

제 3 차 년 도
최 종 보 고 서

KRISS-93-145-IR

고온초전도 기술개발

Development of High T_c Superconductivity Technology

고온초전도 박막을 이용한 조셉슨 소자 개발

Development of High T_c Superconducting Josephson Junctions

연 구 기 관

재단법인 한국표준과학연구원

과 학 기 술 처

BIBLIOGRAPHIC DATA SHEET		1. 관리번호	2. 수행부서 양자연구부	3. 발행일 1993. 11.
4. 제목/부제 고온초전도 박막을 이용한 조셉슨 소자 개발			7. 주제분야 2003	
5. 저자(공저자) 박종철, 박용기, 이순걸, 이규원, 문대원, 박근섭, 이용호, 권혁찬, 허남희, 김경중, 황두섭, 신동찬, 김문석, 이상길		8. 수행기관 보고서번호 KRISS-93-145-IR		
6. 수행기관(KRISS 이외의 공동 혹은 위촉연구기관) 한국과학기술원(위탁연구)		9. 계약번호		
		10. 자료내역 3차년도 제 3 차 보고서		
11. 위탁기관 과학기술처				
12. 보충사항				
13. 초록(주요 참고문헌이나 관련문헌이 있을 경우 여기에 명시한다)				
<p>Laser ablation 방법으로 임계온도가 88~90 K, 임계전류밀도가 77 K에서 10^6 A/cm²인 양질의 YBa₂Cu₃O_x 박막을 제작하였다. 또한 소자 제작을 위해 YBCO, PrBa₂Cu₃O₇, SrTiO₃ 및 CaRuO₃ 등의 다층박막도 제작하는 기술을 개발하였다. 이와 함께 저압 산소하에서 sputtering 방법으로 YBCO 박막을 제작함으로써 기판 온도를 낮출 수 있었으며 이때의 최적 증착조건 등을 연구하였다. Step이 만들어진 SrTiO₃ 기판위에 YBCO 단일층 박막을 sputtering 방법으로 증착하여 dc SQUID를 제작하였으며 77 K에서 SQUID 변조신호를 관측하였다. Step이 만들어진 SrTiO₃ 기판위에 YBCO/CaRuO₃ 이중박막을 laser ablation 방법으로 제작하여 SNS type step edge junction dc SQUID를 제작하였는데, RSJ 모델과 일치하는 I-V특성, SIS 접합과 유사한 I_c-T특성을 얻었다. 또한 PrBa₂Cu₃O₇을 접합의 barrier로 사용하는 ramp edge 접합을 laser ablation으로 다층박막을 증착하고 ion miller로 건식 식각하여 제작하여 77 K에서 SQUID 변조신호를 관측하였다. SQUID의 집적화를 위해 우선 10-turn flip-chip coupling형태의 YBCO SQUID input coil을 제작하였다.</p>				
14. 키워드(6~12개)				
고온초전도 박막, YBCO, 레이저 증착, off-axis rf sputtering, Ar ion milling, step edge 접합 SQUID, 터널접합, ramp edge 접합 SQUID, flux transformer, 수동소자, microstrip resonator				
15. 배포구분 01		16. 해제기간		17. 면수 199
				18. 가격

BIBLIOGRAPHIC DATA SHEET		1. REPORT NO.	2. PERFORMING LAB. Quantum Metrology Division	3. REPORT DATE Nov., 1993
4. TITLE/SUBTITLE Development of High T _c Superconducting Josephson Junctions			7. SUBJECT CATEGORY 2003	
5. AUTHOR(S) J.C. Park, Y.K. Park, S.G. Lee, K.W. Lee, D.W. Moon, K. Park, Y.H. Lee, H.C. Kwon, N.H. Hur, K.J. Kim, D.S. Hwang, D.C. Shin, M.S. Kim, S.K. Lee		8. PERFORMING ORGANIZATION REPORT NO. KRISS-93-145-IR		
6. PERFORMING ORGANIZATION NAME KAIST(consigned research)		9. CONTRACT OR GRANT NO.		10. TYPE OF REPORT 3rd report of three years
11. SPONSORING ORGANIZATION MOST				
12. SUPPLEMENTARY NOTES				
13. ABSTRACT <p>YBa₂Cu₃O_x thin films with T_c of 88~90 K and J_c higher than 1 × 10⁶ A/cm² were fabricated using laser ablation. In order to fabricate junctions, techniques for depositing multilayer films of YBCO, PrBa₂Cu₃O₇, SrTiO₃ and CaRuO₃ were developed. Using off-axis rf <i>in situ</i> sputtering under low oxygen partial pressure, it was possible to fabricate YBCO thin films at low temperature. Step edge junction SQUID was fabricated by making step on SrTiO₃ substrate and depositing YBCO thin film on it and SQUID modulation signal was observed at 77 K. By depositing YBCO and CaRuO₃ double layer on the stepped SrTiO₃ substrate, SNS type step edge junction SQUID was developed for the first time. This SQUID shows RSJ model type I-V characteristics and the I_c-T characteristics is similar to the SIS junction. In addition, ramp edge junction SQUID using PrBa₂Cu₃O₇ as a barrier was fabricated and observed SQUID modulation signal at 77 K. 10-turn YBCO SQUID input coil was also made for flip-chip coupling with SQUID washer.</p>				
14. KEYWORDS <p>high T_c thin film, YBCO, laser ablation, off-axis rf sputtering, Ar ion milling, step edge junction SQUID, tunneling junction, ramp edge junction SQUID, flux transformer, passive device, microstrip resonator</p>				
15. CLASSIFICATION 01		16. SCHEDULE OF DECLASSIFICATION		17. NO. OF PAGES 199
				18. PRICE

제 출 문

과학기술처 장관 귀하

본 보고서를 “고온초전도 박막을 이용한 조셉슨 소자 개발” 과제의
제 3 차년도 최종 보고서로 제출합니다.

1993년 10월

주관연구기관명 : 한국표준과학연구원

연구책임자 : 박 종 철, 박 용 기

책임연구원 : 이 순 결, 이 규 원

문 대 원

선임연구원 : 박 근 섭, 이 용 호

권 혁 찬, 허 남 회

연 구 원 : 김 경 중, 황 두 섭

신 동 찬, 김 문 석

연 구 조 원 : 이 상 길

위탁연구기관명 : 한국 과학 기술 원

연구책임자 : 천 성 순

연 구 원 : 조 창 현, 신 중 식

요 약 문

I. 연구제목

고온초전도 박막을 이용한 조셉슨소자 개발

II. 연구의 목적 및 중요성

초전도응용기술은 차세대의 핵심기술 중 하나로 기술적 및 경제적인 파급효과가 지대할 것으로 판단되는 기술이며, 특히 고온초전도체 응용기술은 기술혁신을 유발할 수 있을 것으로 간주되고 있어 선진국들의 경쟁적인 연구개발 대상이다. 고온초전도체의 여러 응용분야 중 가장 먼저 응용되며 또한 그 파급효과가 지대할 것으로 생각되는 분야는 초전도 박막을 이용한 전자공학에의 응용인데 조셉슨 접합 및 이를 이용한 초전도 양자 간섭장치(SQUID)는 가장 기본적인 소자로 많은 연구가 진행되고 있는 중요한 분야이다. 또한 SQUID를 개발하는 과정에서 가장 핵심이 되는 기술은 소자 설계 및 양질의 박막 제작과 미세 patterning 기술로 이는 다른 전자공학적인 응용기술 개발 연구에 그대로 활용되는 핵심기술이다.

본 연구의 최종 목표는 임계온도가 ~ 90 K이고, 77 K에서 임계전류밀도가 10^6 A/cm² 이상인 YBCO박막을 in situ로 재현성 있게 제작하고 이 박막을 이용하여 조셉슨소자와 77 K에서 작동되는 SQUID센서를 제작하는 데 있다.

Ⅲ. 연구의 내용 및 범위

1. 박막 제작

- Laser ablation 방법으로 임계온도가 88~90 K, 임계전류밀도가 77 K에서 10^6 A/cm^2 인 양질의 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ 박막 제작
- YBCO, $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$, SrTiO_3 및 CaRuO_3 등의 다층박막 제작
- Sputtering 방법으로 YBCO 박막 제작 및 산소분압의 영향 규명

2. Step edge junction SQUID 제작

- Step이 만들어진 SrTiO_3 기판위에 YBCO 단일층 박막을 sputtering 방법으로 증착하여 dc SQUID 제작
 - 77 K에서 SQUID 변조신호 관측
- YBCO/ CaRuO_3 이중박막을 이용한 SNS type step edge junction dc SQUID 제작
 - Step이 만들어진 SrTiO_3 기판위에 YBCO/ CaRuO_3 이중박막을 laser ablation 방법으로 제작하여 SNS type step edge junction dc SQUID를 제작
 - RSJ 모델과 일치하는 I-V 특성, SIS 접합과 유사한 I_c -T 특성

3. Edge Junction SQUID 제작

- YBCO/ PrBCO /YBCO ramp edge 접합 dc SQUID 제작
 - $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ 을 접합의 barrier로 사용하는 ramp edge 접합을 laser ablation으로 다층 박막을 증착하고 ion miller로 건식 식각하여 제작

- 77 K에서 SQUID 변조신호 관측

4. SQUID input coil 제작

- Flip-chip coupling 형태의 YBCO SQUID input coil 제작
 - YBCO/SrTiO₃/YBCO 삼중박막을 laser ablation으로 제작하고 선폭이 5 μm의 10-turn input coil을 photolithography와 Ar 이온 밀링 방법으로 제작

5. 고온초전도 박막의 수동소자에의 응용기술 개발(위탁연구)

- MOCVD법을 이용한 20×20 mm²의 YBCO 박막 제작
- Microstrip resonator 시험제작

IV. 연구의 결과 및 활용에 대한 건의

1. 박막제작

Laser ablation 방법으로 YBCO 박막을 제작할 때 최적 조건을 도출하기 위해 여러가지 증착조건에서 제작된 박막의 특성을 전기적 성질과 SEM구조, X-ray 회절 실험 등을 통해 조사하였다. 또한 SQUID 제작과 관련하여 YBCO, PBCO, SrTiO₃, CaRuO₃ 등으로 된 다층 박막들을 제작하였다. 제작된 다층박막들은 모두 epitaxial한 결정 배향특성을 지녔으며 확산이 거의 발견되지 않았고 $T_c > 87$ K, $J_c > 10^6$ A/cm²의 임계특성을 지녔다. 이로써 SQUID 제작에 필요한 박막제작 공정이 확립되었다.

Off-axis rf sputtering에서는 증착시 산소 분압이 다른 증착조건에 미치는 영향을 조사하였다. 특히 낮은 산소분압은 최적 증착온도를 낮추고 증

착속도를 빠르게 할 수 있는 잇점을 지녔다. 낮은 산소분압하에서 target의 Ba/Y비에 따라 임계온도와 격자상수가 달라지며 이는 박막 형성과정을 이해하는 중요한 변수로 사용될 수 있을 것이다.

또한 박막 응요소자 개발시 필수공정인 식각을 위해 전용장비인 Ar ion milling 장치를 제작 설치하였다.

2. Step edge junction SQUID 제작

YBCO 단일층 step edge 접합 dc SQUID와 CaRuO₃ 박막을 normal metal로 사용한 SNS 형태의 step edge 접합 dc SQUID를 제작하였다. 단일층 step edge 접합 SQUID의 경우 77 K에서 약 1 μ V 진폭의 SQUID 변조신호를 관측할 수 있었으며 SNS 접합 특성을 보였다. YBCO/CaRuO₃ 이중박막을 이용한 step edge 접합 SQUID의 경우 접합의 임계온도가 52 K, 임계전류 온도의존성은 SIS 특성에 가깝게 나타났다. SQUID 변조진폭은 32 K에서 1.5 μ V, 4.2 K에서 약 5 μ V로 관측되었고, 4.2 K에서 측정된 flux noise는 $S_{\phi} = 4.9 \times 10^{11} \phi_0^2/\text{Hz}$ 였다.

YBCO/CaRuO₃ 이중박막을 이용한 step edge 접합 SQUID의 경우 접합의 임계온도를 77 K 이상으로 높이는 연구가 계속 진행중에 있으며 YBCO 단일층 step edge 접합 SQUID의 경우는 77 K 이상에서 SQUID 신호가 관측되고 있기는 하지만 변조진폭이 아직은 작다는 단점을 지녀 이의 보완 연구가 필요하다.

3. Edge junction SQUID 및 input coil 제작

YBCO 다층막구조를 이용한 ramp edge 접합 dc SQUID 및 이와 결합하여 사용할 flux transformer를 제작하였다. SQUID와 input coil은 별도의

기판에 제작한 다음 접촉 결합하여 사용하는 flip-chip coupling 형태로 설계하였다. 다층막구조 제작은 laser ablation 방법을 사용하고 미세 형상화 작업은 포토리소그래피와 Ar ion milling을 사용하여 완성하였다.

Ramp edge 접합 dc SQUID는 외부 자기장의 변화에 대한 주기적인 SQUID 변조신호가 80 K까지 관측되었으며 77 K에서는 약 $1 \mu\text{V}$ 의 진폭을 보였다. $5 \mu\text{m}$ 선폭의 10 turn input coil을 포함하고 있는 flux transformer는 절연막으로 SrTiO_3 를 사용한 3층막 구조로 제작되었으며 via를 통한 초전도 연결이 불완전하여 임계온도가 아직 77 K보다 낮아 이를 개선하고 있다.

4. 고온초전도 박막의 수동소자에의 응용기술 개발(위탁연구)

고온초전도 박막을 이용한 수동소자 개발을 위한 연구의 일환으로 MOCVD법을 이용하여 $20 \times 20 \text{ mm}^2$ 의 면적을 갖는 MgO , LaAlO_3 단결정위에 YBCO 박막을 증착하고 open circuited half wavelength microstrip line resonator를 설계 제작하였다. 이는 Cu 박막을 이용한 공진기에 비하여 우수한 마이크로파 특성을 나타냈으며 이러한 결과로 YBCO 박막을 이용한 마이크로파용 수동소자 개발 및 응용 가능성을 확인하였다.

SUMMARY

I. Title

Development of high T_c superconducting Josephson junctions

II. Objectives and the Significance of the Research

Superconducting technology is one of the most important key technology in future. Especially, since high temperature superconductor has the potential to innovate the most of the present technology, many advanced countries, including US and Japan, carry on the competitive research on it. The early application of high temperature superconductivity will be made in the field of electronics using thin films. Among them, Josephson junctions and superconducting quantum interference devices(SQUID) are the very important basic components and therefore they are the most frequent topics of the world-wide research.

The final goals of the present research are to develop the reproducible in-situ process to prepare YBCO superconducting thin films of which T_c is near 90 K and J_c is greater than 10^6 A/cm² and to fabricate the Josephson junctions and SQUIDs working at 77K.

III. Contents and Scopes of the Research

1. Fabrication of thin films

- Development of laser ablation method to fabricate high quality YBa_2

Cu_3O_x thin film of which T_c is 88~90 K and J_c exceeds 1×10^6 A/cm² at 77K

- Fabrication of multilayer structures consist of YBCO, $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$, SrTiO_3 and CaRuO_3 thin films
- Development of off-axis rf sputtering method to fabricate YBCO films and study on the effect of oxygen partial pressure during in-situ deposition

2. Fabrication of the step edge junction SQUID

- Fabrication of dc SQUID using stepped SrTiO_3 substrate and single layer of YBCO thin film deposited by off axis sputtering
 - SQUID modulation signal was observed at 77 K.
- Development of SNS type step edge junction dc SQUID using YBCO/ CaRuO_3 double layer thin films deposited by laser ablation on stepped SrTiO_3 substrate
 - I-V characteristics equivalent to RSJ model and I_c -T characteristics similar to that of SIS junction were observed below 77 K.

3. Fabrication of Edge junction SQUID

- Fabrication of ramp edge junction by using YBCO/PBCO/YBCO tri-layer structure deposited by laser ablation and etched by ion milling
 - SQUID modulation signal was observed at 77 K.

4. Fabrication of SQUID input coil

- Fabrication of 10-turn flip-chip coupling type YBCO SQUID input coil of which line width is $5\ \mu\text{m}$ by patterning YBCO/SrTiO₃/YBCO tri-layer structure deposited by laser ablation with photolithography and Ar⁺ milling

5. Study on passive devices using high T_c superconducting thin film (consigned research project)

- Development of the technique to fabricate YBCO thin film with $20 \times 20\ \text{mm}^2$ by MOCVD method
- Fabrication of the trial device of microstrip line resonator

IV. Results and Suggestions

1. Fabrication thin films

In order to find out the optimum condition of YBCO thin film deposition by laser ablation, electrical properties, surface morphology by SEM, crystal orientation and quality by XRD were studied for the films prepared at various deposition conditions. The process to fabricate epitaxial multilayer consists of YBCO, PBCO, SrTiO₃ and CaRuO₃ thin films were also developed. T_c and J_c of YBCO films fabricated by laser ablation exceed 87 K and $1 \times 10^6\ \text{A/cm}^2$, respectively.

The effect of oxygen partial pressure during in-situ deposition of YBCO films using off axis rf sputtering was studied. It was found that low

pressure process has merit of low deposition temperature and increased deposition rate. It was also found that T_c and c-axis lattice parameter depend strongly on Ba/Y ratio of the target at low oxygen partial pressure.

2. Fabrication of a step edge junction SQUID

Dc SQUIDs from plain step edge junction fabricated with single layer YBCO thin film on stepped SrTiO_3 substrate and SNS type junction fabricated with YBCO/ CaRuO_3 double layer thin films. Plain edge junction SQUID showed modulation signal with $\sim 1 \mu\text{V}$ amplitude at 77K and SNS type junction characteristics. The critical temperature of the junction of the double layer SNS type edge junction SQUID was 55 K and I_c -T characteristics of this SQUID was close to SIS junction instead of SNS. The amplitudes of SQUID modulation signal were $1.5 \mu\text{V}$ at 32K and $5 \mu\text{V}$ at 4.2 K. The flux noise(S_ϕ)measured at 4.2K was $4.9 \times 10^{-11} \phi_0^2/\text{Hz}$.

More study to improve the critical temperature of YBCO/ CaRuO_3 double layer edge junction SQUID and characteristics of both type SQUID is necessary and now under way.

3. Fabrication of Edge junction SQUID and input coil

Ramp edge junction dc SQUID and flip-chip coupling type flux transformer were fabricated using PBCO as a junction barrier and SrTiO_3 as an insulating layer. SQUID and input coil were fabricated on the separate substrates and will be coupled in use. Multilayer structures were fabricated by laser ablation and SQUID was patterned by photolithography and Ar ion

milling.

Fabricated SQUID showed modulation signal up to 80K and the amplitude of the signal at 77K was about $1\mu\text{V}$. The line width of 10-turn input coil was $5\mu\text{m}$ but the critical temperature of the patterned coil was below 77K because the contact of YBCO/YBCO through via was not so good. The research to improve the reproducibility and device performance is in progress.

4. Study on passive devices using high T_c superconducting thin film
(consigned research project)

In order to develop passive devices using high T_c superconducting thin film, YBCO thin films with $20\times 20\text{mm}^2$ were deposited by MOCVD method on MgO and LaAlO_3 substrate and a trial device of open circuited half wavelength microstrip line resonator was designed and fabricated. Fabricated YBCO resonator showed better response properties than one fabricated using Cu thin film. This research was carried out by KAIST.

