謝立人<sup>1</sup>

<sup>1</sup>國防大學理工學院電機電子工程學系，335 桃園大溪

<sup>2</sup>中山科學研究院電子系統研究所，325 桃園龍潭

## 摘要

二氧化鈾( $\text{CeO}_2$ )熱穩定性佳，是氧化物磊晶生長之理想緩衝層材料。通常磊晶生長氧化物薄膜須在高溫真空環境下進行，本實驗運用脈衝雷射沈積(Pulsed Laser Deposition, PLD)技術，適當控制氧分壓，完成  $\text{CeO}_2$  薄膜於鋁氧( $\text{LaAlO}_3$ )基板之室溫磊晶生長。X 光繞射證實  $\text{CeO}_2$  具(002)單晶結構， $\phi$ -scan 呈現  $\text{CeO}_2$  與鋁氧表面的磊晶關係為  $\langle 100 \rangle_{\text{CeO}_2} // \langle 110 \rangle_{\text{LaAlO}_3}$ ，穿透式電子顯微鏡顯示兩者之間無界面層存在。實驗證明 PLD 技術對室溫磊晶  $\text{CeO}_2$ ，深具優勢。

**關鍵詞：**脈衝雷射沈積，磊晶生長，二氧化鈾

## Room-temperature Growth and Structural Characterization of $\text{CeO}_2$ Single-crystalline Thin Films Deposited on $\text{LaAlO}_3$ Substrate

Kuo-Shu Chang<sup>1\*</sup>, Yen-Teng Ho<sup>2</sup>, Chen-Chung Wu<sup>1</sup>, Fu-Chiuan Chu<sup>1</sup>, and Li-Zen Hsieh<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Department of Electrical and Electronic Engineering, Chung Cheng Institute of Technology, National Defense University

<sup>2</sup>Electronic System Division, Chung Shan Institute of Science and Technology

## ABSTRACT

Cerium dioxide ( $\text{CeO}_2$ ) is a good buffer material for the epitaxial growth of oxides on different substrate due to its outstanding thermal stability. Although most epitaxial films were deposited at high temperature under vacuum environment, the epitaxial growth of  $\text{CeO}_2$  films on the  $\text{LaAlO}_3$  substrates were achieved at room-temperature under low oxygen partial pressure by using pulsed laser deposition (PLD). The (002) single crystalline structure of  $\text{CeO}_2$  films was demonstrated using X-ray diffraction; the in-plane epitaxial relationship of  $\langle 100 \rangle_{\text{CeO}_2} // \langle 110 \rangle_{\text{LaAlO}_3}$  along growth direction was revealed using X-ray  $\phi$  scan; and the transmission electron microscopy shows that there are no interface layer between  $\text{CeO}_2$  and  $\text{LaAlO}_3$ . These experiment results have testified that PLD is an excellent deposition technique for the epitaxial growth of  $\text{CeO}_2$  films on  $\text{LaAlO}_3$  substrate under room temperature.

**Keywords:** pulsed laser deposition, epitaxial growth, cerium dioxide

## 一、前言

目前在各種不同的光與電的應用上，例如光波導管、光濾波器以及電容器等，稀土氧化物因具有相對高的折射率與介電常數( $\epsilon$ )以及熱穩定性佳等優點，為目前極具潛能的可用材料。其中二氧化鈣(Cerium Dioxide,  $\text{CeO}_2$ )薄膜特性已受到許多團隊的研究[1-3]。二氧化鈣的 $\epsilon$ 值約為26，在小尺寸的穩定性電容器，例如動態隨機存取記憶元件的儲存電容器的應用上深具潛力[3]。二氧化鈣具有高的能隙(Bandgap)，可作為增強型n通道金氧半(MOS)電晶體的閘極絕緣層[1]。二氧化鈣的Fluorite結構，與高溫下不易與基板產生反應的絕佳化學穩定性[4]，則已成為製備磊晶生長氧化物薄膜的理想緩衝層(Buffer Layer)材料之一[5-7]。