CONTENTS

Chapter 1. General Overviews	1
Section 1. Introduction	1
Section 2. Background and Importance	5
Section 3. Objectives	9
Section 4. Research Contents and Scope	9
Section 5. Publications and Patents	11
Chapter 2. Preparation of Thin Film	21
Section 1. Fabrication of YBCO Thin Film by Laser Ablation	21
Section 2. Fabrication of Multi-layer Thin Films by Laser Ablation	42
Section 3. In-situ Deposition of YBCO Thin Film at Low Oxygen Partial Pressure by Off-axis Sputtering	52
Section 4. Patterning with Ar Ion miller	86
Section 5. Conclusion	89
Chapter 3. Fabrication of Step Edge Junction SQUIDs	92
Section 1. Fabrication of Step Edge Junction SQUID using Single Layer YBCO Thin Film	92
Section 2. Fabrication of Step Edge Junction SQUID using YBCO/CaRuO ₃ Double Layer Thin Film	105
Section 3. Conclusion	120

Chapter 4. Fabrication of Edge Junction SQUID and Input Coil	122
Section 1. Fabrication of Ramp Edge Junction dc SQUID using YBCO/PBCO/YBCO Structure	122
Section 2. Fabrication of Flux Transformer	149
Section 3. Conclusion	160
 Chapter 5. Development of Passive Devices using High T_c Superconducting Thin Film (Consigned Research Project)	 162
Section 1. Introduction	162
Section 2. Fabrication of Thin Film and Characterization	164
Section 3. Design and Fabrication of the Resonator	169
Section 4. Measurement of Performance of the Resonator	173
Section 5. Conclusion	181

목 차

제 1 장 개 관	1
제 1 절 서 설	1
제 2 절 연구의 배경 및 필요성	5
제 3 절 연구의 목표	9
제 4 절 연구의 내용 및 범위	9
제 5 절 연구결과 발표 및 특허	11
 제 2 장 박막제작	 21
제 1 절 Laser ablation에 의한 YBCO 박막제작	21
제 2 절 Laser ablation에 의한 다층박막 제작	42
제 3 절 낮은 산소분압에서 sputtering 방법에 의한 YBCO 박막의 in-situ 제작	52
제 4 절 Ar ion milling 장치 제작	86
제 5 절 결 론	89
 제 3 장 Step edge junction SQUID 제작	 92
제 1 절 YBCO 단일층 step edge junction SQUID 제작	92
제 2 절 YBCO/CaRuO ₃ 이중박막을 이용한 step edge junction SQUID	105
제 3 절 결 론	120
 제 4 장 Edge junction SQUID 및 input coil 제작	 122
제 1 절 YBa ₂ Cu ₃ O ₇ /PrBa ₂ Cu ₃ O ₇ /YBa ₂ Cu ₃ O ₇ ramp edge junction dc SQUID 제작	122

제 2 절 Flux transformer 제작	149
제 3 절 결 론	160
제 5 장 고온초전도 박막의 수동소자에의 응용기술 개발	162
제 1 절 서 론	162
제 2 절 박막 증착 및 특성조사	164
제 3 절 수동소자 설계 및 제작	169
제 4 절 수동소자의 동작 특성 측정	173
제 5 절 결 론	181

제 1 장 개 관

제 1 절 서 설

액체질소의 비등점 이상에서 초전도성을 나타내는 YBCO 물질이 발견된 지 6년여의 시간이 지났다. 그동안 세계적으로 고온초전도체에 대한 엄청난 양의 연구가 이루어져 박막분야에만도 15,000편 이상의 논문이 발표되었으며 매년 초전도연구 결과 발표만을 위한 국제적인 대형 학술회의가 10여회씩 열리고 있다. 초기에 비해 연구 열기는 어느정도 가라앉았으나 이제는 실용화를 위한 본격적인 연구의 단계에 돌입했다고 할 수 있으며 특히 박막을 이용한 전자공학 응용분야에서는 괄목할만한 연구의 진전이 있었다고 할 수 있다. 미국에는 초전도응용만을 전문으로 하는 회사들이 설립되어 이들을 중심으로 상업화를 위한 연구가 활발하다. Conductus사는 고온초전도 SQUID시스템인 'Mr. SQUID'를 개발하여 시판하고 있으며 STI에서는 고온초전도 박막을 이용하여 제작한 마이크로파용 공진기, 필터 등을 시판하고 있다. 또한 미 해군연구소에서는 1992년에 각종 초전도소자들을 우주선에 실어 우주공간에서 성능평가 등을 행하는 HTSSE I 계획에 이어 1995~6년에는 단일소자들을 결합하여 만든 시스템 및 한 단계 진보된 장치들을 실험하기 위한 HTSSE II 사업을 계획하고 있다.

1993년 5월 일본에서는 제 2 차 국제 초전도산업 정상회담(ISIS-II)이 열려 미국, 일본 및 유럽의 초전도관련 산업체의 최고경영진들이 앞으로 30년간의 초전도 응용시장을 예상하였다. 초전도 시장은 앞으로 빠른 속도로

성장하여 2020년에는 세계시장 규모가 1,500억 내지 2,000억 달러 규모가 되며 이때 초전도 전자공학 산업이 전체 초전도산업시장의 46%를 차지할 것으로 예상하고 있다. 이러한 예상은 현재의 고온초전도 물질을 응용할 때의 경우이며 앞으로 더 높은 임계온도의 초전도체가 발견되어 응용되면 그 파급효과는 엄청날 것으로 예상된다. 1940년대말 트랜지스터가 처음 나타났을때 누구도 지금의 전자공학을 상상하지 못했던 점을 감안한다면 앞으로 고온초전도체가 미칠 경제적 및 산업적 파급효과는 현재의 예측을 훨씬 능가할 수도 있을 것이다.

일본의 경우 고온초전도 연구에 있어서만은 과거 반도체 등의 기술개발에서 미국의 앞선 기술을 모방하여 상업화하던 방식을 탈피하고 기초부터 독자적인 기술을 개발하기 위해 노력하고 있다. 정부의 주도로 국립연구기관, 대학 및 기업들이 일본 특유의 협력체제를 구축하면서 고온초전도체와 관련된 거의 모든 분야에서 연구를 수행하고 있다. 그중에서도 일본은 초전도 선재 등 bulk를 이용하는 대규모 응용에서 미국보다 강세를 나타내고 있으며 보다 장기적인 연구계획을 정책의 큰 변화없이 진행시키고 있는 것으로 보인다.

일본의 국제초전도사업기술연구센터(ISTEC)의 다나카 소장은 1991년에 저술한 그의 저서 '高温超電導'에서 1986년부터 1997년까지의 고온초전도 연구개발에 대한 진전과 예측을 하고 있는데 4년을 주기로 기술혁신이 있을 것으로 예측하고 있다. 제 2기인 1990~1993년 사이에는 임계온도가 150 K 이상인 신재료가 개발될 것이고 임계전류밀도도 박막에서 10^7 A/cm², bulk의 경우 외부자장이 없을 때 10^6 A/cm², 외부자장이 5 T일 때에는 10^5 A/cm²으로 상승하여 고온초전도체가 실용화될 것으로 예상하고 있다.

또한 1994년부터 1997년까지의 제 3 기에는 산업응용이 시작되어 비접촉 자기 베어링, 자기 차폐 및 전자 디바이스 등이 제품화되어 실제로 사용될 것으로 예측하고 있다. 그는 이 시기에 초전도체가 세계 선진국 기업 간에 가장 치열한 생산기술 경쟁의 제 1 목표가 될 것으로 예상하고 있다.

이러한 예측은 1988년초 이래로 침묵을 지키고 있는 임계온도상승의 기록이 1993년 들어 수은계산화물초전도에 의해 새로이 갱신되고 있어 더욱 신빙성을 높여주고 있다. 1993년초 러시아의 푸틸린에 의해 임계온도가 94 K인 Hg-Ba-Cu-O 물질이 합성된 직후 스위스의 쉴링은 133 K의 Hg-Ba-Ca-Cu-O 물질을 합성하여 발표하였으며 1993년 10월에는 휴스턴 대학의 추 교수팀이 이 물질에 압력을 가하여 임계온도를 161 K까지 상승시켰다고 발표하였다.

우리나라에서도 1987년부터 연구를 시작하여 과학기술처의 지원하에 정부출연연구소, 대학 및 산업체연구소가 연구에 참여하여 꾸준한 진전을 이루었다. 그동안의 과기처의 지속적인 지원속에 어느정도의 장비와 경험이 축적된 전문인력을 갖출 수 있게 되어 이제부터 최소한 박막응용분야에서는 실용화를 위한 연구가 국내에서도 본격화할 수 있는 단계에 와 있다. 최근 국내에서도 선진국 수준의 박막이 제작되고 있으며 SQUID 등이 제작되어 기본적인 특성을 나타내고 있다.

본 연구의 1차년도에는 YBCO 박막을 in situ로 제작하기 위한 sputtering장치를 설치하고 on axis 및 off axis 방법으로 박막 제작을 시작하였다. 이와 함께 화학 에칭 방법을 이용하여 microbridge를 제작하였으며 step edge 접합제작을 위한 기초연구가 시작되었다.

제 2 차년도에는 박막을 이용한 조셉슨 접합 및 SQUID제작을 위한 off

axis sputtering방법에 의한 박막성장기술을 개발하고, 보다 더 좋은 특성의 박막과 초전도전자소자 제작을 위한 laser ablation장비 설치를 완료하였으며 step edge접합을 이용한 SQUID를 제작하여 기본적인 특성측정에 성공하였다. 또한 SIN형태의 다층박막을 이용한 터널링 접합을 제작하여 고온 초전도 터널링 신호를 측정함으로써 앞으로 고온초전도체를 이용한 planar 접합 제작 및 에너지갭 측정 등의 연구 기반을 확보하였다.

당해년도는 제 2 단계의 최종년도인 3차년도로, 고온초전도체 박막을 이용한 SQUID 제작 기술에 획기적인 발전을 이루었다고 할 수 있다. Laser ablation 방법으로 양질의 YBCO박막과 barrier 및 절연막으로 사용되는 기타 산화물의 다층박막을 제작하는 기술을 개발하였으며 여러형태의 접합을 응용하여 77 K에서 작동되는 SQUID를 제작하였다. 또한 집적화된 SQUID를 제작하기 위해 SQUID input coil를 YBCO 및 SrTiO₃의 이중박막을 이용하여 제작하였다.

제 2 절 연구의 배경 및 필요성

1. 연구개발의 배경

1911년 네덜란드의 H. Kamerlingh Onnes가 4.15 K에서 수은의 초전도성을 발견한 이후 초전도체에 대한 연구는 기대와 실망속에서 1986년 말까지 아주 느린 발전을 하고 있었다. 초전도체가 지닌 무한한 가능성에도 불구하고 초전도 현상이 나타나는 임계온도는 대단히 느리게 상승하여 1973년 Nb₃Ge의 23.2 K까지 연간 0.3 K의 상승속도를 나타내었다. 그나마 그 이후 1986년까지 13년동안은 단 1 K의 상승도 없었다. 이러한 온도는 아직 액체 헬륨을 냉매로 사용하여야 하기 때문에 초전도체의 큰 응용가능성은 대부분 가능성으로만 머물러 있어야 했으며 극히 일부분에서만 실용화가 되어 있었다.

그러나 1986년에는 임계온도가 약 30 K인 La-Ba-Cu-O물질이, 그리고 그 다음해 초에는 임계온도가 놀랍게도 90 K가 넘는 Y-Ba-C-O물질이 발견됨으로써 세계적으로 폭발적인 초전도연구가 시작되었다. 이러한 열기를 상징하는 대표적인 학술발표회가 바로 1987년 3월 18일 미국 뉴욕에서 열린 미국물리학회의 “고온초전도에 대한 특별 토론회”였다. 오후 7시 30분에 시작되어 다음날 새벽 3시 15분까지 계속된 토론회에는 1,200석의 회의장에 3,000여명의 군중이 몰려 대혼잡을 이루었으며 회의장에 들어가지 못한 사람들을 위해 급히 복도 등에 TV가 설치되었다. 이러한 열기를 1969년 8월 미국 뉴욕주 Woodstock에서 존 바에즈 등이 출연하여 500,000여명의 청중을 동원하였던 전설적인 록음악 페스티벌에 비유하여 “Woodstock

of Physics”라고 부르고 있다.

임계온도가 액체질소의 비등점인 77 K를 넘는 초전도물질의 발견은 응용의 측면에서 볼 때 대단히 큰 의미를 지닌다. 새로운 고온초전도체는 이제 초전도성을 유지하기 위해서 액체헬륨 대신 액체질소를 사용하게 되었는데, 액체질소는 액체헬륨에 비해 가격이 수십분의 1 정도로 저렴할 뿐만 아니라 단위 열량을 냉각시키는데 소모되는 양도 액체헬륨의 약 100분의 1 정도로 적기 때문에 대단히 경제적이다. 또한 매우 희귀한 헬륨에 비해 질소는 공기중에 무한정 존재할 뿐만아니라 취급이나 단열에 있어서도 액체질소가 훨씬 간편하다.

현재까지 발견된 새로운 초전도체는 약 80종 이상이며 임계온도는 1993년초까지 Tl-Ba-Ca-Cu-O물질의 125 K가 공식적인 최고 기록이었으나 1993년 들어 수온계 산화물초전도에 의해 새로이 갱신되고 있다. 1993년 초 러시아의 푸틸린에 의해 임계온도가 94 K인 Hg-Ba-Cu-O물질이 합성된 직후 스위스의 쉘링은 133 K의 Hg-Ba-Ca-Cu-O물질을 합성하여 발표하였으며 1993년 10월에는 휴스턴 대학의 추 교수팀이 이 물질에 압력을 가하여 임계온도를 161 K까지 상승시켰다고 발표하였다.

2. 연구개발의 필요성

초전도체는 그 고유한 전·자기적 특성으로 인하여 에너지, 교통, 방위 산업, 의료 및 전자공학 분야에서 광범위한 응용이 일찍부터 예견되어 왔으나 임계온도가 낮은 제약때문에 많은 시간을 기다려 왔다. 그러나 이제 액체질소를 냉매로 사용할 수 있게 됨으로써 그 응용가능성이 실현되고

있다. 여러가지의 응용가능성 중 특히 전자공학적 응용은 앞으로의 첨단기술에 미칠 파급효과로 인하여 가장 주목을 받고 있다. 이러한 응용은 기존의 초전도체를 이용한 조셉슨 소자로부터 이미 시작되었으며 이를 바탕으로 초전도양자간섭장치(SQUID) 등이 현재 사용되고 있다. 전자공학적 응용은 주로 박막을 이용한 접합과 현재의 반도체공정을 이용한 미세선 형태로 이용하게 되는데 반도체 소자에 비해 감도가 뛰어나고, 응답속도가 빠르며 발열량이 극히 적은 장점을 지니고 있어 앞으로 반도체와의 혼성 소자 또는 반도체의 대체소자로 제작되어 미래의 초전도 전자공학시대의 주역이 될 것으로 전문가들은 예측하고 있다.

현재 일본과 미국이 치열한 특허경쟁을 벌이며 연구에 열을 올리고 있는 이유도 바로 초전도체가 미래의 핵심소재이며 초전도응용기술이 21세기의 핵심기술이기 때문이다. 기술 패권주의로 인하여 앞으로 핵심기술을 자체적으로 확보하지 못할 경우 국가적으로 엄청난 불이익이 초래될 것으로 판단된다. 그러므로 현시점에서 초전도 전자공학의 핵심적인 기반기술을 개발하여 확보하는 연구는 대단히 필요하다. 센서 및 소자 등 초전도 박막을 이용한 응용 중에서도 조셉슨 소자가 차지하는 비중은 매우 크다. 한국표준과학연구원에서 현재 수행하고 있는 연구분야중 전압표준도 Nb계 초전도 조셉슨 소자를 이용한 것이며, SQUID나 기존 반도체를 이용한 논리회로 등 IC도 이러한 조셉슨소자를 응용함으로써 보다 더 능률적인 소자로 발전할 것이다. 즉 고온초전도 박막을 활용한 양질의 조셉슨 소자 개발과 응용은 한차원 더 높은 전자공학과 정밀측정 등 과학기술의 획기적 진보를 위한 디딤돌이 될 것이다.

조셉슨 소자의 대표적인 응용의 하나는 SQUID이다. SQUID는 자장의

변화량을 매우 정밀하게 측정할 수 있는 장치로 임계전류밀도나 임계자장 등이 비교적 작은 범위에서 응용이 가능하므로 고온초전도 응용에서 우선적으로 고려될 수 있는 장비라 할 수 있다. 이미 기존의 Nb계 초전도체로 초전도 자석과 함께 SQUID를 만들어 기초과학연구 뿐만 아니라 의료 및 첨단 산업발전에 많은 도움을 주고 있으나 장비가 고가일 뿐만 아니라 그 운용에 있어서도 많은 경비가 소요되고 있다.

이러한 SQUID는 조셉슨 소자가 갖는 성질인 양자간섭효과를 이용한 장치로 한개의 flux quantum(2.07×10^{-15} Wb) 내에서 측정이 이루어지므로 최종적으로 전압을 읽는 장비가 10^{-6} 의 분해도를 갖는 lock-in amp를 사용하면 결국 10^{-21} Wb 단위로 측정이 가능하게 된다. 전류나 전압도 자장으로 변환이 가능하므로 SQUID는 이러한 자장이나 전류, 전압 등을 측정하는데 다른 어떠한 센서도 따를 수 없는 높은 감도를 갖는다. 고온초전도체를 이용한 SQUID 응용이 가능하게 될 경우 액체 헬륨을 냉매로 사용하는 기존의 Nb계 SQUID에 비해 경제성이 월등히 개선되기 때문에 그 파급효과는 더욱 커질 것이며 고온초전도를 이용한 SQUID 기술확립은 다른 초전도 소자개발을 가속화 시킬것이다.

그러므로 실용가능한 양질의 고온초전도 박막 제작기술 개발과 이를 이용한 조셉슨 소자 및 SQUID의 재현성있는 제작 기술 개발연구는 고온초전도체의 전자공학 분야에의 응용에 있어 기본이 되는 대단히 중요한 연구라 할 수 있다. 더우기 이를 실용화하기 위해서는 집적화된 SQUID 시스템을 제작하고 이를 실제적으로 응용해 봄으로써 응용단계에서의 문제점을 파악하고 보완해 나가는 연구가 필수적이라 할 수 있다.

제 3 절 연구의 목표

본 연구의 최종 목표는 임계온도가 ~ 90 K이고, 77 K에서 임계전류밀도가 10^6 A/cm² 이상인 YBCO박막을 in situ로 재현성있게 제작하고 이 박막을 이용하여 조셉슨소자와 77 K에서 작동되는 SQUID센서를 제작하는 데 있다.

제 4 절 연구의 내용 및 범위

본 연구에서는 고온초전도체의 전자공학적인 응용에 있어 가장 핵심기술인 고온초전도 박막 제작 기술과 이를 이용한 조셉슨접합 제작 및 SQUID 제작기술을 개발한다. 연구내용 및 범위를 요약하면 다음과 같다.