近年來已有許多文獻在探討  $\text{CeO}_2$  薄膜的磊晶生長方式，例如Španková 與 Shirakawa 等團隊以濺鍍(Sputtering)方式[8-9]分別於 R 平面(R-plane)與 c 平面(C-plane)及傾斜 c 平面(Tilt-c-plane)之 sapphire 基板上鍍製  $\text{CeO}_2$  薄膜；Sohma 等人以電子束蒸鍍(Electron Beam Evaporation)法[10]蒸鍍  $\text{CeO}_2$  薄膜作為大面積(30cm×10cm)sapphire 製備鈣鋁銅氧(YBCO)超導薄膜之緩衝層；Matsushita 與 Kurian 等團隊則分別使用分子束磊晶(Molecular Beam Epitaxy, MBE)方式[11-12]於 Si(111)及 r-cut sapphire 基板上磊晶  $\text{CeO}_2$  薄膜；Murugesan、Kang 與 Wu 等團隊則利用脈衝雷射沈積(Pulsed Laser Deposition, PLD)法[13-15]分別於 R- $\text{Al}_2\text{O}_3$  (R-sapphire)、Si(100)及鋁氧(100)基板上磊晶  $\text{CeO}_2$ 。不論是採用上述何種物理性磊晶方式，在相對高真空環境下，適當的生長溫度(大於 500°C)與氧分壓實為單晶  $\text{CeO}_2$  薄膜磊晶成功與否的最重要兩項關鍵因素。然而，高的生長溫度易在氧化物薄膜與基板的界面間產生反應形成界面層，為了有效抑制這些界面反應，低溫(Low-temperature)生長技術的發展已勢不可免[4][16-17]。由於 PLD 具有可直接移轉複合靶材成份至基板上形成薄膜的優點，已成為近十年來氧化物薄膜磊晶生長研究上頗受各界矚目的新發展技術。相關研究結果亦證實 PLD 為最適合低溫磊晶生長氧化物薄膜的技術之一，因其脈衝雷射可提供薄膜生

成時所需的高動能。

本研究選用具有 perovskite 型態結構，熱穩定性佳的鋁氧( $\text{LaAlO}_3$ , LAO)作為室溫磊晶  $\text{CeO}_2$  薄膜的基板，以避免高溫製程中可能在氧化物與基板間形成的界面層。立方晶系(Cubic)鋁氧之晶格常數為 3.79 Å，其對角線上的晶格與立方晶系二氧化鈣之間的晶格不匹配度( $\sqrt{2} a(\text{LaAlO}_3) = 5.36 \text{ Å}$ ,  $a(\text{CeO}_2) = 5.41 \text{ Å}$ )小於 1%，則是另一重要考慮因素。

本文主要探討在室溫下，單晶(001) $\text{CeO}_2$  薄膜在單晶(001)鋁氧基板上的磊晶生長與氧分壓的關係及其結晶結構特性。採用的分析方法有 X 光繞射(X-ray Diffraction, XRD)、原子力顯微鏡(Atomic Force Microscopy, AFM)以及高解析穿透式電子顯微鏡(High Resolution Transmission Electron Microscopy, HRTEM)。

## 二、X光繞射理論

### 2.1 立方晶體繞射圖形分析

當以 X 光束照射晶體時，光束將被表面層下 1~2 微米深度內的各原子層所反射，此時只有在滿足建設性干涉的條件下才能獲得繞射圖形，而滿足此條件的定律就是布拉格定律(Bragg's Law)。我們可由圖一 X 光照射在晶體表面原子層的入反射關係示意圖來說明布拉格定律。由圖 1 可看出當兩條射線的路程差( $AP + BP = 2d\sin\theta$ )剛好等於入射波長的整數倍( $n\lambda$ )時，就會形成建設性干涉產生繞射圖案，此即為布拉格定律[18]：

$$2d\sin\theta = n\lambda \quad (1)$$

其中  $n$  為正整數， $\lambda$  為 X 光的波長， $d$  為兩相鄰原子層平面間距， $\theta$  為 X 光的入射角度。

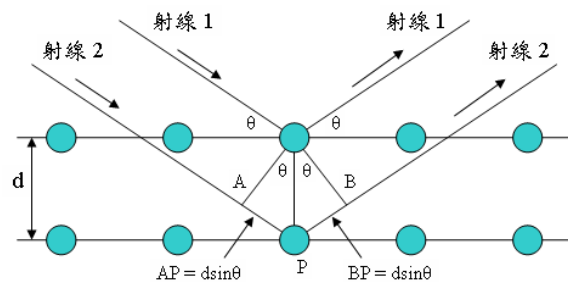


圖 1. 光線入射晶體表面示意圖。

在實驗上，對一般固定光源的繞射儀而言，必須使  $\theta$  作連續性改變才有可能出現滿足布拉格定律條件獲得繞射圖。所測得之繞射圖必須與 JCPDS 標準索引卡進行比對方能完成材質之鑑定。立方晶體結構之 XRD 圖形分析方法簡述如下：首先先計算晶體兩晶面的間距  $d$ 。 $d$  與晶格常數  $a$  的關係[19]是

$$d(h, k, l) = \frac{a}{\sqrt{h^2 + k^2 + l^2}} \quad (2)$$

其中  $h$ 、 $k$ 、 $l$  代表某一晶面的米勒(Miller)指標，通常皆為整數。

當入射波長  $\lambda$  與入射角(或稱為繞射波峰之角度) $\theta$  已知時，將公式(2)代入公式(1)，在  $n=1$  時，可得

$$\sin^2 \theta = \frac{\lambda^2}{4a^2} (h^2 + k^2 + l^2) \quad (3)$$

由式(3)得知  $\sin^2 \theta$  與  $(h^2 + k^2 + l^2)$  之間成正比例關係，故可由測得之 XRD 繞射峰值所對應的  $\theta$  值來推測其相對應之(hkl)晶面，並依 X 光繞射選擇律查出材質的晶體結構(簡單、面心或體心)。