1. 박막 제작

- Laser ablation 방법으로 임계온도가 88~90 K, 임계전류밀도가 77 K에서 10^6 A/cm²인 양질의 YBa₂Cu₃O_x 박막 제작
- YBCO, PrBa₂Cu₃O₇, SrTiO₃ 및 CaRuO₃ 등의 다층박막 제작
- Sputtering방법으로 YBCO 박막 제작 및 산소분압의 영향 규명

2. Step edge junction SQUID 제작

- Step이 만들어진 SrTiO₃ 기판위에 YBCO 단일층 박막을 sputtering방

법으로 증착하여 dc SQUID 제작

○ YBCO/CaRuO₃ 이중박막을 이용한 SNS type step edge junction dc SQUID 제작

– Step이 만들어진 SrTiO₃ 기판위에 YBCO/CaRuO₃ 이중박막을 laser ablation방법으로 제작하여 SNS type step edge junction dc SQUID를 제작

– RSJ 모델과 일치하는 I-V 특성, SIS접합과 유사한 I_c-T 특성

3. Edge Junction SQUID 제작

○ YBCD/PrBCO/YBCO ramp edge 접합 dc SQUID 제작

– PrBa₂Cu₃O₇을 접합의 barrier로 사용하는 ramp edge 접합을 laser ablation으로 다층 박막을 증착하고 ion miller로 건식 식각하여 제작

– 77 K에서 SQUID 변조신호 관측

4. SQUID input coil 제작

○ Flip-chip coupling형태의 YBCO SQUID input coil 제작

– YBCO/SrTiO₃/YBCO 삼중박막을 laser ablation으로 제작하고 선폭이 5 μm의 10-turn input coil을 photolithography와 Ar이온 밀링방법으로 제작

5. 고온초전도 박막의 수동소자에의 응용기술 개발

- MOCVD법을 이용한 $20 \times 20 \text{ mm}^2$ 의 YBCO 박막 제작
- Microstrip resonator 시험 제작

제 5 절 연구결과 발표 및 특허 (1990~1993)

1. 국내학술지 게재논문

1. 이규원, 박용기, 박종철, “ $\text{Y}_1\text{Ba}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ 초전도체의 분해에 따른 flux pinning효과 연구”, 새물리 31, 412~416(1991).
2. 이규원, 박용기, 박종철, 김찬중, 이희균, “Electric field criterion 적용에 따른 자기장내에서 고온초전도체의 J_c 변화”, 응용물리 5, 223~228 (1992).
3. Hur, N.H., Ha, D.H., Park, Y.K., Park, J.C., “Substitutional effects of Na in the $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}$ oxide superconductor”, Bull. Korean Chem., Soc., 13, 425(1992).
4. 김찬중, 김기백, 이규원, 원동연, “준용융법으로 제조한 Y-Ba-Cu-O 초전도체에서의 CeO_2 첨가에 따른 초전도성”, 한국재료학회지, 2, 202 (1992).
5. K.-H. Yoo, Y.Y. Song, H.K. Kim, Y.K. Park, J.C. Park, and Jeong Yong Lee, “Hall effect in ion-implanted $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ thin films”, JKPS, 25(6),

546~549(1992).

6. Nam Hwi Hur, In Seon Kim, Yong Ki Park, and Jong Chul Park, "Synthesis and Characterization of the Superconducting Compound $\text{HgBa}_2\text{CuO}_{4+x}$ ", submitted to Bulletin of the Korea Chemical Society.
7. 하동한, 이규원, 박용기, 한태수, Kunihiko Oka and Yoshikazu Nishihara, "부유대역용융법에 의한 $\text{Bi}_{2.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Ca}_1\text{Cu}_2\text{O}_{8+\delta}$ 단결정 육성 및 특성조사", 새물리 투고중.

2. 국외 학술지 게재논문

1. N.H. Hur, W.K. Oh, Y.K. Park, Y.S. Moon, and J.C. Park, "Growth of superconducting Bi-Pb-Sr-Ca-Cu-O films by an ultrasonic spray pyrolysis method", Solid State Commun. 76(2), 149~151 (1990).
2. K.-H. Yoo and J.C. Park, "Low frequency noise measurement in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ thick films", Physica B 165 & 166, 1405 (1990).
3. Y.K. Park, K.W. Lee, N.H. Hur, W.K. Oh, D.H. Ha, K. Park and J.C. Park, "Microstructural changes during the decomposition of $\text{Y}_1\text{Ba}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ Superconductors", J. Mater. Sci. Lett. 10, 1394~1397 (1991).
4. K.W. Lee, I.K. Jeong, Y.K. Park and J.C. Park, "Magnetization and Flux Creep in $\text{Y}_1\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ Superconductor Prepared by Infiltration-Reaction Process", Physica C 185~189, 2263~2264 (1991).
5. I.K. Jeong, D.Y. Kim, Y.K. Park, K.W. Lee and J.C. Park, "Infiltration-Reaction Process for Fabricating $\text{Y}_1\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ Superconductor" Physica

- C 185-189, 2293~2294(1991).
6. S.G. Lee and J. C. Park, "Thermal Phase Fluctuations in Superconducting Wires", *Physica C* 185-189, 1701~1702 (1991).
 7. C.J. Kim, K.B. Kim, K.W. Lee, C.T. Lee, G.W. Hong, I.S. Chang and D. Y. Won, "Effects of BaTiO₃ addition on the superconducting properties of prepared by partial melting processing", *Mater. Lett.* 11, 241~246 (1991).
 8. H.K. Lee, K. Park and D.H. Ha, "Effect of Temperature and Atmosphere on Stability of High-T_c Phases in Bi-Pb-Sr-Ca-Cu-O Superconductors", *J. Appl. Phys.* 70(5), 2764~2767 (1991).
 9. Yuko Yokoyama, In Kwon Jeong, Yong Ki Park and Yoshikazu Nishihara, "Flux Density Distribution in YBa₂Cu₃O_x Specimens with Fine Y₂BaCuO₅ Dispersions", *Jpn. J. Appl. Phys.* 31, 786~787 (1992).
 10. N.H. Hur, Y.K. Park, J.C. Park, Y.H. Ko and H.C. Lee, "Synthesis and ¹⁷O NMR characterization of the high T_c phase in the Bi-Pb-Sr-Ca-Cu-O superconductor", *Solid State Commun.* 82, 547~550 (1992).
 11. K.-H. Yoo, J.C. Park, H.G. Lee, "Angular dependence of magnetoresistance in YBa₂Cu₃O_{7-δ} thin films", *Solid State Commun.*, 83, 695 (1992).
 12. S.G. Lee, Y.H. Lee, H.C. Kwon, K. Park, Y.K. Park, and J.C. Park, "Fabrication of YBCO/AlO_x/Ag Quasiparticle Tunnel Junctions", *IEEE Trans. on Applied Superconductivity*, 3(1), 1305~1307 (1993).
 13. Dong Han Ha, Kunishiko Oka, Fumitoshi Iga, Yoshikazu Nishihara,

- “Homogeneity of $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_1\text{Cu}_2\text{O}_{8+\delta}$ Crystal Boule Grown by TSFZ Method”, to be published in Jap. J. of Appl. Phys. 32(6A), (1993).
14. Kunihiko Oka, Tae-Su Han, Dong-Han Ha, Fumitoshi Iga and Hiromi Unoki, “Crystal growth of $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ by the top-seeded solution-growth method”, Physica C (in print).
 15. Dong Han Ha, Kunihiko Oka, Hirofumi Matsuhata, Fumitoshi Iga and Yoshikazu Nishihara, “Structural and Electromagnetic Properties of Bi-Sr-Ca-Cu-Ni-O Single Crystals”, to be published in Physica B.
 16. Yuji Yamaguchi, Dong Han Ha, Fumitoshi Iga and Yoshikazu Nishihara, “Anisotropy in ac losses near irreversibility field of $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ ”, to be published in J. of Superconductivity.
 17. Dong Han Ha, Kunihiko Oka, Hirofumi Matsuhata and Yoshikazu Nishihara, “Superconducting Properties for the Process of Crystal Growth by the travelling Solvent Floating Zone Method”, submitted to Bulletin of the Electrotechnical Laboratory.
 18. Soon-Gul Lee, Keunseop Park, Yong Ki Park, Jong-Chul Park, “High T_c superconductor-normal-superconductor(SNS) step-edge junction dc SQUIDs with CaRuO_3 as the normal metal”, submitted to Appl. Phys. Lett.
 19. K.-H. Yoo, D.H. Ha, Y.K. Park, and J.C. Park, “Out-of-Plane Transport Properties of $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ Single Crystals in Normal and Mixed States”, submitted to Phys. Rev. B.

3. 학술회의 Proceedings 게재 논문

1. 박종철, 박용기, 이규원, 허남희, 하동한, 박근섭, 오원근, 유경화, 이호근, 방건웅, 황농문, “고온초전도 박막 및 조셉슨 소자 특성연구”, 제 14차 고온초전도 워크샵(한국표준연구소), 3~14(1990).
2. Y.K. Park, N.H. Hur, K.W. Lee, D.H. Ha, W.K. Oh, K. Park and J.C. Park, “Physical and Materials Properties of $Y_1Ba_2Cu_4O_8$ Superconductor”, Proceedings of the 7th Korea-Japan Seminar on New Ceramics, Nov. 245~250 (1990).
3. 허남희, 오원근, 박용기, 박종철, “Chemical approaches to prepare superconducting Bi-Pb-Sr-Ca-Cu-O film and bulk materials”, 제 2 회 화학물성연구센터 연구발표회(서울대학교), 1 (1990).
4. 박종철, 이순걸, “고온초전도체 대규모 응용 가능성”, 플라즈마 및 가속기 연구 합동 Workshop(포항공과대학), (1991).
5. 이순걸, “Recent Development of High Tc SQUIDS”, 제15차 고온초전도 워크샵(한국표준연구소), 25~29 (1991).
6. 박근섭, 이순걸, 박용기, 박종철, “RF Sputtering에 의한 in-situ $YB_2Cu_3O_x$ 박막제작”, 제15차 고온초전도 워크샵 (한국표준연구소), 154~158 (1991).
7. 하동한, 이용호, 박용기, 박종철, 성대진, 이상석, 염도준, “Coevaporation 및 CVD법으로 제작한 YBCO박막 특성연구”, 제15차 고온초전도 워크샵 (한국표준연구소), 189~193 (1991).
8. S.G. Lee, “Experimental study of acoustic attenuation in $YBa_2Cu_3O_x$

- film”, Proc. of 7th ROC-ROK sym. on Cond. Mat. Physc, SNU, Seoul, Jan. 21~22, 1991.
9. P.V. Huong, J.P. Chaminade, J.C. Frison, Y.K. Park, J.C. Park, K.H. Kim, and J.S. Park, “Structural Conversion in high Tc superconductors”, High Tc Superconductor Thin Films(proc. of Int. Conf. on Adv. Mat., Strasbourg, France, 1991), ed. by L. Correra, Elsevier Science Publishers B. V. 1992(p.125~130).
 10. 박용기, 박근섭, 박종철, “Sputtering방법에 의한 YBCO 고온초전도체 박막제작 연구현황”, Proc. of the 6th Applied Physics Symposium on the Advanced Materials and Application, 한국물리학회 p.219~231(전남 대학, 1991년 7월 10~11일).
 11. N.H. Hur, D.H. Ha, Y.K. Park and J.C. Park, “Effect of Na substitution in the $YB_2Cu_3O_7$ oxide superconductors”, Proc. of 16th Workshop on HTSC, Yongpyung, 1991.
 12. 이희천, 양태덕, 고영호, 허남희, “산소-17 핵자기 공명분광학에 의한 Bi-Sr-Ca-Cu-O 초전도체 연구”, Proc. of 16th Workshop on HTSC, Yongpyung, 1991.
 13. 이호근, 박근섭, 하동한, “열처리 온도 및 분위기에 따른 Bi-Pb-Sr-Ca-Cu-O 초전도체의 고온상 안정도 연구”, Proc. of 16th Workshop on HTSC, Yongpyung, 1991.
 14. Pham V. Huong, Y.K. Park, J.C. Park and K.H. Kim, “Structural Conversion in $YBa_2Cu_4O_8$ Superconductor”, Proc. of the XIIIth I.C.O.R.S., Würzburg '92, ed. by Kiefer(1992), pp.880~881.

15. 이규원, 박근섭, 박용기, 박종철, 김문석, 유성초, “YBCO박막의 J_c 결정을 위한 criterion 연구”, Proc. of 17th Workshop on HTSC, Yongpyung, 1992, p.116.
16. S.G. Lee, Y.H. Lee, H.C. Kwon, K. Park, Y.K. Park, J.C. Park, “Tunneling Spectroscopy of YBCO Sputtered Films”, Proc. of 17th Workshop on HTSC, Yongpyung, 1992. 8., pp.127~129.
17. 박근섭, 이순걸, 박용기, 김경중, 문대원, 박종철, “YBCO 박막의 Step Edge Junction을 이용한 dc SQUID 제작”, Proc. of 17th Workshop on HTSC, Yongpyung, 1992. 8., p.87.
18. 권혁찬, 이용호, 김진목, 박종철, “Nb SQUID의 개발과 응용”, Proc. of 17th Workshop on HTSC, Yongpyung, 1992. 8., pp.29~34.
19. J.S. Yu, J.-J. Kim, D.H. Ha, Y.K. Park, “Raman Studies of Electron-Phonon Interaction in $Y_{1-x}Nd_xBa_2Cu_3O_{7-y}$ ”, Proc. of 17th Workshop on HTSC, Yongpyung, 1992. 8., p.215.
20. 허남희, 박용기, 박종철, 유규상, 최석영, “Superconductivity in Copperless Oxide Compounds” Proc. of 17th Workshop on HTSC, Yongpyung, 1992. 8., p.227.
21. Keizo Murata, Kazumasa Ino, Dong-Han Ha, Nathanael A. Fortune, Fumitoshi Iga, Yuko Yokoyama, and Yoshikazu Nishihara, “Effect of Oxygen to the Transport Properties of $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$, $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ and $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4-\delta}$ ”, Proc. of the 5th International Symposium on Superconductivity(ISS '92), Nov. 16~19, 1992, Kobe, ed. by Y. Bando and H. Yamauchi, Springer-Verlag Tokyo 1993, p.101~106.

22. Yuji Yamaguchi, Dong Han Ha, Fumitoshi Iga, and Yoshikazu Nishihara, "Lower Critical Field and Irreversibility Line in dc ac Magnetization of $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ Single Crystal", Proc. of the 5th International Symposium on Superconductivity(ISS '92), Nov. 16~19, 1992, Kobe, ed. by Y. Bando and H. Yamauchi, Springer-Verlag Tokyo 1993, p.183~186.
23. Dong Han Ha, Kunihiko Oka, Fumitoshi Iga, Hiromi Unoki, and Yoshikazu Nishihara, "Effect of Ni Substitution on the Superconducting Properties in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$ ", Proc. of the 5th International Symposium on Superconductivity(ISS '92), Nov. 16~19, 1992, Kobe, ed. by Y. Bando and H. Yamauchi, Springer-Verlag Tokyo 1993, p.323~326.
24. Kunihiko Oka, Hiromi Unoki, AnneMarie M. Moe, Fumitoshi Iga, Keiji Kaneko, Dong Han Ha, and Tae-Su Han, "Crystal Growth of La_2CuO_4 , $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ and $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ by the TSSG Method", Proc. of the 5th International Symposium on Superconductivity(ISS '92), Nov. 16~19, 1992, Kobe, ed. by Y. Bando and H. Yamauchi, Springer-Verlag Tokyo 1993, p.383~386.
25. Tae-Su Han, Kunihiko Oka, Hiromi Unoki, Dong Han Ha, and AnneMarie M. Moe, "Crystal Growth of Pr_2CuO_4 System by the TSFZ Method", Proc. of the 5th International Symposium on Superconductivity (ISS '92), Nov. 16~19, 1992, Kobe, ed. by Y. Bando and H. Yamauchi, Springer-Verlag Tokyo 1993, p.387~390.
26. Soon-Gul Lee, Yong Ki Park, and Jong Chul Park, "Recent Developments of Superconductive Electronics", Proc. of 18th Workshop

- on HTSC, Yongpyung, 1993. 8, p.26~31.
27. 허남희, 김인선, 박용기, 박종철, "Superconductivity in Mercury Based Oxide Compounds", Proc of 18th Workshop on HTSC, Yongpyung, 1993. 8., p.33~37.
 28. 김문석, 유성초, 이희복, 임우영, 이규원, 박용기, "초전도박막 YBCO의 자기전기저항 특성", Proc. 18th Workshop on HTSC, Yongpyung, 1993. 8., p.207~214.
 29. 권혁찬, 이용호, 김진목, 박종철, "A Nb SQUID gradiometer for magneto-cardiography in unshielded environments", Proc. of 18th Workshop on HTSC, Yongpyung, 1993. 8., p.310~314.
 30. 이순걸, 박근섭, 박용기, 박종철, "High Tc SQUIDs and Flux Transformer", Proc. of 18th Workshop on HTSC, Yongpyung, 1993. 8., p.315~320.
 31. Keunseop Park, Soon-Gul Lee, Yong Ho Lee, Yong Ki Park and Jong Chul Park, "Fabrication of Step Edge Junction dc SQUIDs using Single Layer YBCO Thin Film", to be published in Proc. of LT20, Aug. 1993.
 32. Soon-Gul Lee, Keunseop Park, Yong Ki Park, Yong Ho Lee, Hynk Chan Kwon, and Jong Chul Park, "YBa₂Cu₃O_{7-δ}/PrBa₂Cu₃O_{7-δ}/YBa₂Cu₃O_{7-δ} edge junction dc SQUIDs", to be published in Proc. of LT20, Aug. 1993.

4. 특 허

1. I.K. Jeong, Y.K. Park, D.Y. Kim and J.C. Park, "Process for Manufacturing a $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ Superconductor using Infiltration-Reaction Technique", U.S. Patent No.5,231,076(Jul. 27, 1993)
2. 정인권, 박용기, 김도연, 박종철, "용침반응법을 이용한 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ 초전도체의 제조방법", 대한민국 특허 제065674호.

제 2 장 박 막 제 작

제 1 절 Laser ablation에 의한 YBCO박막 제작

High power 레이저가 개발된 이래 발달되어온 PLD(Pulsed Laser Deposition) 공정은 수십 nsec의 펄스폭을 가진 레이저 빔이 렌즈에 의하여 집광되어 타겟 표면의 폭발에 의해 증성원자나 이온 따위로 증착되는 간단한 방법이지만 타겟의 조성이 그대로 기판에 옮겨질 수 있다는 점과 증착시간이 짧다는 장점으로 인하여 많은 연구가 진행되어지고 있다. 특히 $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ 박막의 증착이 성공적으로 이루어짐에 따라 이에 대한 연구가 집중되어지고 있으며^[1-5] 본 실험에서는 이때 최적의 증착조건을 찾고자 하였다.

일반적으로 증착시 박막특성에 영향을 미치는 인자는 여러가지가 있을 수 있지만 그 중 입사빔의 에너지,^[6] 산소압,^[7] 기판의 온도의 세가지가 지배적이며 다른 인자의 영향은 상대적으로 미미하거나 이들과 간단한 함수관계를 가지게 된다. 예를 들면 최적의 타겟-기판간의 거리^[6]는 산소압에 의해 결정되며 이는 단순히 plume내의 입자와 산소분자와의 산란효과에 영향을 준다.

본 연구에서는 이들 세 인자가 증착박막의 특성에 어떻게 영향을 미치는가에 대한 실험을 하였으며 이로부터 증착거동과 최적의 증착조건을 규명하였다.

1. 박막제작 및 증착조건

Fig. 2.1.1은 증착장치의 개요도이며, Table 2.1.1은 박막의 증착조건을 보여준다. Base pressure는 10^{-7} torr이었으며 사용된 레이저는 Luminics EX-700 excimer laser로써 active medium으로 KrF를 사용하여 248 nm의 자외선 영역 레이저발진 장치이다. 최대 출력이 600 mJ이고, 펄스폭은 14 nsec이었다. 균일한 레이저 에너지빔을 얻기 위하여 $11 \times 8 \text{ mm}^2$ 크기의 구멍을 가진 aperture를 사용하였으며 가능한한 타겟에의 입사각도를 최대로 하였다. 집광렌즈는 렌즈 방정식에 의해 aperture의 이미지가 타겟표면에 형성되도록 위치되어졌고 타겟이 가열되는 것을 막기 위하여 렌즈와 타겟이 step moter에 의해 이동됨으로써 타겟 표면의 집광영역을 바꾸어주면서 증착을 하였다. 기판 holder는 $32 \times 44 \text{ mm}^2$ 크기의 steel block이며 내부에 히터와 thermocouple이 장착되어 있다. 이 때문에 실제 기판 표면의 온도와 thermocouple이 읽는 온도에 차이가 생기게 되며 이는 약 30°C 정도이다. 본 실험에서 사용된 온도는 thermocouple에서 읽는 온도로서 이는 실제온도보다 30°C 가량 높은 값이다.