## 2.2 晶粒大小測定

在結晶物體表面進行 X 光結構分析時，若該結晶體的晶粒尺寸小於 100 奈米，則可根據繞射圖形的半高寬(Full-width at Half Maximum, FWHM)及繞射峰角度( $2\theta$ )，代入 Scherrer 公式計算晶粒大小。Scherrer 公式如下：

$$D = \frac{K\lambda}{B \cos \theta} \quad (4)$$

其中  $D$  為沿晶面垂直方向之厚度(晶粒大小)， $K$  為常數(約 0.89)， $\lambda$  為 X 光波長， $B$  為實驗所得繞射峰之半高寬(徑度)。B 實際上包含了三個因素，可以式(5)表示[20]：

$$B^2 = B_{size}^2 + B_{strain}^2 + B_{inst}^2 \quad (5)$$

其中  $B_{size}$  是晶粒大小對半高寬的效應， $B_{strain}$  是指內應力對半高寬的效應， $B_{inst}$  是指儀器本身對半高寬的影響效應。 $B_{strain}$  主要來自薄膜

生長過程中因晶格的不匹配所受到的應變場作用，致晶粒沿 hkl 方向生長時形成的延伸或壓縮，其應變值  $\varepsilon$  與  $B_{strain}$  之關係可表示為

$$B_{strain} = 2\varepsilon \tan \theta \quad (6)$$

如除去儀器系統本身對繞射峰半高寬的影響，則所生長的薄膜在受到晶粒及應力影響下，式(4)之 X 光繞射波峰半高寬可改寫成式(7)。

$$B \cos \theta = \frac{K\lambda}{D} + 2\varepsilon \sin \theta \quad (7)$$

## 三、實驗方法

本實驗採用脈衝雷射沈積法於單晶鋁氧(001)基板上製備  $\text{CeO}_2$  薄膜。利用高能量雷射光束直接照射在直徑 2 吋、厚度 6mm、純度 99.99% 的  $\text{CeO}_2$  靶材表面，使得靶材表面瞬間汽化噴向基板，當汽化的  $\text{CeO}_2$  遇到溫度較低的基材而固化形成薄膜。圖 2 為脈衝雷射沈積裝置示意圖。

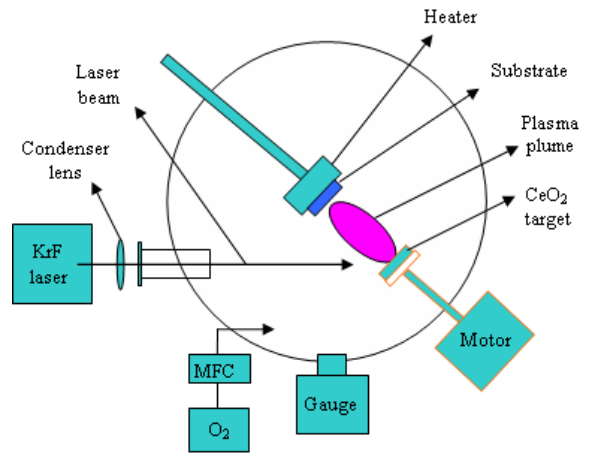


圖 2. PLD 裝置示意圖。

在沈積  $\text{CeO}_2$  前，須先潔淨鋁氧基板。首先將鋁氧基板分別置入丙酮與異丙醇溶液中煮沸 5 分鐘，再用去離子水(De-ionized Water)浸沖並用氮氣吹乾，最後以 110°C 熱烤 10 分鐘方式去除殘留在基板上的水氣。旋即將鋁氧基板嵌入 PLD 腔體內的基板固定座上，並對腔體抽真空使其壓力維持在室溫下  $10^{-7}$  Torr 左右。PLD 配備的射源為波長 248 nm 的 KrF 準分子(Excimer)雷射(Pulse Duration: 25

nm, Energy Density: 500 mJ/cm<sup>2</sup>), 以 3 Hz 的脈波重複率將雷射聚焦於靶材表面進行消融 (Ablation)。在不對基板加熱的情況下, PLD 腔體溫度於薄膜沈積過程中均維持在室溫 (~25°C) 狀態。純度 99.999% 的氧氣被引入 PLD 腔體以改善 CeO<sub>2</sub> 的結晶性, 本實驗分別在不同的氧分壓條件下進行 CeO<sub>2</sub> 薄膜沈積。薄膜的沈積時間維持在 30 分鐘, 形成較厚的 CeO<sub>2</sub> 膜層, 以利於 X 光繞射儀能檢驗出薄膜的結晶性。除採用 X 光繞射測知 CeO<sub>2</sub> 的結晶品質與結構晶向外, 本實驗還分別利用原子力顯微鏡分析 CeO<sub>2</sub> 的表面型態、穿透式電子顯微影像驗證單晶 CeO<sub>2</sub> 膜厚與 PLD 每一脈波的沈積率。由於 CeO<sub>2</sub> 與 LAO 之間晶格的不完全匹配會導致 CeO<sub>2</sub> 在磊晶過程中受到應力 (Stress) 作用使得晶格在沿生長方向的排列產生形變 (Strain), 利用快速高溫退火 (Rapid Temperature Annealing, RTA) 可釋放應力回復 CeO<sub>2</sub> 結晶結構。

#### 四、結果與討論

圖 3 顯示室溫下, CeO<sub>2</sub> 在不同氧分壓 (Oxygen Partial Pressure, P(O<sub>2</sub>)) 的生長條件下, 於 LAO 基板形成薄膜之 XRD  $\theta$ -2 $\theta$  掃描圖。當 P(O<sub>2</sub>) 維持在 10 mTorr (樣品 A) 相對高氧壓時, 樣品 A 之 XRD 除了基板訊號外, 並未出現 CeO<sub>2</sub> 的任何結晶訊號。當 P(O<sub>2</sub>) 下降至 1 mTorr (樣品 B) 時, 於 2 $\theta$ =32.64° 位置出現 CeO<sub>2</sub> 峰值訊號。隨著 P(O<sub>2</sub>) 降到 10<sup>-4</sup> Torr (樣品 C) 及 10<sup>-5</sup> Torr (樣品 D), 在 2 $\theta$ =68.36° 出現第二個峰值訊號, 且 CeO<sub>2</sub> 之峰值訊號強度隨 P(O<sub>2</sub>) 的減少而增強。當氧分壓再進一步減小至 10<sup>-6</sup> Torr (樣品 E), XRD 結果呈現 CeO<sub>2</sub> 峰值訊號強度大幅衰減現象, 此現象吾人推論可能與氧缺陷有關。室溫環境下, 氧分壓的降低雖有助於磊晶生長, 但若 P(O<sub>2</sub>) 過低, 則會導致氧缺陷過多 [11], 影響薄膜的結晶品質。再從樣品 B、C 及 D 的 CeO<sub>2</sub> 峰值訊號之 FWHM 分別為 0.483°、0.244° 及 0.225° 結果研判, 本研究在室溫下以 PLD 磊晶 CeO<sub>2</sub> 薄膜於 LAO 基板上的最佳氧分壓約在 P(O<sub>2</sub>)=10<sup>-5</sup> Torr。Wu [15] 等人曾於 750°C 及 150 mTorr 條件下以 PLD 方式, 磊出具 (002) 與 (004) 晶向的 CeO<sub>2</sub> 薄膜; 本研究證實同樣的結果可在更低的溫度 (室溫) 與氧分壓 (10<sup>-5</sup> Torr) 環境下以同樣的 PLD 磊晶方式

達成。

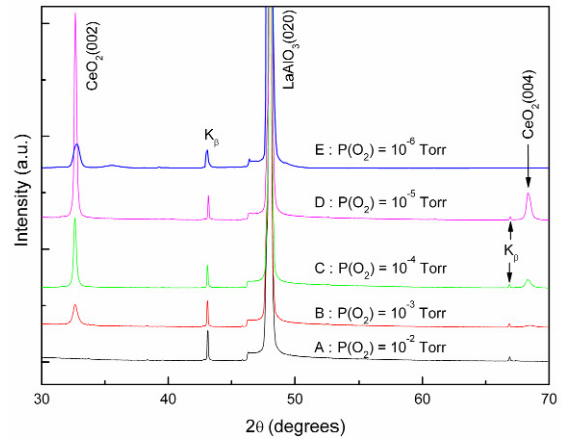


圖 3. 於室溫, 不同氧分壓之生長條件下所生成之 CeO<sub>2</sub> 薄膜之 X 光  $\theta$ -2 $\theta$  繞射圖。

根據 X 光繞射資料庫 JCPDS-ICDD 顯示, CeO<sub>2</sub>(002) 及 (004) 之 2 $\theta$  分別為 33.28° 及 69.58° (Pattern: 00-001-0800), 比圖 3 所示之 2 $\theta$  值大些, 這顯示 CeO<sub>2</sub> 在沿 LAO 基板 [010] 方向上的晶格排列有伸長形變存在, 其應變量  $\epsilon (\equiv \Delta a/a)$  為 0.019。為了消除因晶格不匹配所殘留在 CeO<sub>2</sub> 薄膜上的內應力, 適度的熱退火可去除薄膜在生長方向的伸長形變, 使得 CeO<sub>2</sub> 的晶體結構回復到理想的立方晶系。圖 4 為針對圖 3 之樣品 C 以 RTA 在通氮氣 (純度為 99.999%) 環境下, 進行不同溫度 (450°C、650°C、750°C、850°C) 退火後之 XRD, 熱退火時間固定為 3 分鐘。結果顯示樣品 C 經熱退火去除應力形變後, CeO<sub>2</sub> 的兩個峰值訊號之 2 $\theta$  值分別向右位移至符合資料庫 JCPDS-ICDD 顯示之立方晶系 CeO<sub>2</sub> 之 2 $\theta$  值, 可確認樣品 C 之 CeO<sub>2</sub> 為具 (002) 晶向的單晶薄膜。此一結果同時也證明圖 3 中其他樣品 (B 與 D) 中所呈現的 CeO<sub>2</sub> 之 2 $\theta$  與樣品 C 一樣確實受到應力形變的影響。隨著退火溫度自 450°C 逐漸升高到 850°C, 樣品 C 之 CeO<sub>2</sub>(002) 峰值訊號的 FWHM 分別為 0.344°、0.263°、0.242°、0.222°, 顯示較高的熱退火溫度可獲得較佳的結晶品質, 此趨勢與參考文獻 [13] 實驗結果相符。