2. 박막의 특성분석

온도에 따른 저항변화는 일반적인 사단자 측정법으로 cryostat내에서 측정되며 전극은 silver paint를 사용하였다. Fig. 2.1.2(a)는 1.35 J/cm^2 와 2 J/cm^2 로 에너지 밀도를 고정시켜놓고 산소압의 변화에 따른 증착된 박막의 임계온도의 변화를 보여준다. 1.35 J/cm^2 의 경우 산소압이 증가함에 따라 박막의 특성이 좋아지다가 150 mtorr 이상으로 산소압이 증가하면 오히려

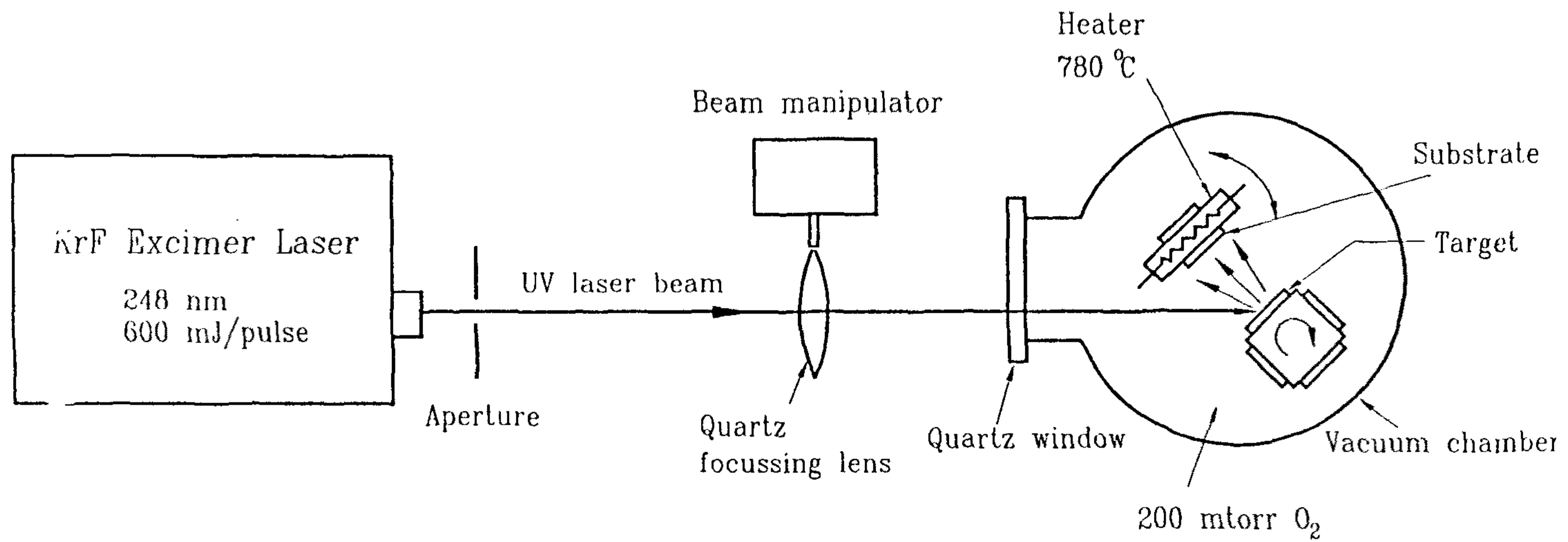


Fig. 2.1.1. Schematic diagram of laser ablation system.

Table 2.1.1. The deposition condition of laser ablation.

타	깃	$Y_1Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$
기	판	$SrTiO_3$
타	깃 - 기 판 거 리	42 mm
기	판 온 도	600~800 °C
산	소 압 력	10~400 mtorr
레이저	빔 에너지 밀도	1~3 J/cm ²
펄스	주 파 수	5 pulse/sec
타	깃에서 빔의 크기	1.5 × 3 mm ²
산	소 열 처 리	1기압산소, ~450 °C 1시간

특성이 나빠지는데 이는 산소원자와 ablated된 각 입자간의 interaction에 의한 산란이 일어나서 plume내의 입자들이 기판 표면에서 충분한 mobility를 가지지 못하게 되거나 원소마다 산란이 일어나는 정도가 달라져야 조성의 변화가 있었던 것으로 추측된다. 반면 2 J/cm²의 에너지 밀도를 가진 레이저를 사용하면 400 mtorr까지 산소압이 증가하여도 임계온도가 계속 증가함을 보여주는데 이는 에너지 밀도가 충분히 높아 ablated되는 입자가 높은 에너지를 가지게 되어 산란에 덜 민감하게 되거나 혹은 이로인해 에너지를 잃어도 초전도상을 만드는데 필요한 임계값 이상을 가지기 때문인것 같다. Fig. 2.1.2(b)는 증착온도 변화에 따른 박막 특성의 변화를 보여준다. 일반적으로 증착온도가 증가할 때 기판위에 증착될 입자들에게 충분한 mobility를 공급하여 줄 수 있으므로 $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ 초전도체의 결정

화에 용이해진다. 그림에서 볼 수 있듯이 산소압이 100 mtorr일때 730 °C에서 가장 좋은 박막이 제조되었고 이보다 높은 경우 특성이 열화가 급격하게 일어나게 되는데 이는 증착온도의 증가에 따라 $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ 상이 안정하기 위하여 필요한 산소압이 증가해야 한다는 보고와 일치하고 있다.^[8] 이는 그림내의 (1), (2), (3)조건에서 만든 시편의 XRD 분석을 보여주는 Fig. 2.1.3에서도 잘 나타나 있는데 일정한 산소압에서 증착온도가 임계값 이상으로 증가시 초전도상의 형성이 불안정하여짐을 보여준다. 한편 이상의 실험에서 레이저빔의 에너지 밀도와 산소압이 감소할수록 좋은 특성의 박막제작영역이 좁아짐을 알 수 있었으며 레이저 빔의 에너지밀도와 산소압 그리고 산소압과 증착온도는 서로 영향을 미치어 서로의 최적조건을 변화시킨다. Fig. 2.1.2(c)는 레이저빔 에너지밀도 변화에 따른 증착된 박막의 특성변화를 보여준다. 일반적으로 1.5~2 J/cm²에서 가장 폭이 넓어지며 전체 에너지에 걸쳐 특성이 좋아진다. 이처럼 앞의 (a), (b)와는 달리 레이저빔에서 최적조건에 따른 변화가 없는 것은 온도와 레이저빔 에너지의 두 변수가 증착시의 영향이 서로 독립적이기 때문이다.

증착된 박막의 두께는 증착속도와 증착시간에 의해 결정되므로 증착시간을 일정하게 한다면 박막의 두께로 증착속도를 알 수 있다. 박막의 두께 측정은 인산을 이용하여 박막의 일부를 녹여낸 후 이때 만들어지는 박막의 edge부분에서의 간섭무늬를 이용하여 광학현미경으로 측정하였다. Fig. 2.1.4은 각 변수에 의한 박막 증착속도를 보여준다. 박막두께에 가장 큰 영향을 미치는 변수는 예상할 수 있는 바와 같이 레이저빔의 에너지밀도이다. 이는 0.5 J/cm²에서 2 J/cm²까지 4배의 에너지밀도 증가에 의해 약 10배의 증착속도 증가를 보여주었다. 또한 온도는 증착속도에 별 영향을 미치지

못하는 반면 산소압의 증가는 오히려 증착속도의 약간의 증가를 보여준다. 이는 산소압이 증가할수록 plume내의 입자와 산소분자와의 산란이 증가해서 증착속도를 감소시킬 것이라는 예상과는 다른 결과이다. 이런 현상의 이유는 자세히 알 수 없었으며 보다 낮은 에너지밀도인 1.35 J/cm^2 에서 산소압증가에 따른 박막두께 조사결과도 같은 거동을 보였다.

Fig. 2.1.5와 Fig. 2.1.6은 최적의 조건에서 SrTiO_3 기판위에 증착된 $\text{Y}_1\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 박막의 온도 저항 곡선과 77 K에서 측정된 임계전류밀도 측정곡선이며 Fig. 2.1.7과 Fig. 2.1.8은 SrTiO_3 와 MgO 기판위에 증착된 박막의 XRD (XRay Diffractometer) pattern이다. 이상에서 볼 수 있듯이 앞선 실험에서 선택된 최적의 조건에서 SrTiO_3 기판위에 증착된 박막의 특성은 매우 우수하였으며 SrTiO_3 기판 뿐만아니라 MgO 기판에서 성장된 $\text{Y}_1\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 박막 또한 좋은 결정성을 가짐을 알 수 있었다.

3. 박막의 표면 형상

표면형상을 관찰하기 위하여 SEM(Scanning Electron Microscopy)를 사용하였고 조성분석을 위하여 EDS(Energy Dispersive Xray spectroscopy)를 사용하였다. Fig. 2.1.9는 소결된 타겟의 표면형상과 laser ablation 실험후 레이저빔에 의하여 용융되어 기둥모양의 grain이 남아 있는 것을 보여준다. Fig. 2.1.10과 Fig. 2.1.11은 SrTiO_3 기판위에 증착된 $\text{Y}_1\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 박막과 MgO 기판위에서 성장한 $\text{Y}_1\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 박막의 SEM사진이다. 모든 박막 표면에서 $1 \mu\text{m}$ 정도의 크기를 가진 구형모양의 droplet이 보이며 증착온도가 증가할수록 droplet의 표면이 거칠어진다. Droplet의 크기나 수는 산소

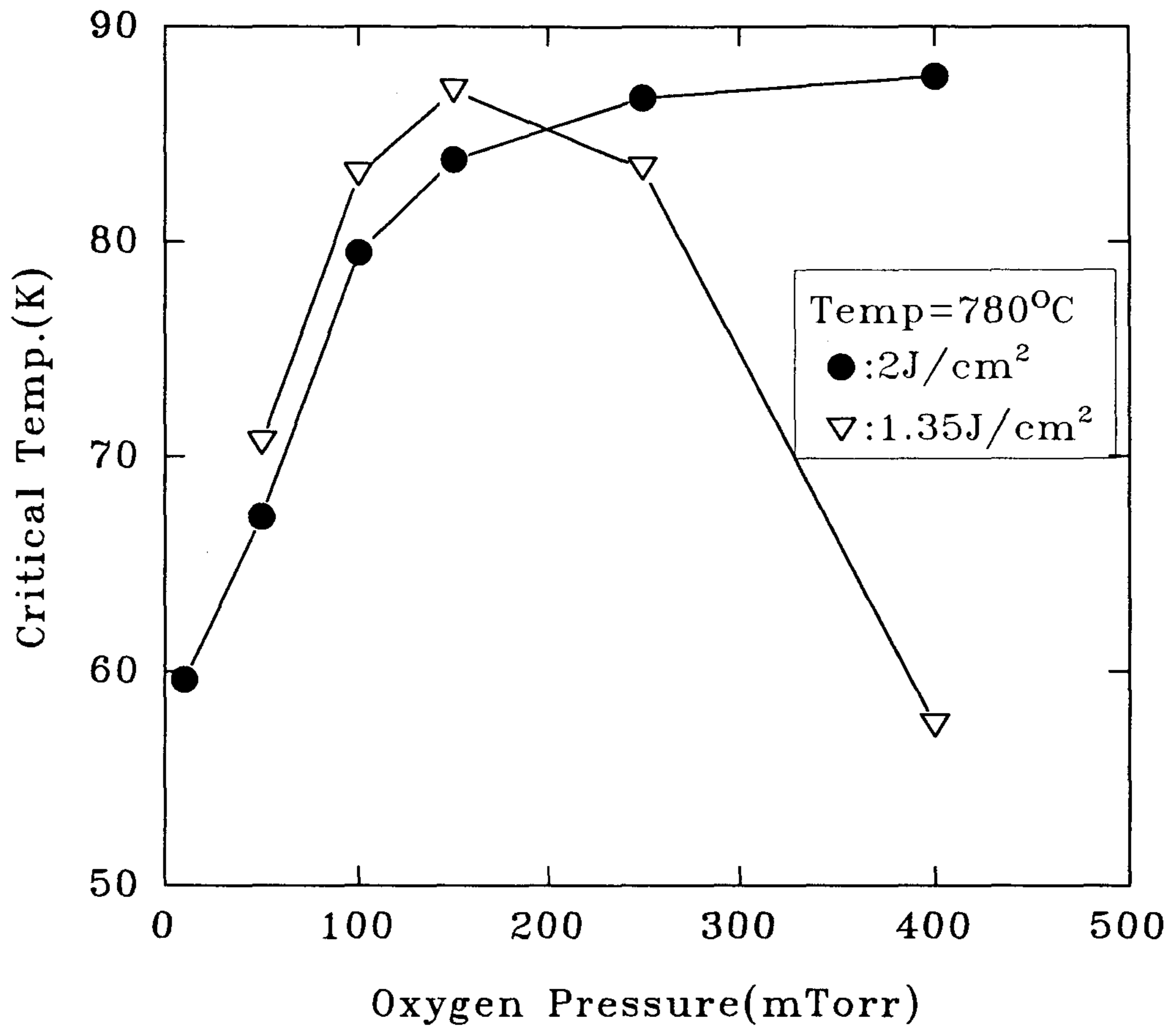


Fig. 2.1.2(a). The effect of oxygen pressure on critical temperature ($T_c(o)$) when incident beam energy densities are 1.35 J/cm² and 2 J/cm².

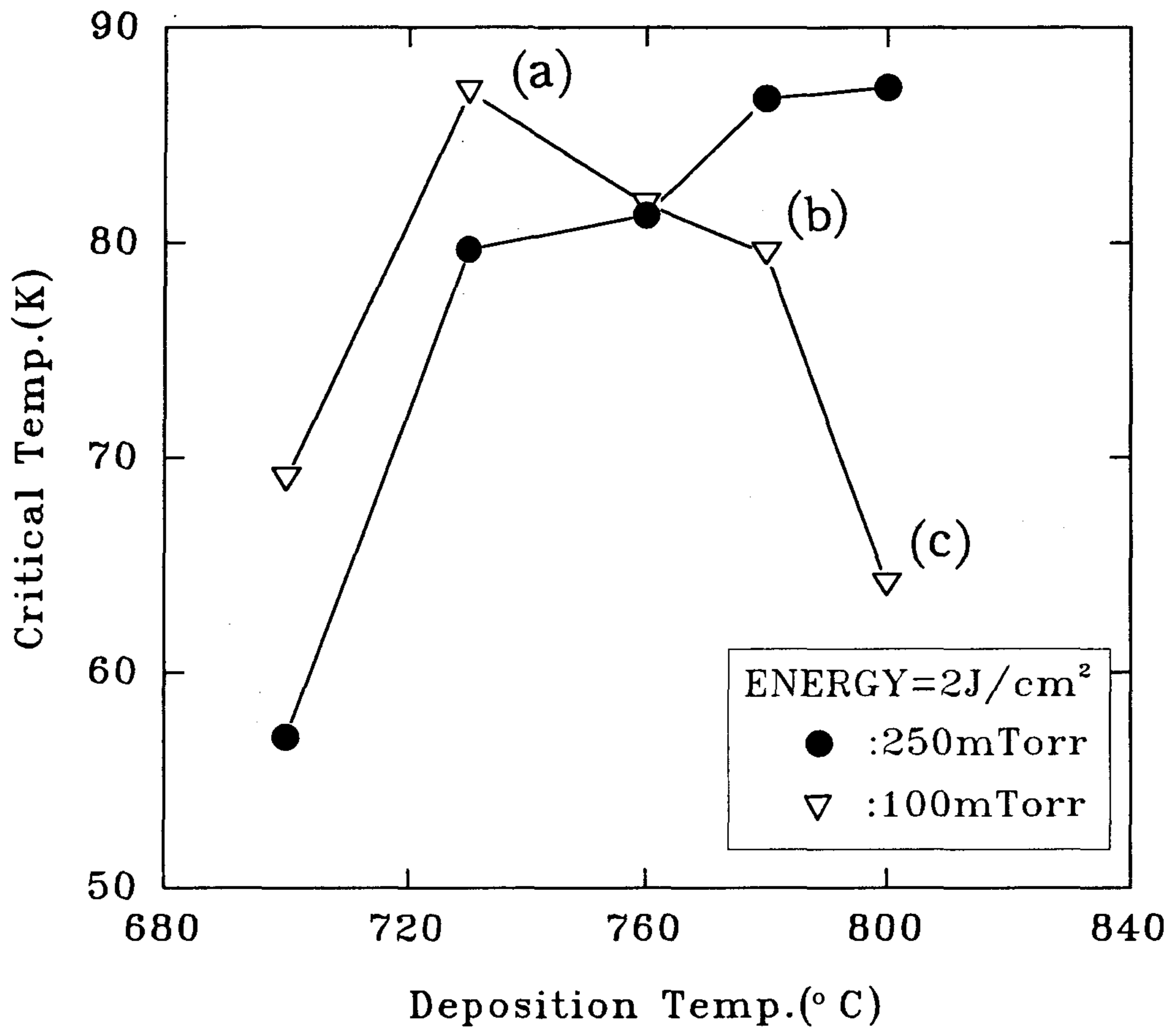


Fig. 2.1.2(b). The effect of deposition temperature on critical temperature ($T_c(o)$) when incident beam energy densities are 1.35 J/cm² and 2 J/cm².

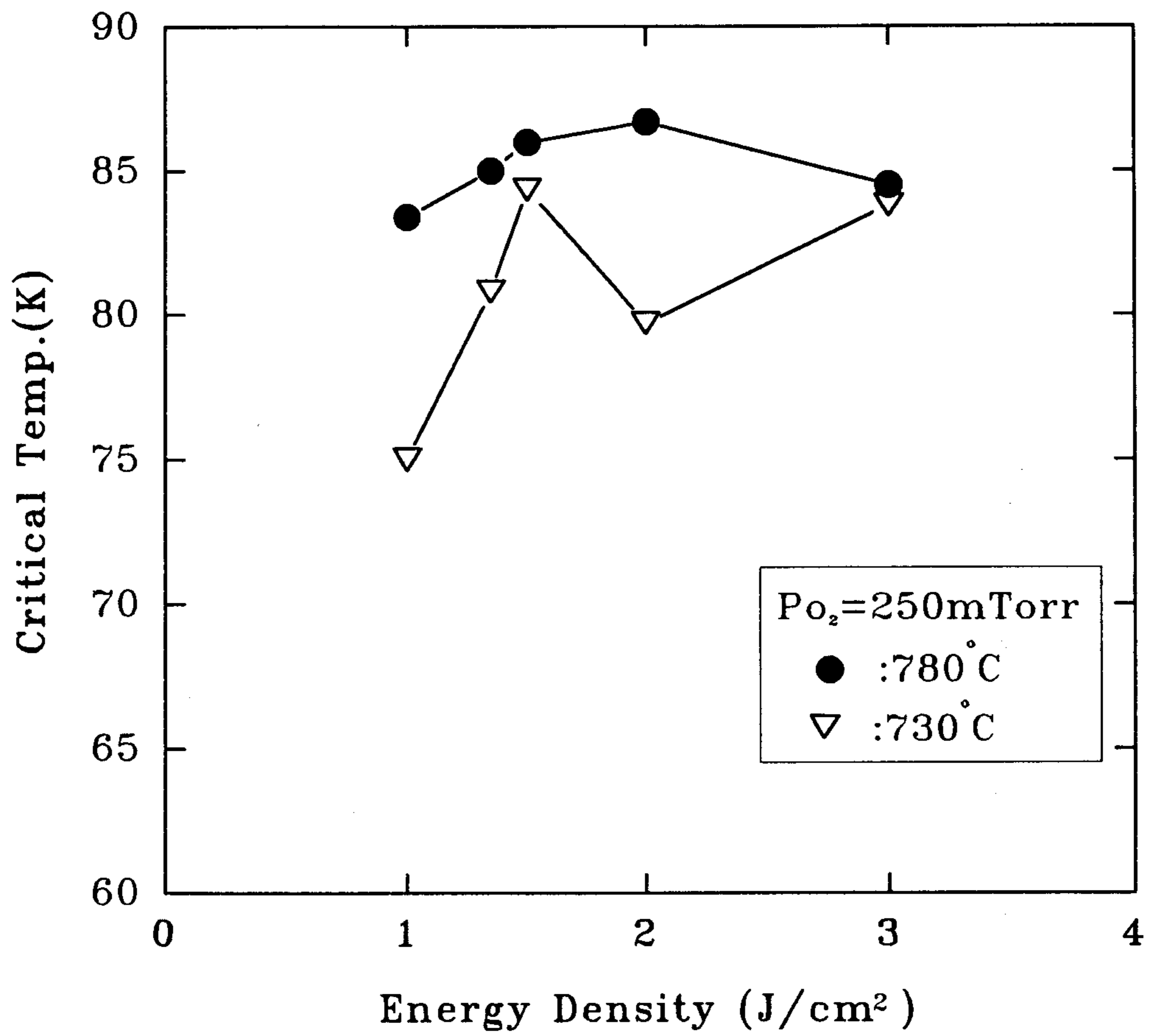


Fig. 2.1.2(c). The effect of incident beam energy density on critical temperature ($T_c(o)$) when deposition temperatures are 730 °C and 780 °C.