圖 5 為樣品 D 在經 750°C RTA 熱處理前後之 rocking curve, 其 FWHM 由熱處理前的 1.393° 大幅縮小到熱處理後的 0.824°, 再次顯示熱處理可釋放 CeO<sub>2</sub> 薄膜內的殘留應力並進

一步改善其結晶品質，此趨勢與文獻[13]相符。圖 6 為樣品 D 在(111)之  $\phi$ -scan，不論是  $\text{CeO}_2$  或 LAO，在  $360^\circ$  內各呈現四個彼此間隔  $90^\circ$  相位的峰值訊號，且  $\text{CeO}_2$  的每一峰值訊號之相位與最鄰近的 LAO 兩峰值訊號的相位差均為  $45^\circ$ ，反之亦然，確認  $\text{CeO}_2$  薄膜與 LAO 基板在生長方向上的磊晶關係為  $\langle 100 \rangle_{\text{CeO}_2} // \langle 110 \rangle_{\text{LaAlO}_3}$ 。

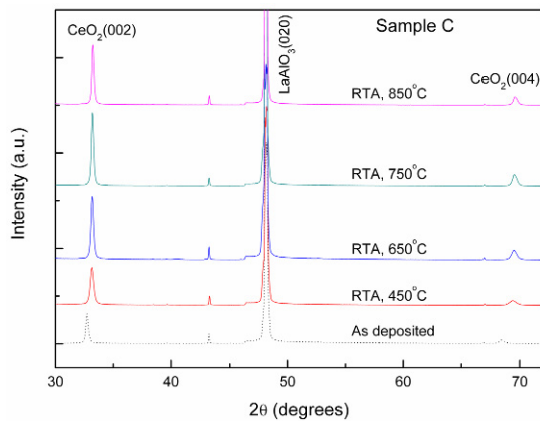


圖 4. 樣品 C 於不同溫度進行 RTA 退火後之 X 光  $\theta$ -2 $\theta$  繞射圖。

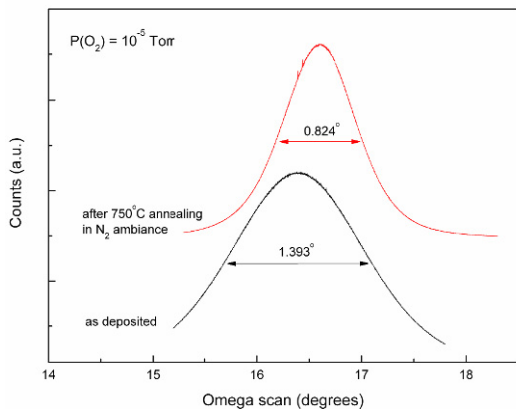


圖 5. 樣品 D 經 RTA,  $750^\circ\text{C}$ , 3 分鐘熱退火前後之 rocking curve 及 FWHM。

從圖 7(a)樣品 D 之 HRTEM 影像，可看出  $\text{CeO}_2$  薄膜在室溫的環境下可在 LAO 的表面形成良好鍵結，與 LAO 之間並未存在明顯的界面層。此外，在經 RTA 以  $750^\circ\text{C}$ , 3 分鐘的熱退火後， $\text{CeO}_2$  與 LAO 之間界面輪廓依然清晰顯明，如圖 7(b)所示，顯示  $\text{CeO}_2$  具有良好的熱穩定性，於高溫環境下不易與 LAO 產生化學反應形成界面層。由圖 7(c)HRTEM 影像可估算  $\text{CeO}_2$  的膜厚約為 105 nm，換算 PLD 每

一脈衝波的沈積率為  $0.194 \text{ \AA}$ 。

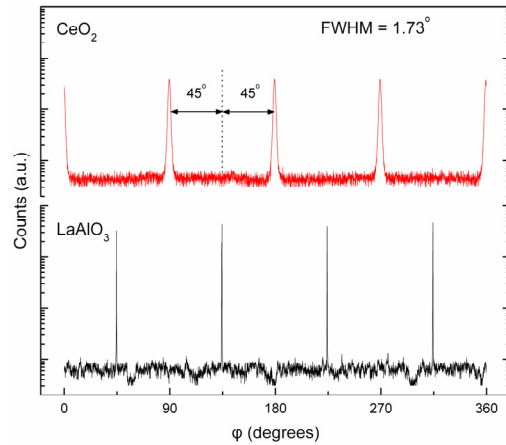


圖 6. 樣品 D 在(111)之  $\phi$ -scan。

$\text{CeO}_2$  的表面形貌分析則可透過 AFM 檢視，圖 8 呈現樣品 A~D 的  $\text{CeO}_2$  二維表面結構，其表面粗糙度的均方根值依序分別為 1.135、0.322、0.251 及 0.204 nm。當  $\text{CeO}_2$  為非晶系結構(樣品 A)時，表面晶粒呈現圓球形狀，最大的粒徑近 100 奈米，如圖 8(a)所示。當  $P(\text{O}_2)$  由 10 mTorr 減少至 1 mTorr(樣品 B)， $\text{CeO}_2$  呈現單晶結構時，表面晶粒仍為圓球形狀，但粒徑大幅縮小至 30 奈米以下，見圖 8(b)，其表面粗糙度因單晶結構的形成亦隨之大幅降低。當  $P(\text{O}_2)$  減少至  $10^{-4}$  Torr 時， $\text{CeO}_2$  表面呈現橫向週期約為 280 奈米的波浪狀形貌，表面明顯可辨識的粒徑大小約 35~40 奈米，見圖 8(c)。圖 8(d)則顯示  $\text{CeO}_2$  表面粒徑會隨  $P(\text{O}_2)$  的下降而變大，多數粒徑分佈於 35~50 奈米之間。

如前所述，RTA 熱退火確實可改善  $\text{CeO}_2$  的結晶品質，惟實驗結果顯示樣品 C 經過不同溫度退火後，其表面粗糙度會隨退火溫度的上升而逐漸快速惡化，當退火溫度達到  $850^\circ\text{C}$  時，表面粗糙度會自 0.251 nm 惡化至 0.938 nm。

## 五、結論

本研究應用 PLD 技術於 LAO(001)表面上完成了室溫下製備  $\text{CeO}_2$  單晶(001)薄膜實驗。實驗結果證實，在基板不升溫加熱狀態下，透過適當地控制氧分壓大小，PLD 確可達到沈積生長單晶  $\text{CeO}_2$  的效果，惟  $\text{CeO}_2$  的殘留應力仍

須經由熱退火消除。本研究經驗顯示室溫下生長  $\text{CeO}_2$  單晶薄膜的最佳氧分壓約在  $10^{-5}$  Torr，結晶品質似乎有熱退火溫度愈高晶向愈佳的趨勢，但須考慮高溫退火可能導致  $\text{CeO}_2$  表面粗糙度嚴重惡化的後果。HRTEM 影像證實了室溫磊晶的優點：在  $\text{CeO}_2/\text{LAO}$  間不但無界面層存在，且  $\text{CeO}_2$  與 LAO 的界面輪廓顯而清晰。此點正是(多層)磊晶品質良窳的關鍵因素。本研究之實驗經驗未來可擴及至不同金屬氧化物或不同基板的磊晶生長，可為消除磊晶界面層提供一有效解決途徑。

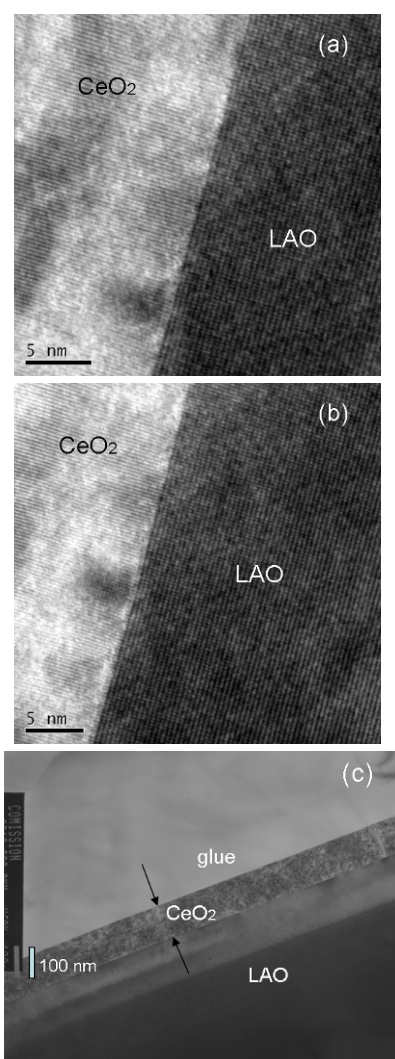


圖 7. 樣品 D 之(a)HRTEM 影像(沿 $[110]_{\text{LAO}}$  Zone 軸拍攝)；(b)經  $750^\circ\text{C}$ ，3 分鐘 RTA 熱退火後之 HRTEM 影像，與圖(a)相較可發現熱退火後  $\text{CeO}_2$  與 LAO 間之界面輪廓依然清晰明顯，顯示  $\text{CeO}_2$  優異的熱穩定性；(c)剖面 (Cross-section) 影像， $\text{CeO}_2$  膜厚約為 105 nm。