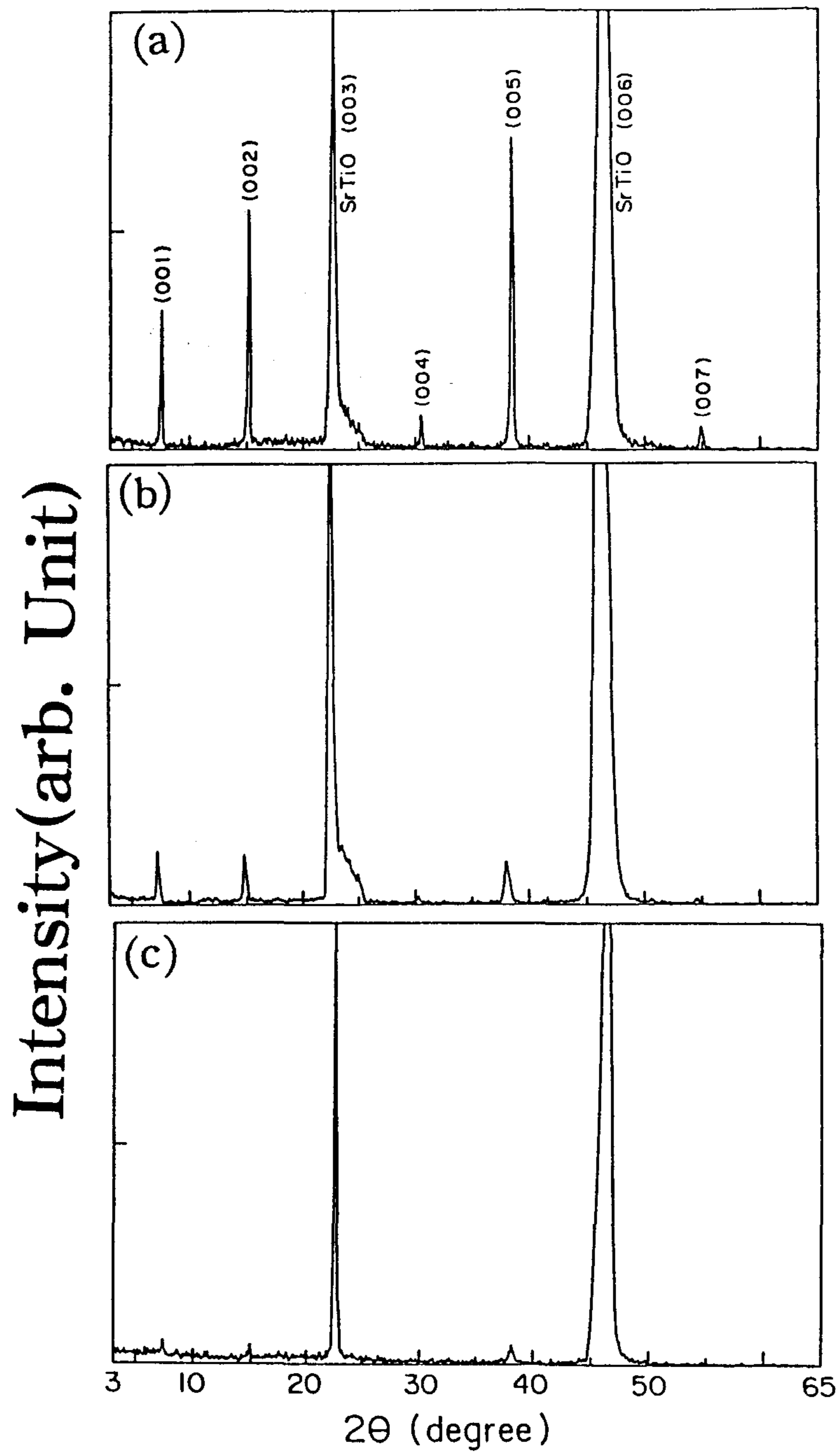


Fig. 2.1.3. XRD pattern of films deposited at various temperature when oxygen pressure and incident beam energy densities are 100 mtorr and 2 J/cm². Deposition temperatures are (a) 730 °C (b) 760°C (c) 820 °C.

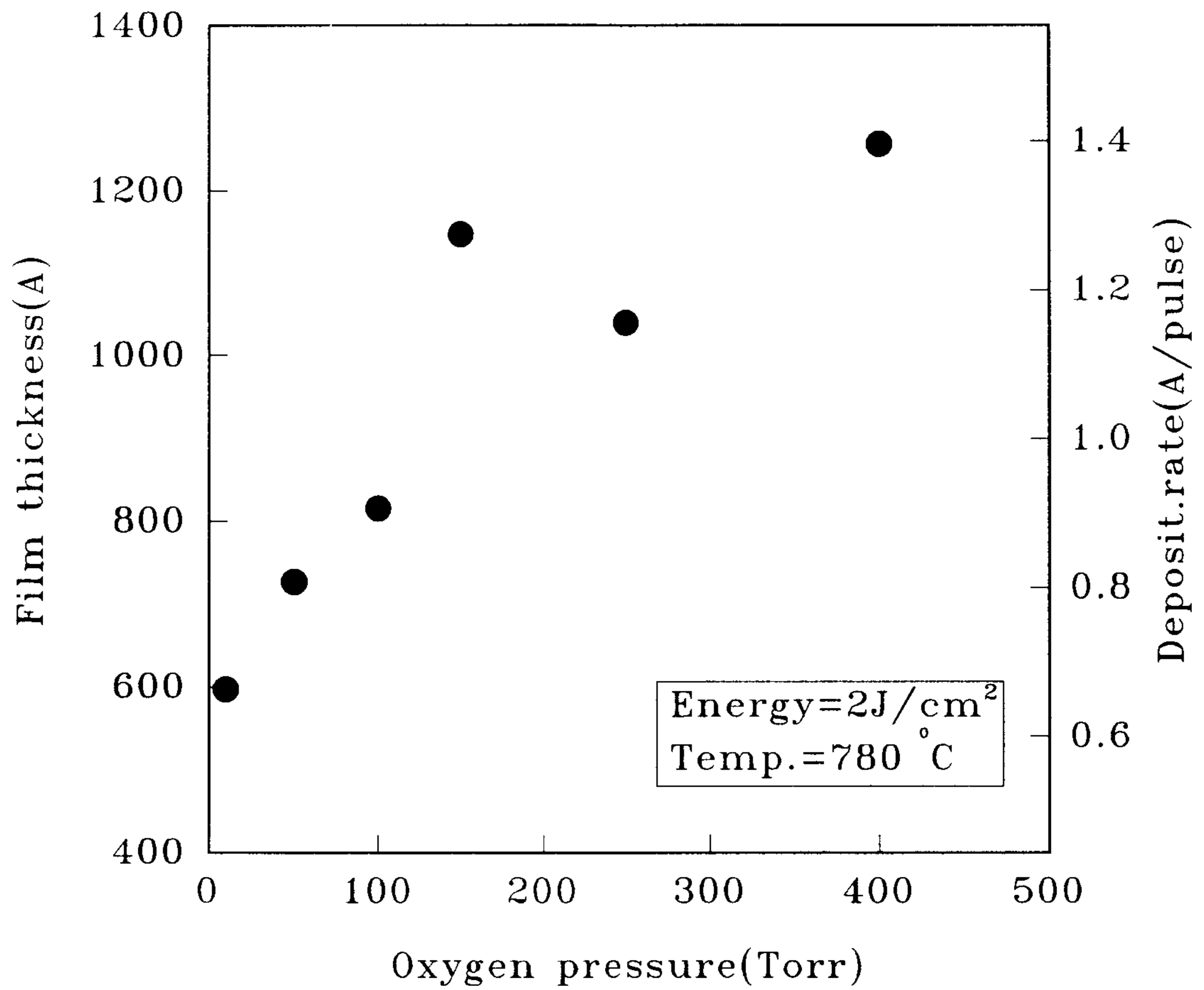


Fig. 2.1.4. Oxygen pressure vs. thickness of films deposited by laser ablation.

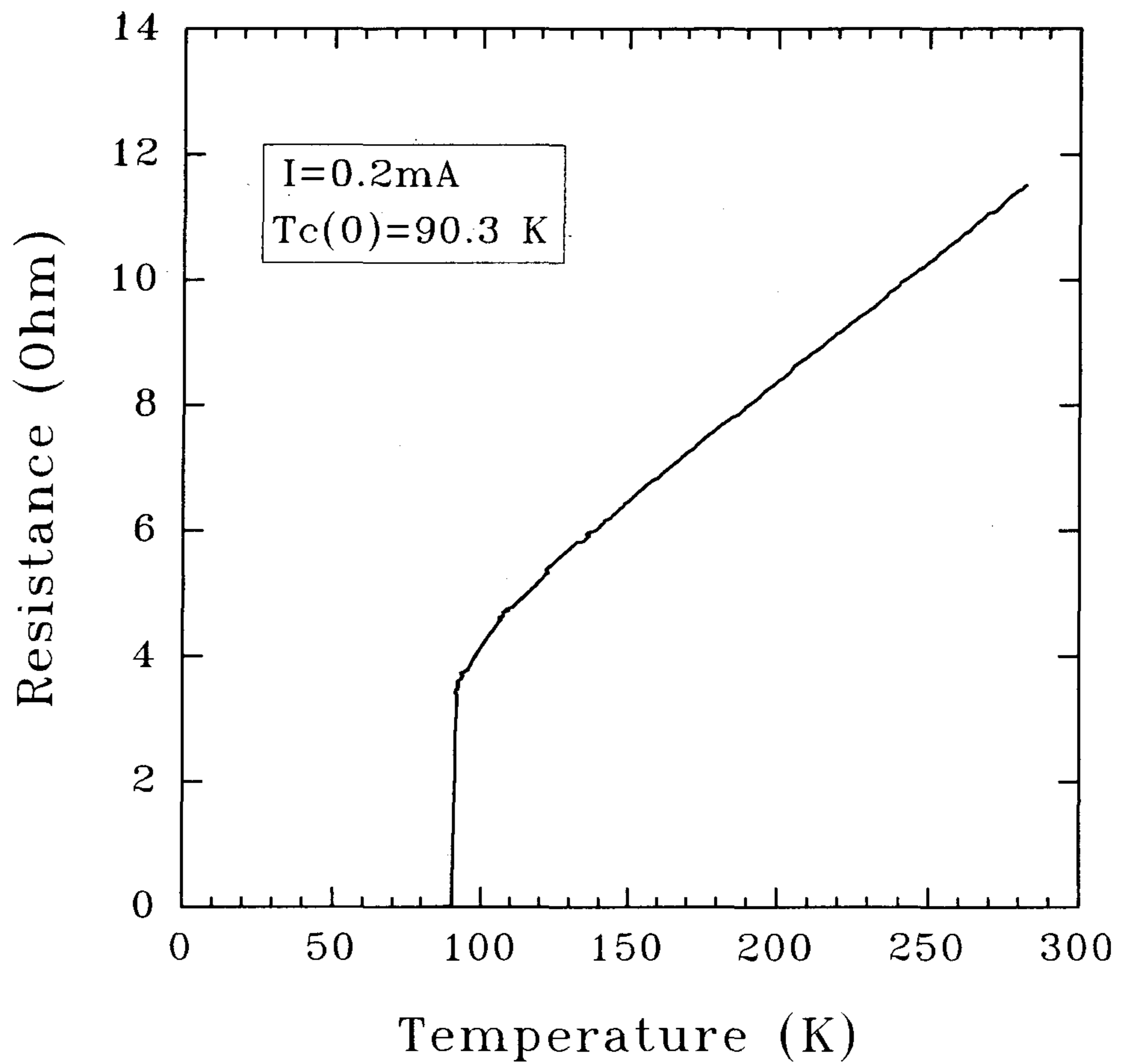


Fig. 2.1.5. Resistance vs. temperature curve of $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ thin films deposited on $SrTiO_3(100)$ substrate by laser ablation.

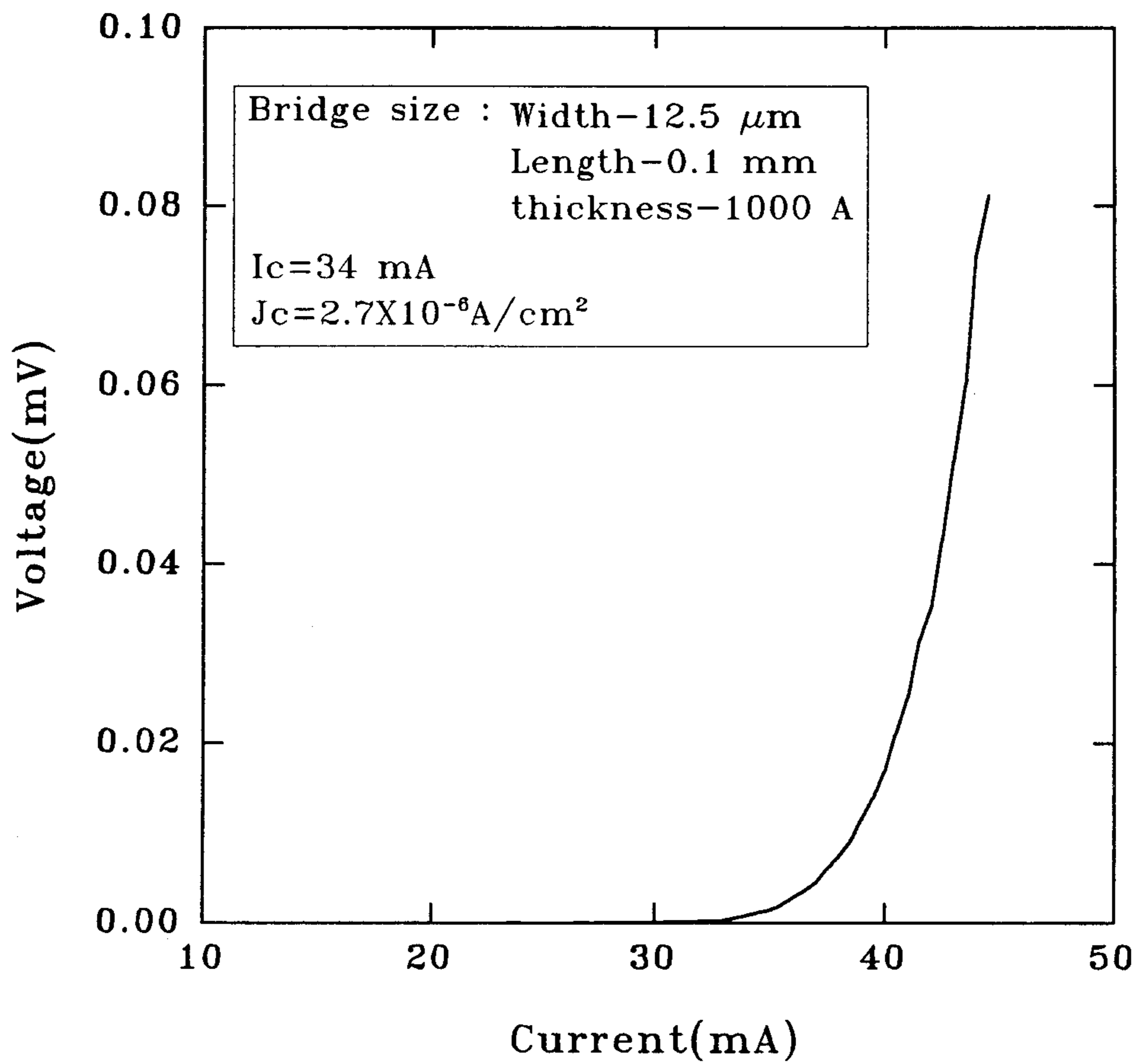


Fig. 2.1.6. I-V curve of thin films deposited on SrTiO₃(100) substrate by laser ablation

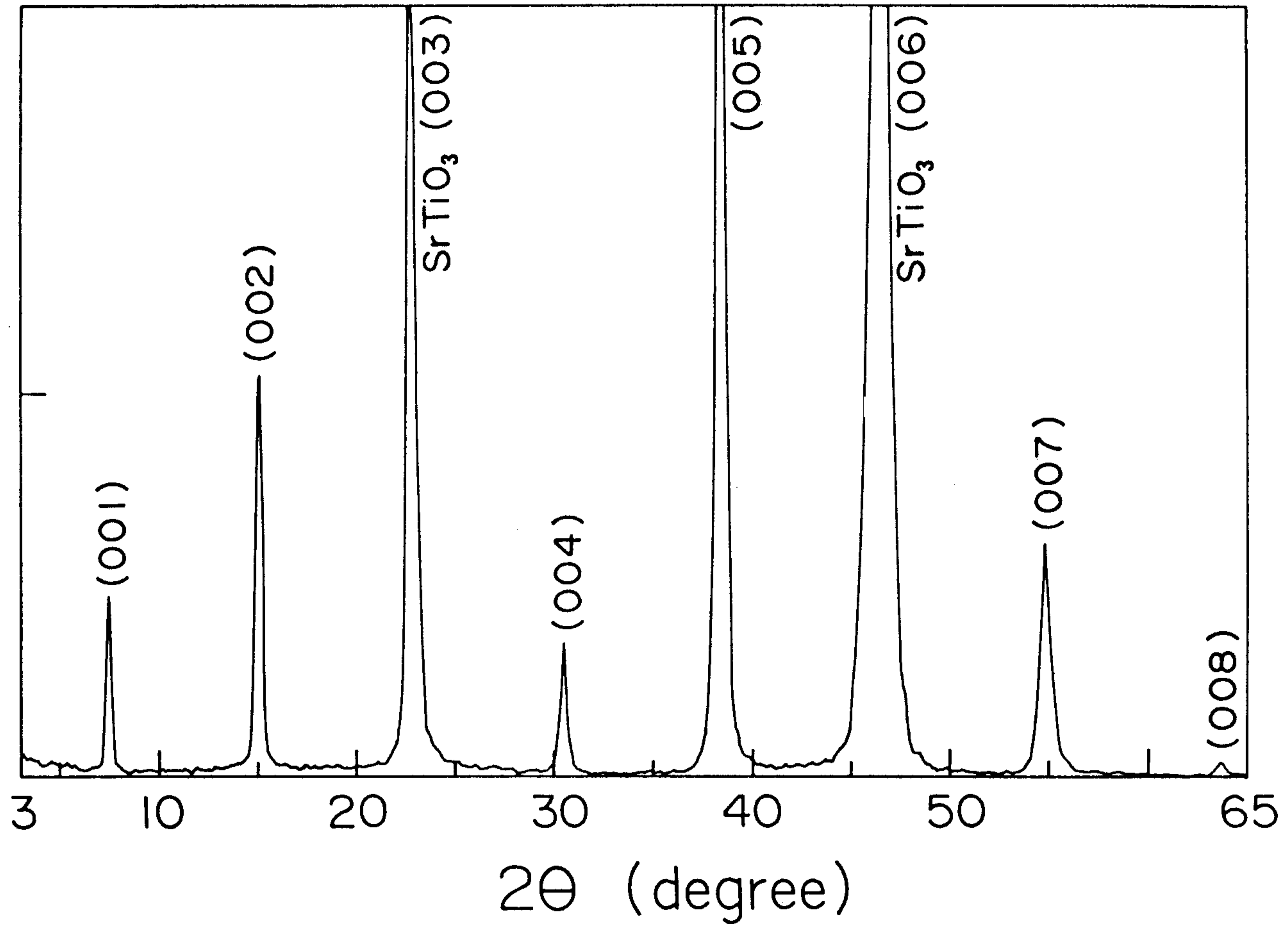


Fig. 2.1.7. XRD pattern of $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ films deposited on $SrTiO_3$ by laser ablation.