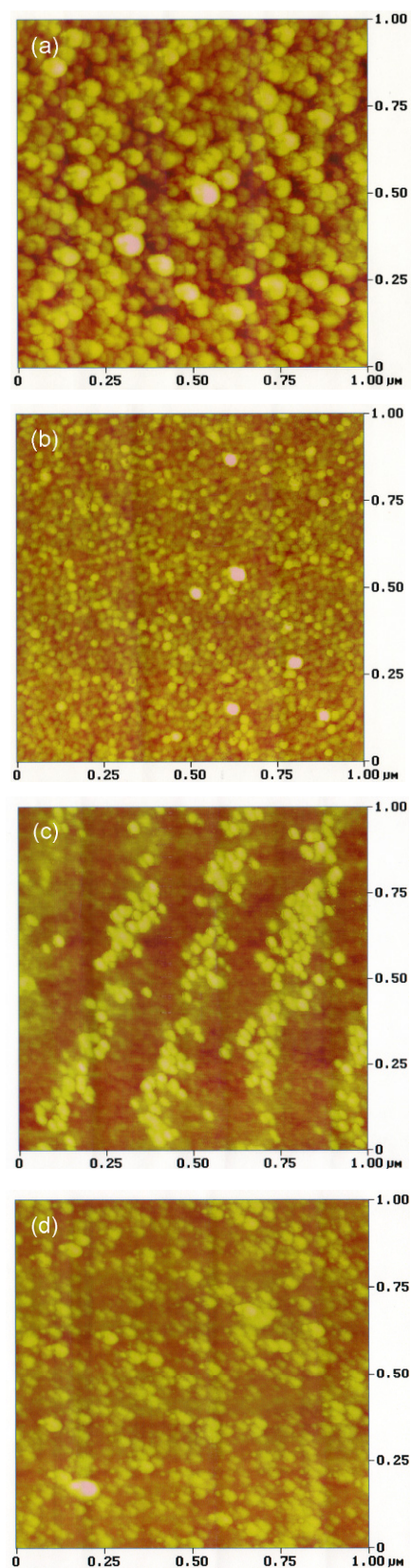


圖 8.  $\text{CeO}_2$  二維表面結構：(a)樣品 A；(b)樣品 B；(c)樣品 C；(d)樣品 D。

## 誌謝

本文作者對中科院材料所材試組、國家奈米元件實驗室以及國家實驗研究院儀器科技研究中心，能提供 XRD、 $\omega$ -scan 與  $\phi$ -scan 以及 HRTEM 照像等技術服務表達感謝之意，同時也對中科院化學所物化組在 AFM 分析上提供寶貴意見與技術支援予以誌謝。最後，作者特別感謝中科院電子所元件組李清源組長提供實驗室使得本文得以順利完成。