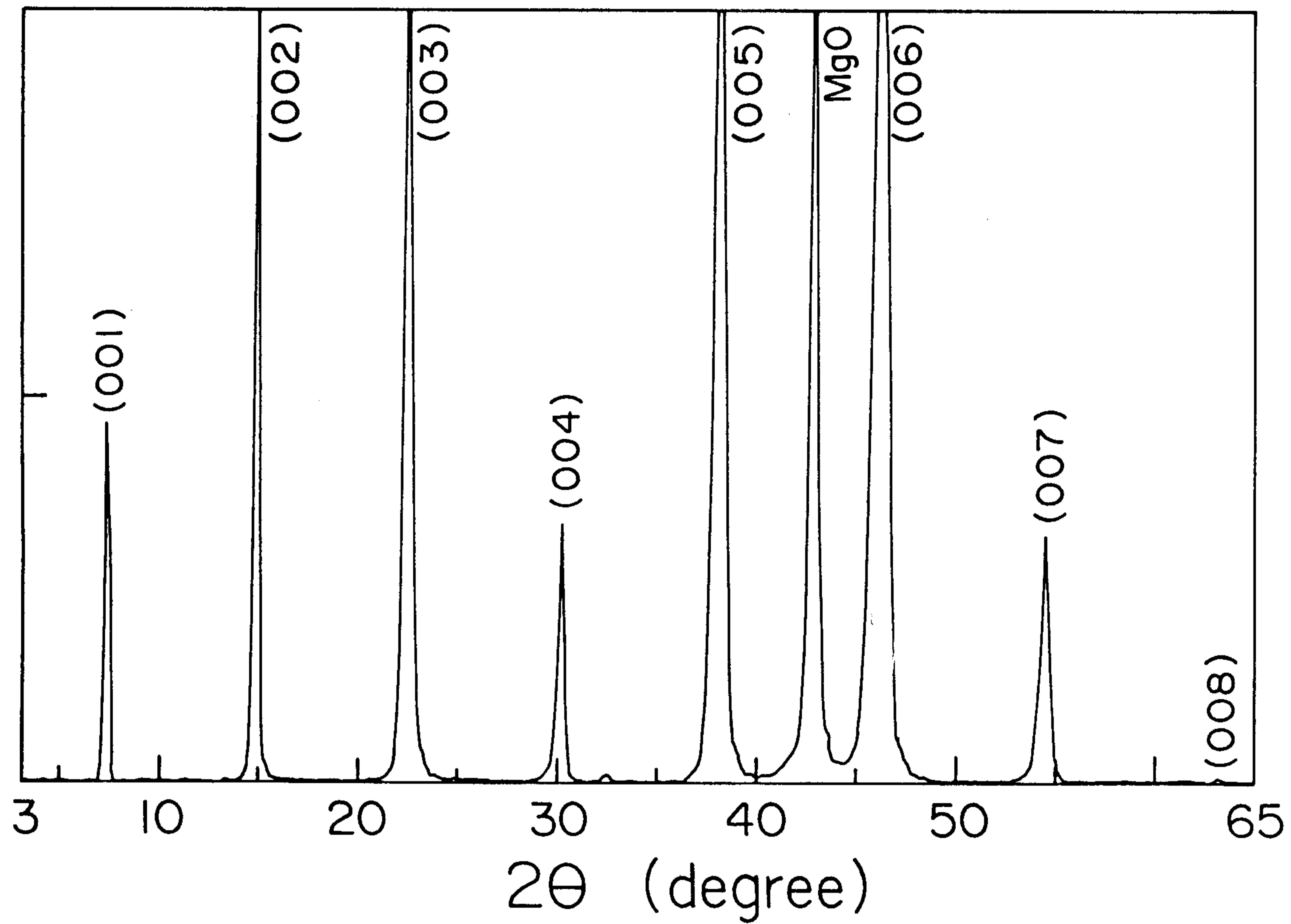
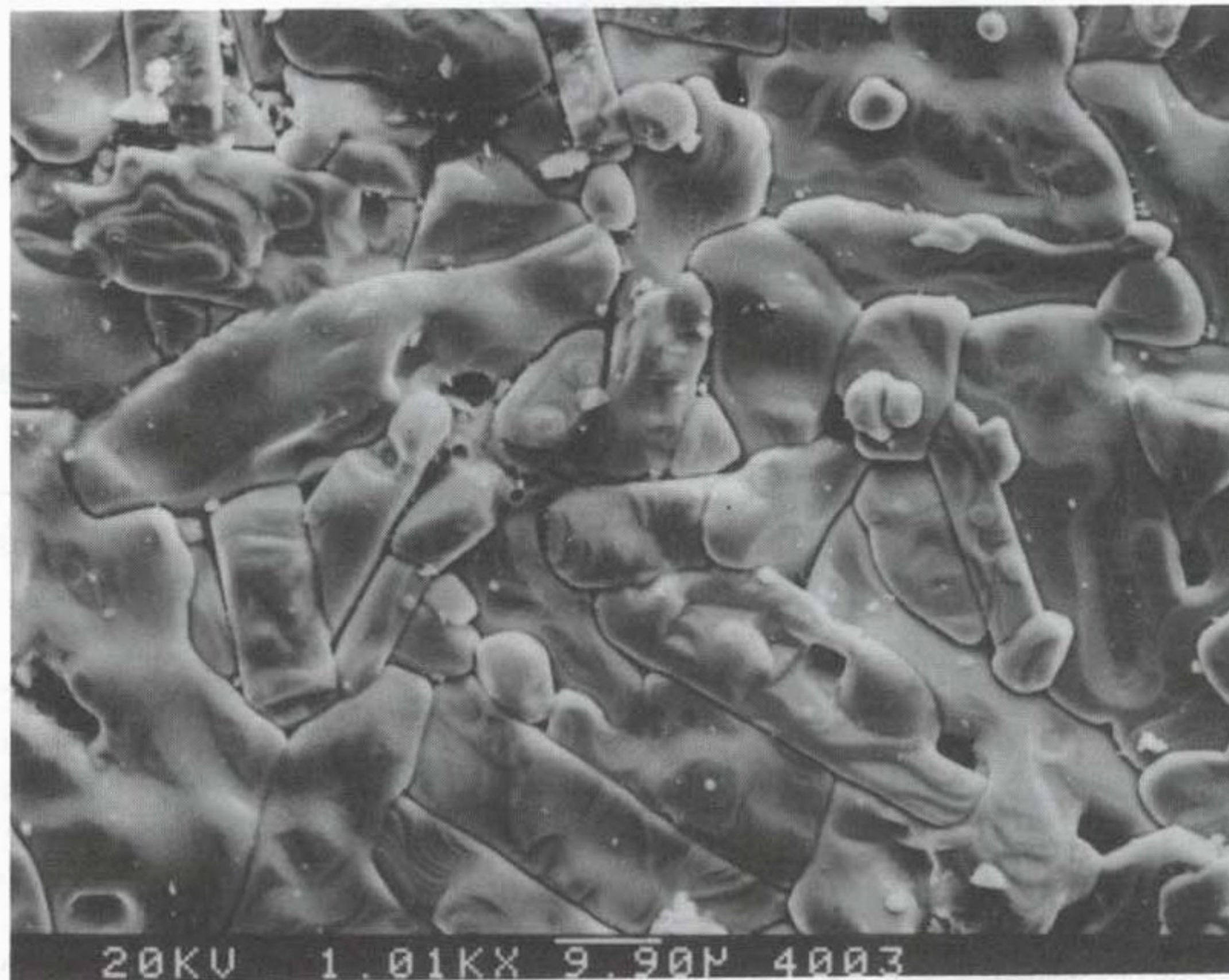
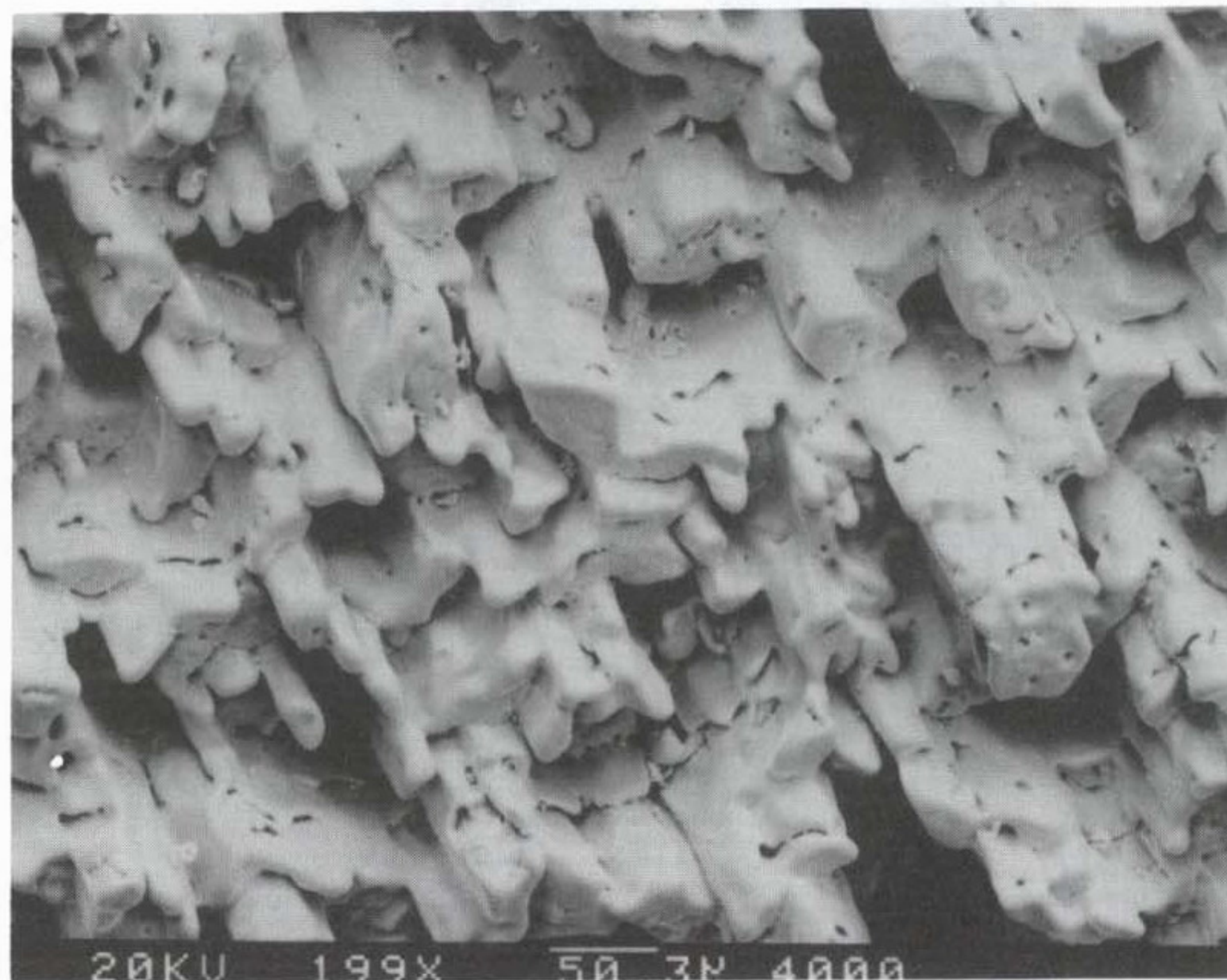


Fig. 2.1.8. XRD pattern of $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ films deposited on MgO by laser ablation.

압과 증착온도에 따라 큰 변화는 보이지 않았으며 레이저빔 에너지밀도에 선형적 관계를 보임을 관찰하였다. Fig. 2.1.12는 이를 보여주는 그림이다. 초전도체의 다층박막제작이나 소자제작시 이러한 droplet은 마이크로 패턴의 제한 요인으로 기여하므로 이를 줄이는 것이 관건이 된다. 즉 소자로의 응용을 위해서는 가능한한 레이저빔의 에너지를 줄여야함을 알 수 있다. 반면 대부분의 박막 표면은 매끄럽고 droplet을 제외하면 아무런 형상도 관찰할 수 없었으나 저온 증착 시편의 경우 침상형의 grain이나 표면에서 성장한 것 같은 작은 particle 등을 관찰할 수 있었다(Fig. 2.1.13(b), (c)). 이러한 새로운 particle은 약 $0.1 \sim 1.14 \mu\text{m}$ 정도의 크기를 가지며 plume에서 날아온 입자에 비해 작고 시편전체에 걸쳐 균일한 분포를 보이며 주로 기판 표면에 존재하는 결합주위에 몰려 있다(Fig. 2.1.13(c)에서 보이듯이 기판표면의 기존의 scratch를 따라 주로 형성됨을 보여준다). 이러한 particle들은 핵생성이 용이하기 때문에 결합주위에서 생성되어 성장한 것으로서 증착시간중 표면에서 자란 outgrowth particle이다. EDS분석에 의하여 droplet의 조성은 박막의 조성과 같음을 알 수 있었고 outgrowth particle의 조성은 Cu가 많은 상임을 알 수 있었다.



(a)



(b)

Fig. 2.1.9. The surface morphology of target by SEM (a) before laser ablation (b) after laser ablation. There are columnar grains grown toward incident laser beam.

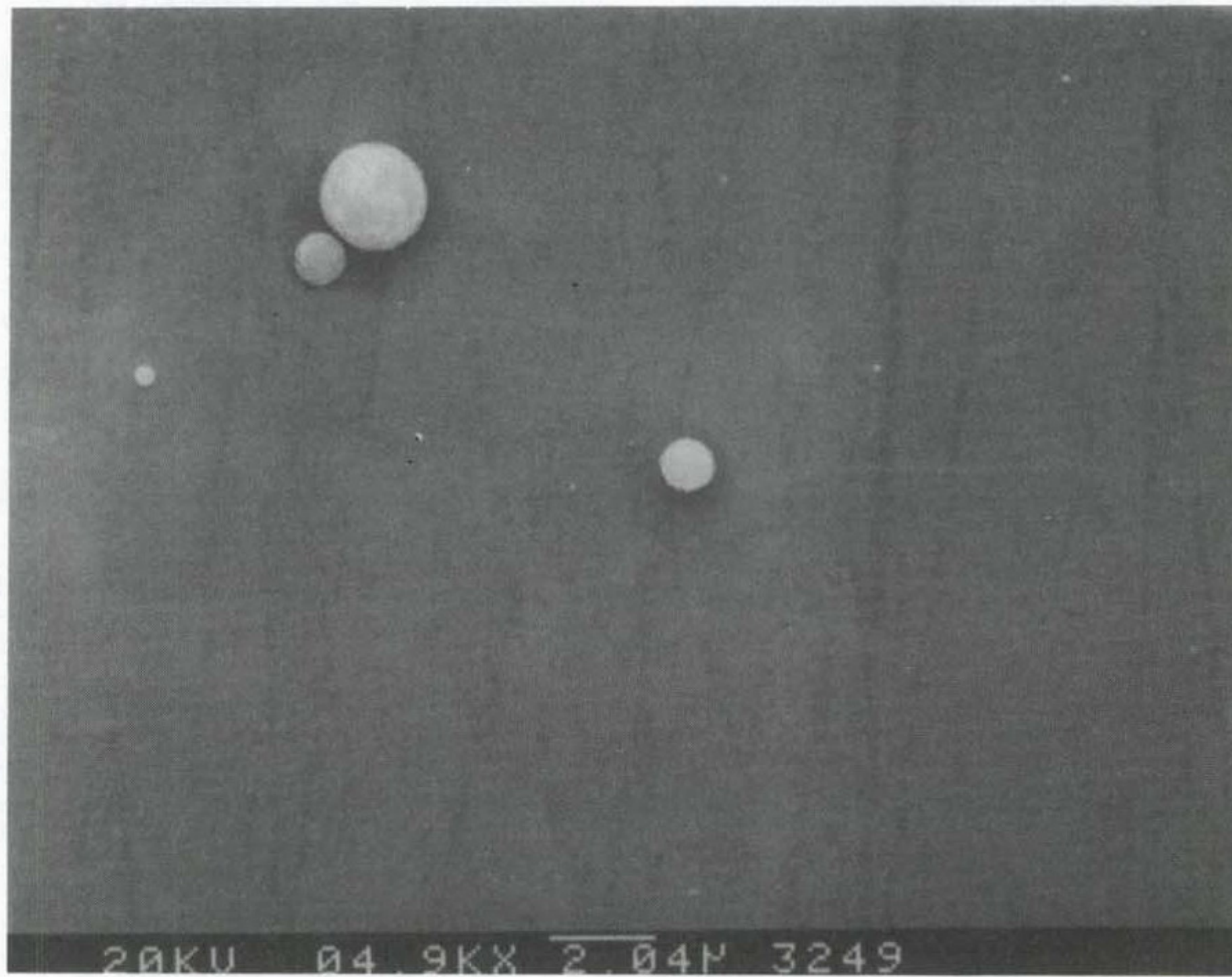


Fig. 2.1.10. The surface morphology of film deposited on SrTiO₃ substrate at 780 °C, 1.6 J/cm² and 250 mtorr.

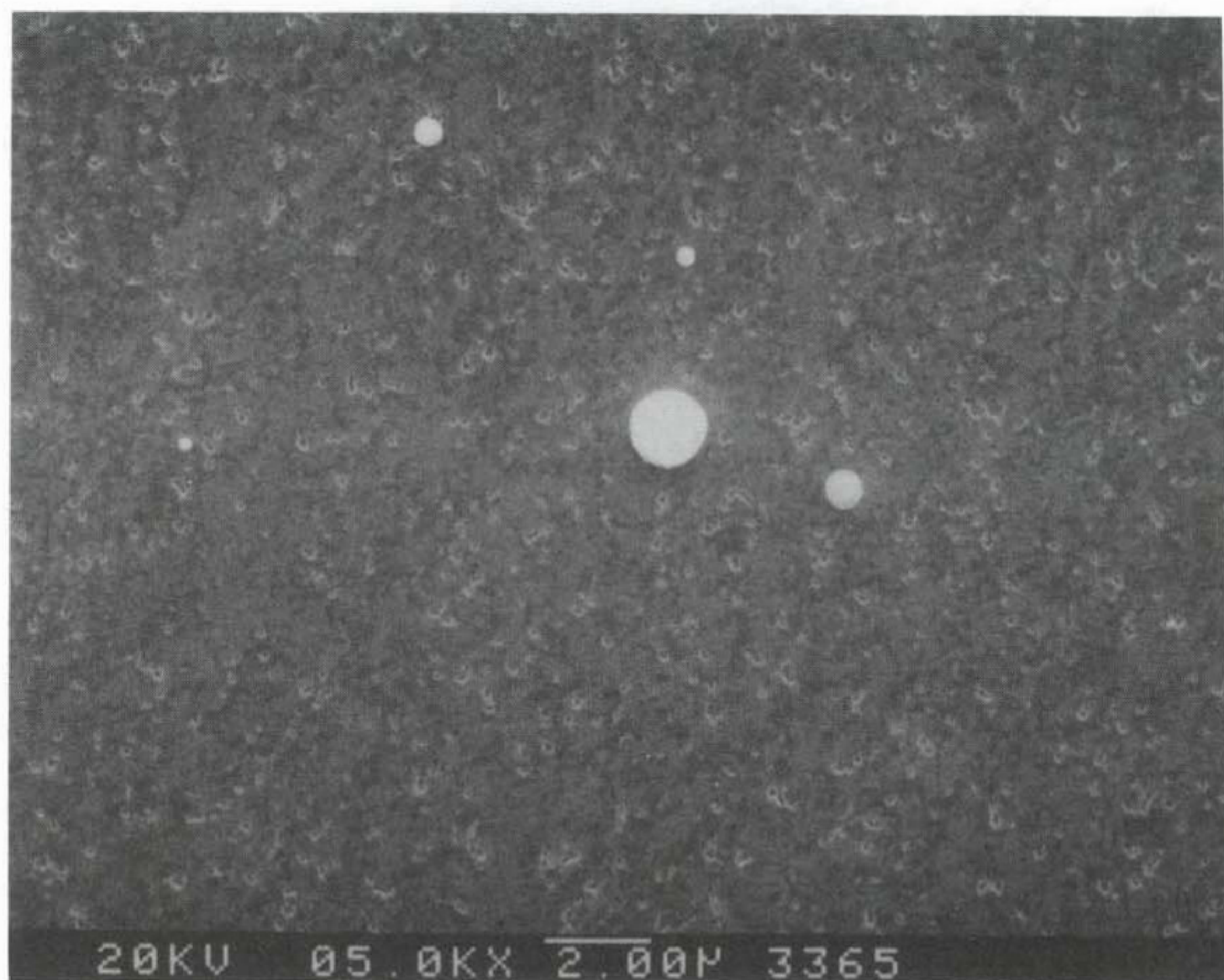


Fig. 2.1.11. The surface morphology of film deposited on MgO substrate at 780 °C, 1.6 J/cm² and 250 mtorr.

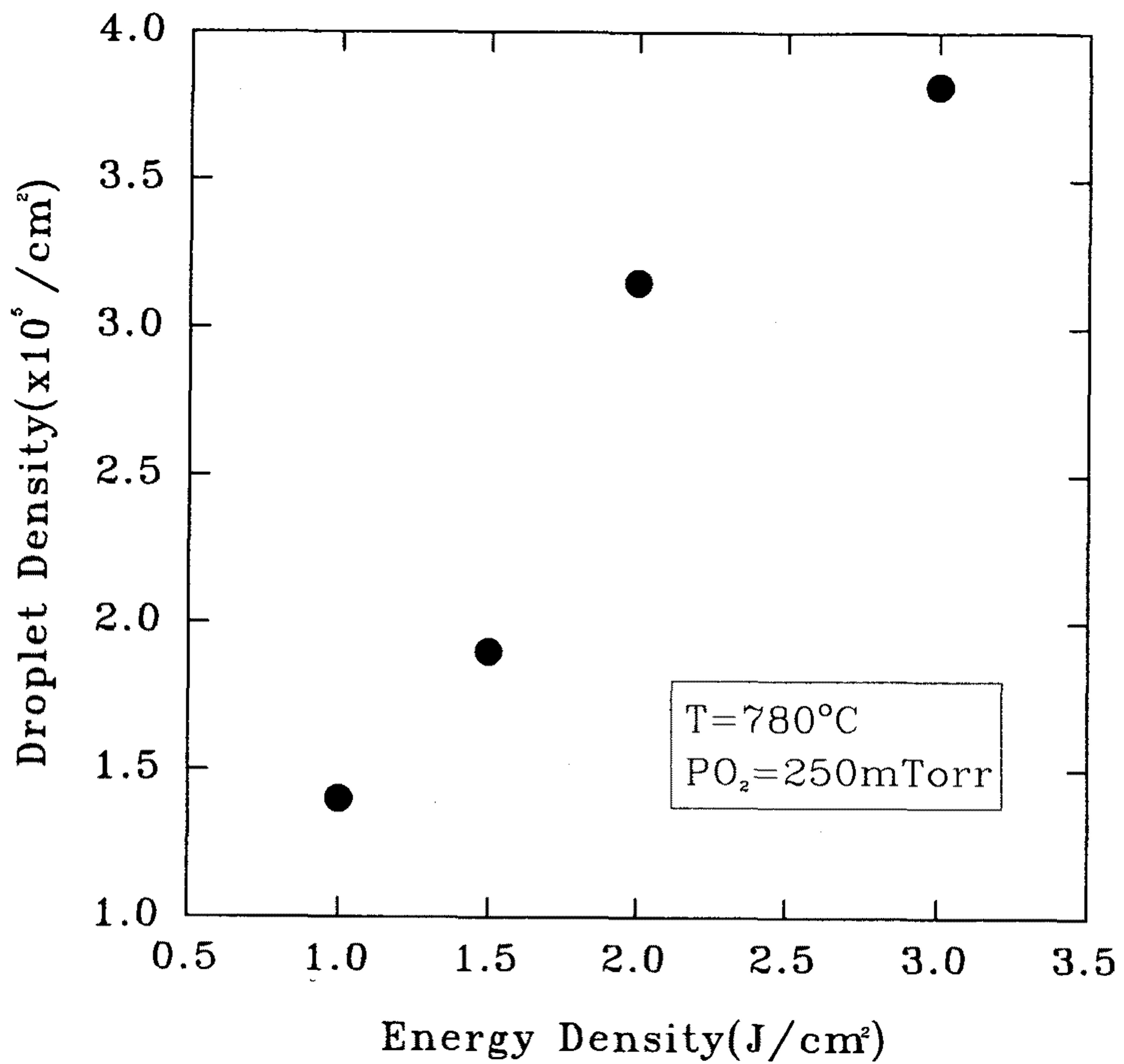
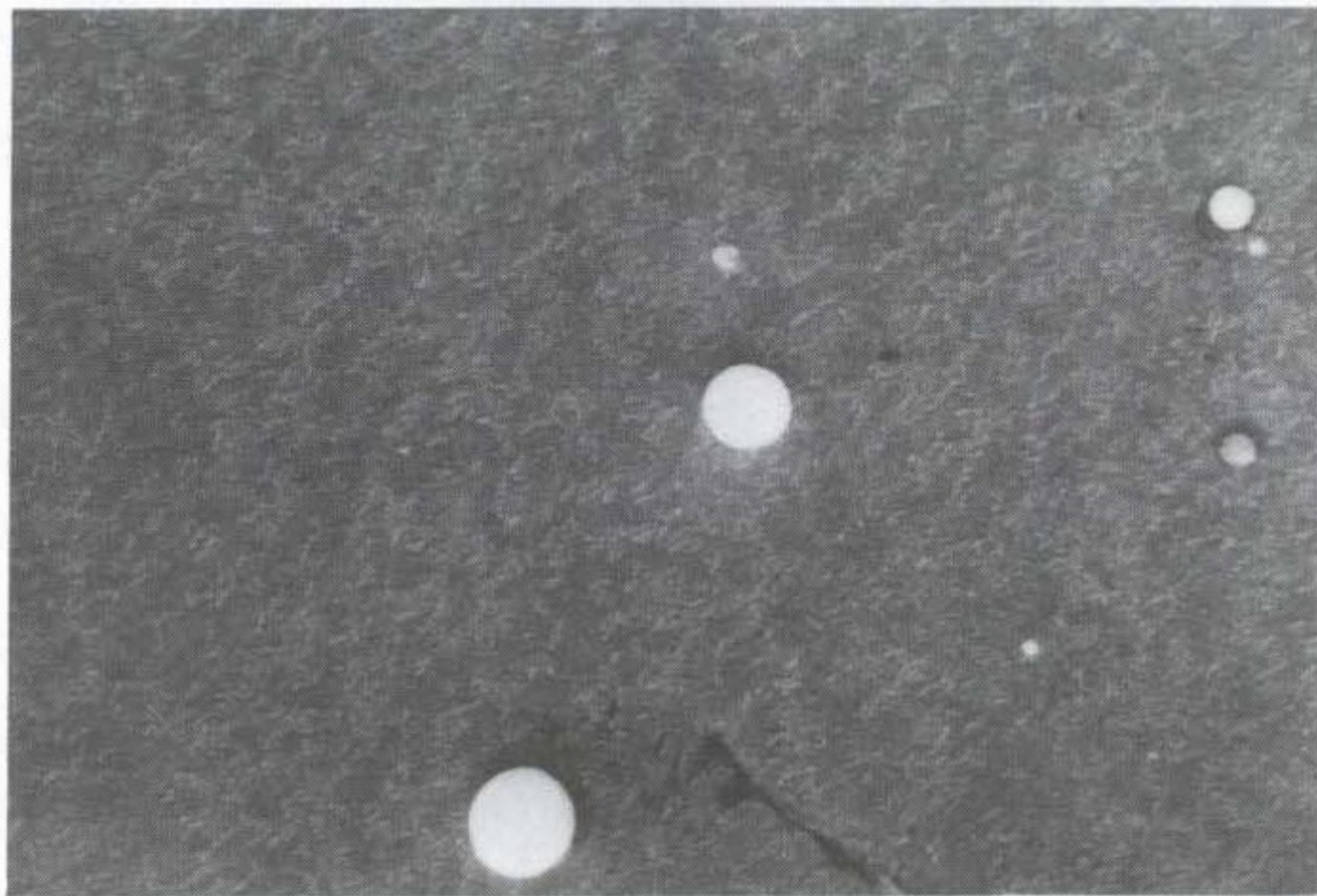


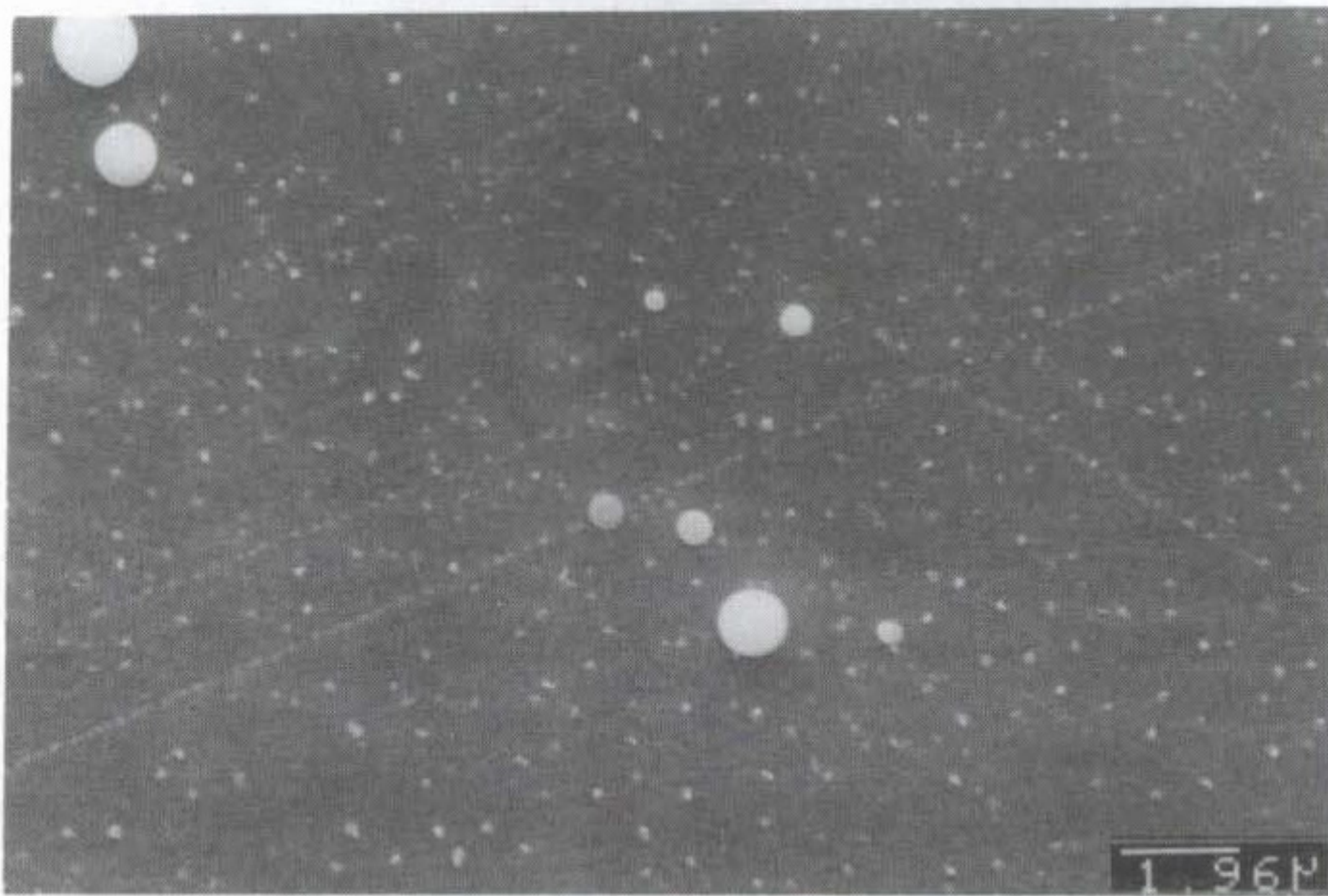
Fig. 2.1.12. Droplet density vs. incident beam energy density of films deposited at 780 °C and 250 mtorr.



(a)



(b)



(c)

Fig. 2.1.13. The surface morphology of films deposited at (a) 820°C, 250 mtorr and 2 J/cm² (b) 700°C, 250 mtorr and 2 J/cm² (c) 600°C, 250 mtorr and 2 J/cm².

제 2 절 Laser ablation에 의한 다층박막 제작

고온초전도 dc SQUID 제작에 있어서의 ramp edge 접합, SNS step edge 접합 및 multi-turn input coil과 관련한 2층 이상의 초전도체, 절연체, 그리고 금속성 산화물 다층박 구조를 제작하여 그 특성을 여러가지 측면에서 조사하였다. 다층막 구조 제작에 사용한 물질은, 초전도체로는 YBCO, 절연체로는 $\text{Pr}_1\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$, SrTiO_3 등을 사용하였고, 산화물 도체로는 CaRuO_3 를 사용하였다. 다층막 분석은 X-선 회절에 의한 박막의 결정배향 조사, 온도-저항곡선 측정에 의한 임계특성 조사, secondary ion mass spectroscopy (SIMS)에 의한 서로 다른 박막간 원자들의 상호확산 상태 등을 조사하였다.

다층박막 구조는 모두 YBCO 박막과 같은 조건에서 제작하였는데, 부분적으로 물질에 따라 최적조건에 맞추어 조금씩 제작 변수를 조절했다. 기판은 SrTiO_3 를 사용하였으며, 증착시의 기판온도는 780°C , 산소압력은 250 mtorr, 펄스당 레이저 에너지는 약 2 J/cm^2 , 초당 펄스회수는 5회를 사용하였다. $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ 의 경우 확산방지 및 매끈한 표면상태를 유지하기 위해 기판온도를 $760\sim 770^\circ\text{C}$ 로 유지하였고, CaRuO_3 는 레이저 에너지를 약 5% 정도 낮추어 제작하였다. 증착이 끝난 후에는 YBCO와 마찬가지로 약 1/2 기압 산소압력에서 500°C 까지 냉각시킨 다음 1기압 산소를 채워 1시간 열처리한 후 냉각시켰다.

Fig. 2.2.1에서는 $\text{SrTiO}_3(100)$ 기판위에 제작된 YBCO/ SrTiO_3 /YBCO 삼층막 구조의 X-선 회절 분석 결과를 보이고 있다. 삼층막 구조를 이루고 있는 각 박막의 두께는 $2,000\text{ \AA}$ 이다. 그림에 나타난 바와 같이 YBCO와

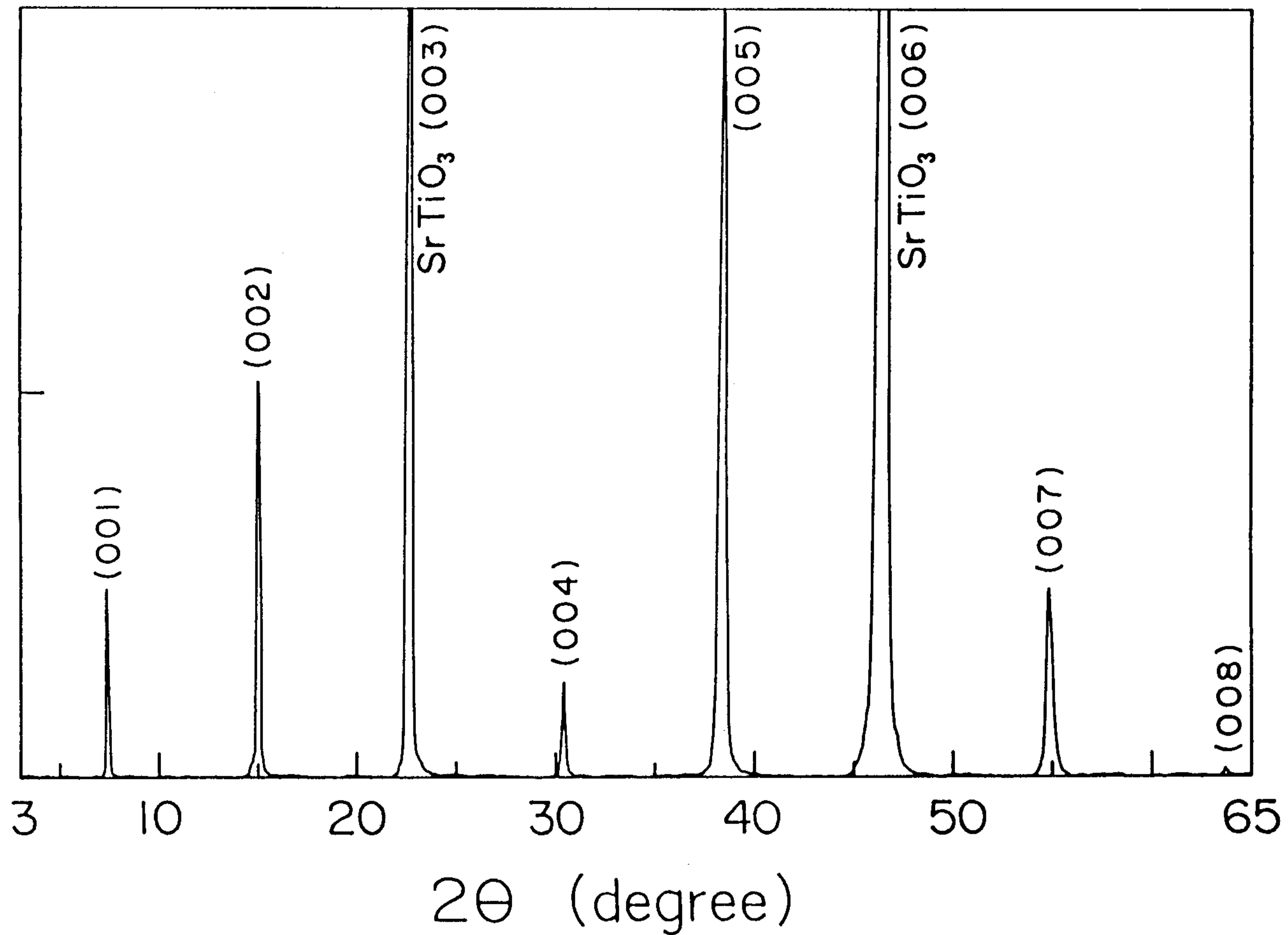


Fig. 2.2.1. X-ray diffraction pattern of a YBCO/SrTiO₃/YBCO trilayer fabricated on SrTiO₃ substrate. Each layer is 2,000 Å thick.