## 參考文獻

- [1] Sundaram, K. B., Wahid, P. F., and Melendez, O., "Deposition and x-ray photoelectron spectroscopy studies on sputtered cerium dioxide thin films," *Journal of Vacuum Science & Technology, A: Vacuum, Surfaces, and Films*, Vol. 15, No. 1, pp. 52-56, Jan/Feb, 1997.
- [2] Xiao, W., Guo, Q., and Wang, E. G., "Transformation of  $\text{CeO}_2(111)$  to  $\text{Ce}_2\text{O}_3(0001)$  films," *Chemical Physics Letters*, Vol. 368, No. 5-6, pp. 527-531, 24 Jan., 2003.
- [3] Tian, C., Du, Y., and Chan, S. W., "Preparation and microstructural study of  $\text{CeO}_2$  thin films," *Journal of Vacuum Science & Technology, A: Vacuum, Surfaces, and Films*, Vol. 15, No. 1, pp. 85-92, Jan/Feb, 1997.
- [4] Ami, T., Ishida, Y., Nagasawa, N., Machida, A., and Suzuki, M., "Room-temperature epitaxial growth of  $\text{CeO}_2(001)$  thin films on  $\text{Si}(001)$  substrates by electron beam evaporation," *Applied Physics Letters*, Vol. 78, No. 10, pp. 1361-1363, 5 March 2001.
- [5] Nie, J. C., Yamasaki, H., Nakagawa, Y., Develos-Bagarinao, K., Murugesan, M., Obara, H., and Mawatari, Y., "Epitaxial  $\text{CeO}_2$  buffer layer on deliberately miscut sapphire for microcrack-free thick  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  films," *Journal of Crystal Growth*, Vol. 284, No. 3-4, pp. 417-424, 1 Nov., 2005.
- [6] Castel, X., Guilloux-Viry, M., Perrin, A., Lesueur, J., and Lalu, F., "High crystalline quality  $\text{CeO}_2$  buffer layers epitaxied on  $(1102)$  sapphire for  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  thin films," *Journal of Crystal Growth*, Vol. 187, No. 2, pp. 211-220, 1 May 1998.
- [7] Wu, X. D., Dye, R. C., Muenchausen, FL E., Foltyn, S. R., Maley, M., Rollett, A. D., Garcia, A. R., and Noga, N. S., "Epitaxial  $\text{CeO}_2$  films as buffer layers for high-temperature superconducting thin films," *Applied Physics Letters*, Vol. 58, No. 19, pp. 2165-2167, 13 May, 1991.
- [8] Španková, M., Vávra, I., Gaži, Š., Machajdík, D., Chromik, Š., Fröhlich, K., Hellemans, L., and Beňačka, Š., "Growth and recrystallization of  $\text{CeO}_2$  thin films deposited on *R*-plane sapphire by off-axis RF sputtering," *Journal of Crystal Growth*, Vol. 218, No. 2-4, pp. 287-293, 15 Sep. 2000.
- [9] Shirakawa, M., Unno, J., Aizawa, K., Kusunoki, M., Mukaida, M., and Ohshima, S., "Fabrication and characterization of a  $\text{CeO}_2$  buffer layer on *c*-plane and tilt-*c*-plane sapphire substrates," *Physica C: Superconductivity*, Vol. 392-396, Part 2, pp. 1346-1352, Oct. 2003.
- [10] Sohma, M., Yamaguchi, I., Tsukada, K., Kondo, W., Mizuta, S., Manabe, T., and Kumagai, T., "Cerium oxide ( $\text{CeO}_2$ ) buffer layers for preparation of high- $J_c$  YBCO films on large-area sapphire substrates ( $30\text{ cm} \times 10\text{ cm}$ ) by coating pyrolysis," *Physica C: Superconductivity*, Vol. 412-414, Part 2, pp. 1326-1330, Oct. 2004.
- [11] Matsushita, D., Nishikawa, Y., Satou, N., Yoshiki, M., Schimizu, T., Yamaguchi, T., Satake, H., and Fukushima, N., "Enhancement of Dielectric Constant due to Expansion of Lattice Spacing in  $\text{CeO}_2$  Directly Grown on  $\text{Si}(111)$ ," *Japanese Journal of Applied Physics*, Vol. 43, No. 4B, pp. 1795-1798, Apr. 2004.
- [12] Kurian, J., and Naito, M., "Growth of epitaxial  $\text{CeO}_2$  thin films on *r*-cut sapphire by molecular beam epitaxy," *Physica C: Superconductivity*, Vol. 402, No. 1-2, pp. 31-37, 1 Feb. 2004.
- [13] Murugesan, M., Obara, H., Nakagawa, Y., Yamasaki, H., and Kosaka, S., "The importance of  $\text{CeO}_2$  growth temperature and its post-annealing for the improvement of the microwave surface

- resistance of  $\text{DyBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_z$  films,” *Journal of Crystal Growth*, Vol. 304, No. 1, pp. 118-126, 1 Jun. 2007.
- [14] Kang, J. F., Liu, X. Y., Lian, G. J., Zhang, Z. H., Xiong, G. C., Guan, X. D., Han, R. Q., and Wang, Y. Y., “Crystal-orientation controlled epitaxial  $\text{CeO}_2$  dielectric thin films on Si(100) substrates using pulsed laser deposition,” *Microelectronic Engineering*, Vol. 56, No. 1-2, pp. 191-194, May 2001.
- [15] Wu, X. D., Dye, R. C., Muenchausen, R. E., Foltyn, S. R., Maley, M., Rollett, A. D., Garcia, A. R., and Nogar, N. S., “Epitaxial  $\text{CeO}_2$  films as buffer layers for high-temperature superconducting thin films,” *Applied Physics Letters*, Vol. 58, No. 19, pp. 2165-2167, 3 May 1991.
- [16] Furusawa, M., Tashiro, J., Sasaki, A., Nakajima, K., Takakura, M., Chikyow, T., Ahmet, P., and Yoshimoto, M., “In situ analysis of the room-temperature epitaxial growth of  $\text{CeO}_2$  ultrathin films on Si (111) by coaxial impact-collision ion scattering spectroscopy,” *Applied Physics Letters*, Vol. 78, No. 13, pp.1838-1840, 26 March 2001.
- [17] Huang, D. D., Qin, F. G., Yao, Z. G., Ren, Z. Z., Lin, L. Y., Gao, W. B., and Ren, Q. Y., “High quality  $\text{CeO}_2$  film grown on Si(111) substrate by using low energy dual ion beam deposition technology,” *Applied Physics Letters*, Vol. 67, No. 25, pp.3724-3725, 18 Dec. 1995.
- [18] Swaminathan, V., and Macrander, A. T., Materials Aspects of GaAs and InP Based Structures, Prentice Hall, Englewood Cliffs, New Jersey, pp. 85-190, 1991.
- [19] 汪建民，材料分析，中國材料科學學會，新竹，第 16-31 頁，1998。
- [20] 鄭信民，林麗娟，X 光繞射應用簡介，工業材料雜誌，181 期，第 100-108 頁，2002。