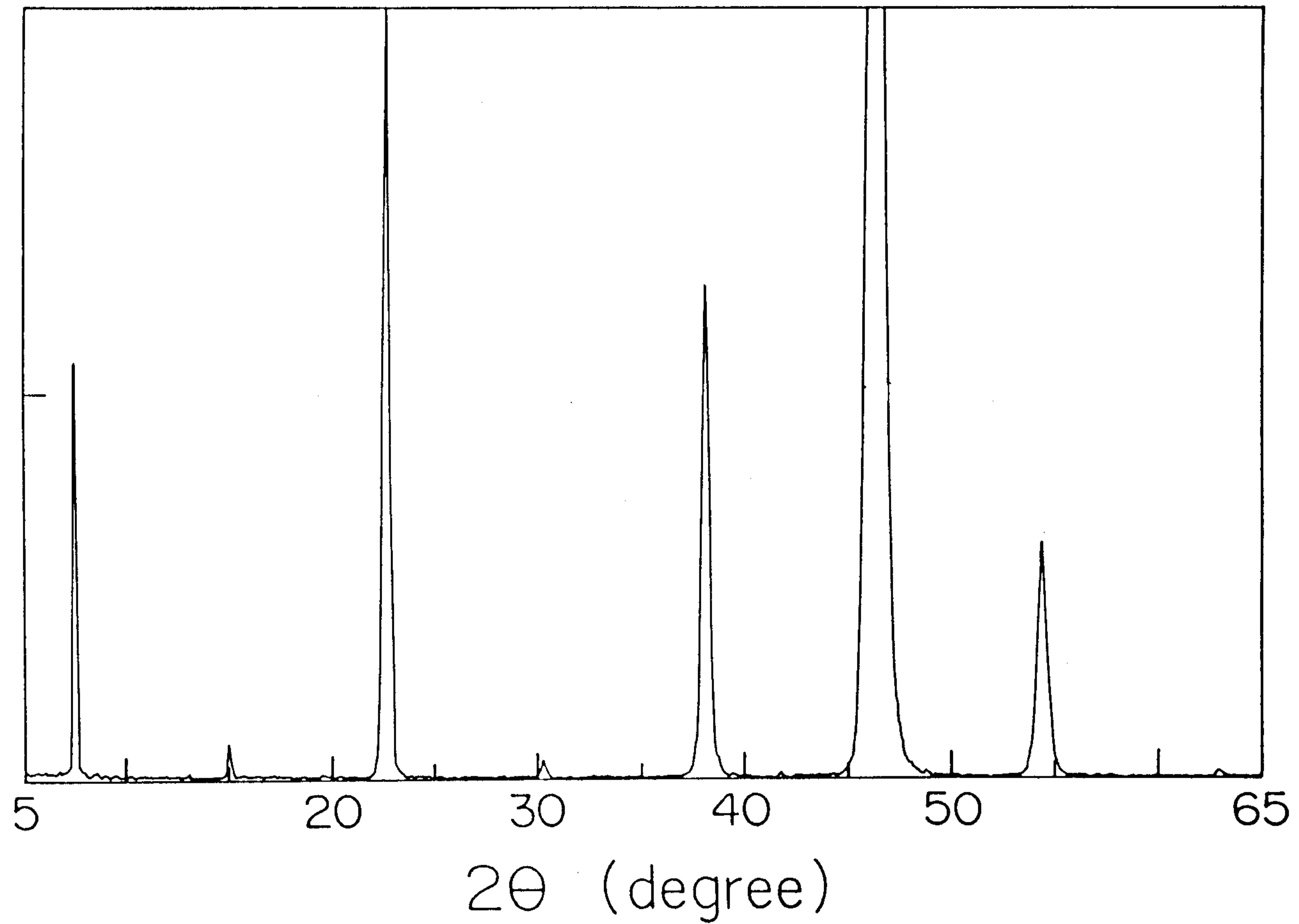


Fig. 2.2.2. X-ray diffraction pattern of a PBCO film deposited on a SrTiO₃.

SrTiO₃ 박막의 c축이 기판면에 수직하여 잘 배향되어 있음을 알 수 있다. 이러한 결정배향 특성은 SQUID input coil과 같은 다층구조를 이용한 소자 제작에 있어서 상층박막의 임계특성을 유지하고 아래층과 윗층 YBCO 박막간의 초전도연결을 위해 아주 중요하다.

Fig. 2.2.2는 ramp edge 접합 SQUID에 절연체로서 그리고 접합의 barrier로 사용된 PrBa₂Cu₃O₇ 박막의 X-선 회절 측정 결과이다. 사용한 기판은 SrTiO₃이다. PrBa₂Cu₃O₇은 YBCO에서 Y대신에 Pr을 치환한 물질로서 결정구조를 포함한 여러가지 특성이 유사한 반면 절연체에 가까워 epitaxial 박막성장이 요구되는 YBCO edge 접합 제작에 많이 사용되고 있다. Fig. 2.2.2는 PBCO의 c축 배향된 epitaxial 성장 특성을 잘 나타내고 있다.

Fig. 2.2.3은 SNS edge 접합 제작에 사용된 YBCO/CaRuO₃ 이중막 구조의 X-선 회절 패턴이다. 각각의 박막 두께는 1,500 Å이다. CaRuO₃는 perovskite 타입의 orthorhombic 구조를 가지고 있으며 격자상수가 a=5.36 Å, b=5.53 Å, c=7.67 Å이다. SrTiO₃(100) 기판상의 박막은 CaRuO₃의 (110)면이 기판면에 평행하게 자라는 것으로 밝혀졌다. 이때 박막면의 격자는 직사각형 배열을 하고 있는데, 각 변이 7.70 Å, 7.67 Å이다. 이 값들은 YBCO 박막의 격자상수 a 또는 b의 약 2배에 해당하므로 한 변으로 2배수의 YBCO 단위구조가 들어가는 epitaxial 박막이 성장하게 된다.

그림에서 보이는 바와 같이 CaRuO₃(110) 면간 거리 3.85 Å는 SrTiO₃의 격자상수 3.905 Å 그리고 YBCO의 c/3=3.89 Å보다 짧아 그림에서와 같이 X-선 회절 peak이 약간 높은 각도에서 나타나고 있다. 그림의 데이터는 CaRuO₃ 박막이 먼저 SrTiO₃ 기판위에 증착된 후 YBCO가 그 위에 입혀진 결과로서, CaRuO₃의 epitaxial 성장을 나타낼 뿐만 아니라 CaRuO₃

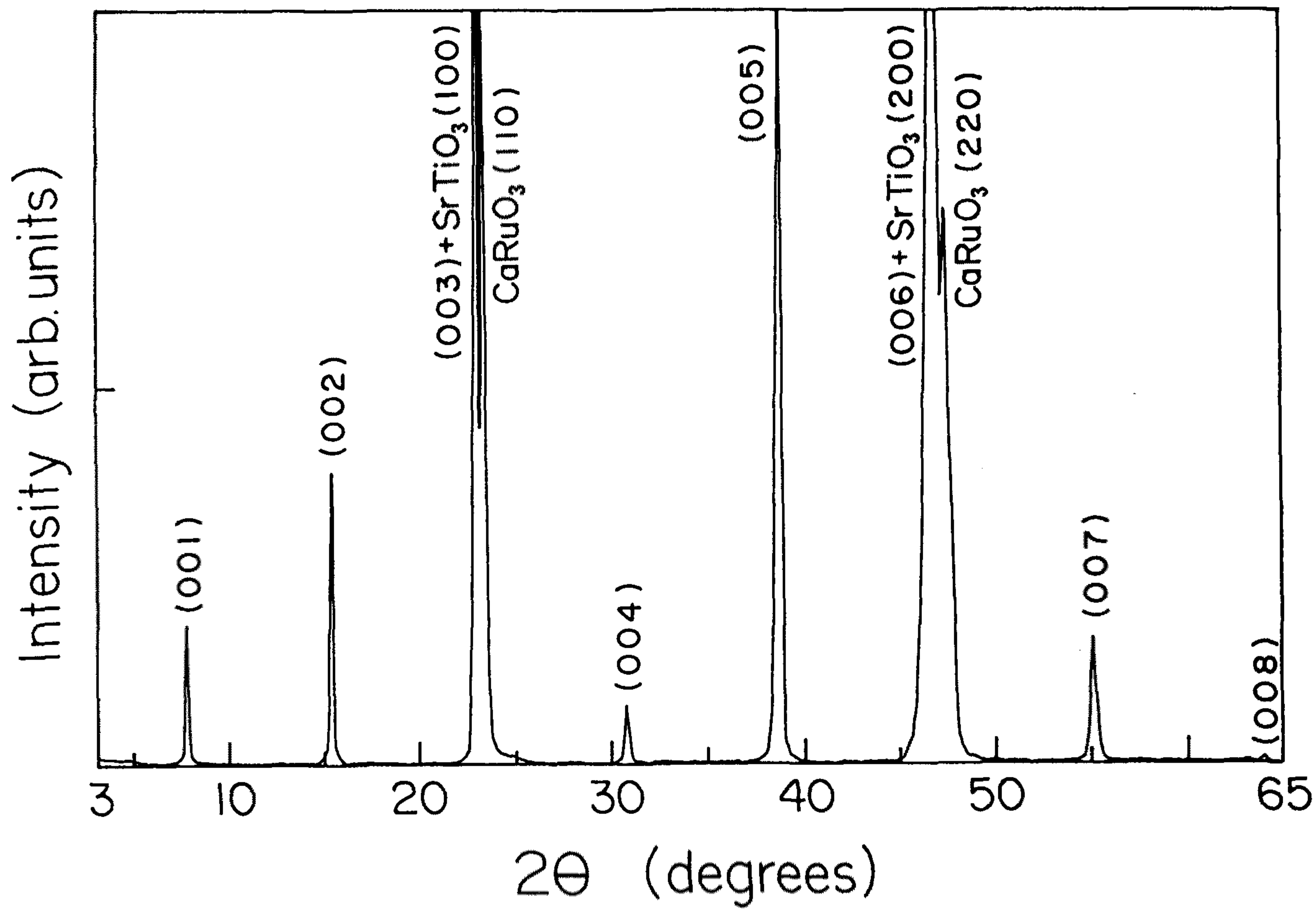


Fig. 2.2.3. X-ray diffraction pattern of a YBCO/CaRuO₃ bilayer on SrTiO₃ substrate. Each layer is 1,500 Å thick.

155S1
JULY-5-1993

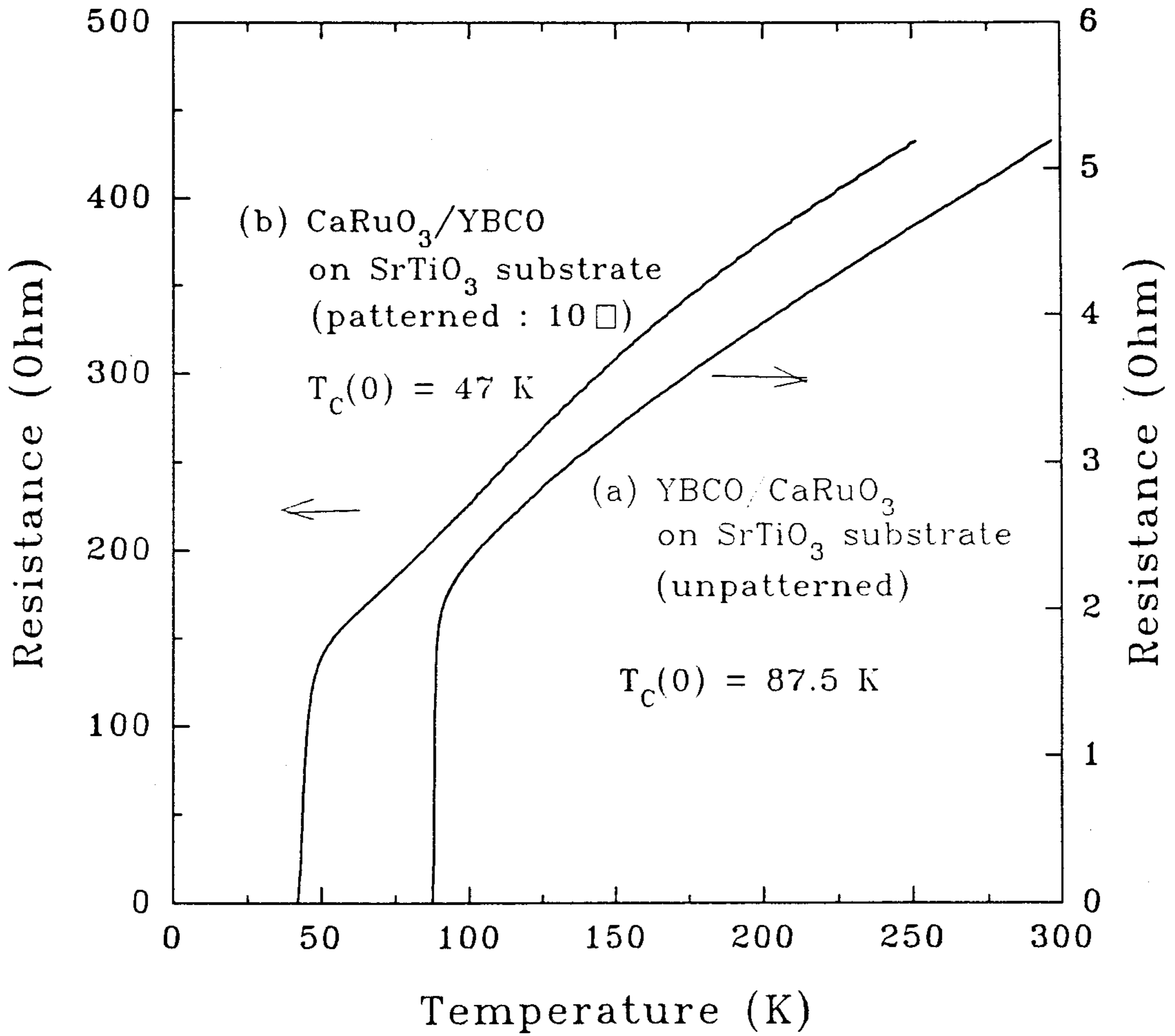


Fig. 2.2.4. Resistive transitions of bilayers of YBCO and CaRuO₃ on SrTiO₃. (a) YBCO/CaRuO₃//SrTiO₃ substrate. (b) CaRuO₃/YBCO//SrTiO₃ substrate.

위에 YBCO 박막이 epitaxial하게 성장함을 나타낸다. 마찬가지로 YBCO 위에도 CaRuO_3 가 epitaxial하게 성장함을 관측하였다. CaRuO_3 박막에 관한 연구가 아직 많이 이루어져 있지 않으므로 이에 대한 조사를 보다 자세히 하였다. CaRuO_3 박막 자체에 관한 결과는 제 3장 2절의 SNS edge 접합 SQUID 제작 부분에서 자세히 다루고 여기에서는 YBCO와 이룬 이중막에 관해서만 논의한다.

Fig. 2.2.4는 YBCO가 CaRuO_3 와 이중막을 이룰 때의 임계특성에 관한 데이터이다. 그림에서 나타난 바와 같이 YBCO가 먼저 증착된 경우(b)와 나중에 증착된 경우(a), 그 결과가 다름을 알 수 있다. CaRuO_3 위에 YBCO가 증착된 a)의 경우에는 SrTiO_3 기판 위에 바로 증착된 경우와 마찬가지로 잘 정렬된 c축 배향 epitaxial 특성과 $T_c > 87 \text{ K}$ 의 높은 임계온도, $J_c > 10^6 \text{ A/cm}^2$ 의 높은 임계전류밀도 특성을 가지고 있었다. 임계온도 이상에서의 저항-온도 특성은 양질의 YBCO 박막과는 다르게 비례하지 않고 아래쪽으로 굽어있는 것을 알 수 있는데, 이는 아래층의 CaRuO_3 가 온도 감소에 따라 비저항-온도 곡선 기울기가 증가하는 온도의존성에 기인한다 (제 3 장 2절 참조).

YBCO가 먼저 증착되고 CaRuO_3 가 그 위를 덮고 있는 b)의 경우에는 저항-온도 특성은 비슷하나 임계온도가 47 K로 낮다. 임계온도가 50 K 정도로 낮은 경우에 나타나는 일반적인 특성, 즉, 임계특성이 broad하고 임계온도 부근까지는 저항값이 반도체와 비슷하게 온도감소에 따라 증가하는 경향과는 다르게 나타남을 알 수 있다. 그림 (b)의 결과는 YBCO 박막을 덮고 있는 CaRuO_3 박막이 산소의 출입을 차단하여 YBCO 박막이 높은 임계온도 및 임계전류를 보유하는데 필요한 만큼의 산소가 공급되지 못했기 때문인 것으로 생

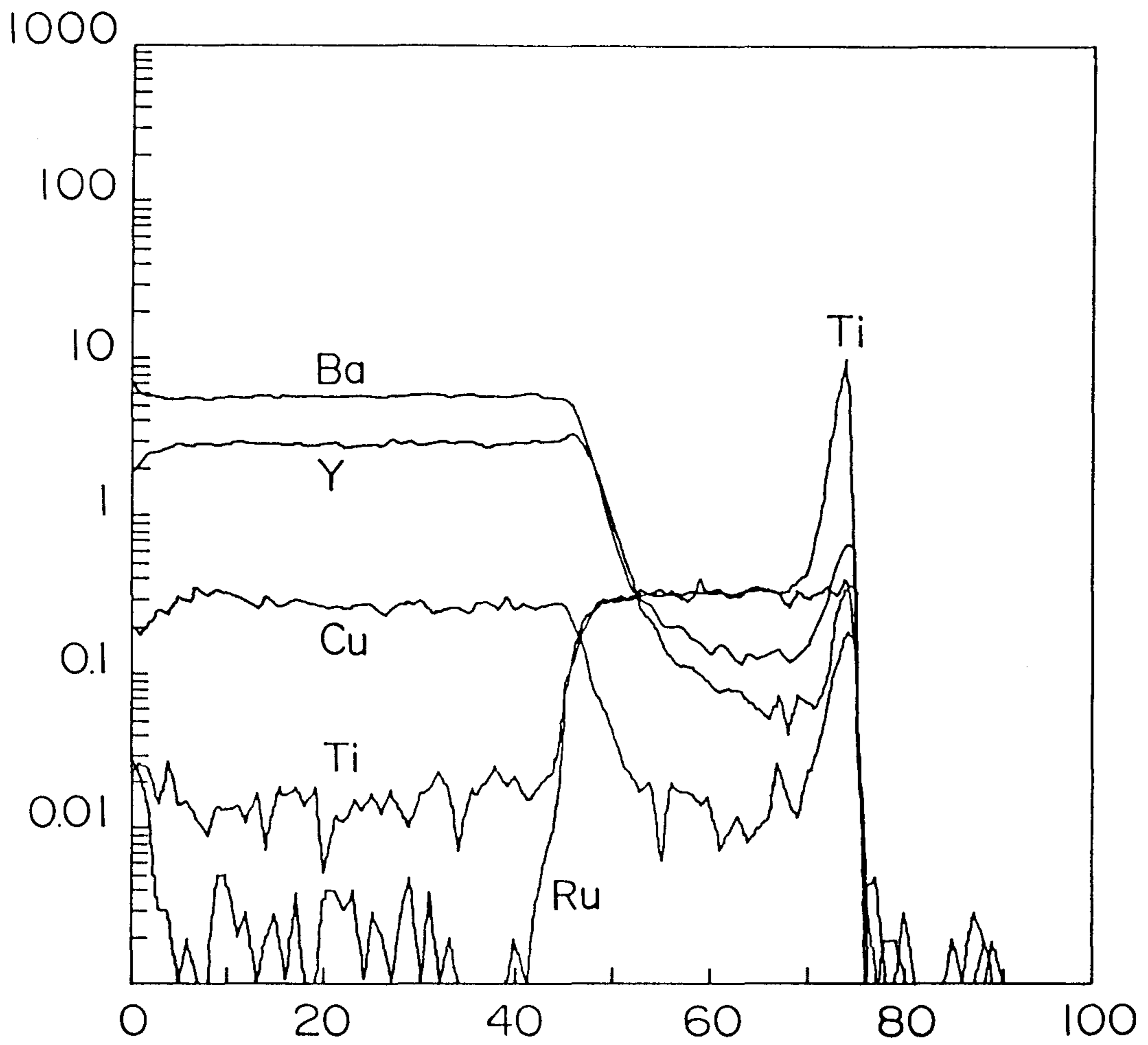


Fig. 2.2.5. Secondary ion mass spectra of a YBCO/CaRuO₃/(SrTiO₃ substrate) bilayer.

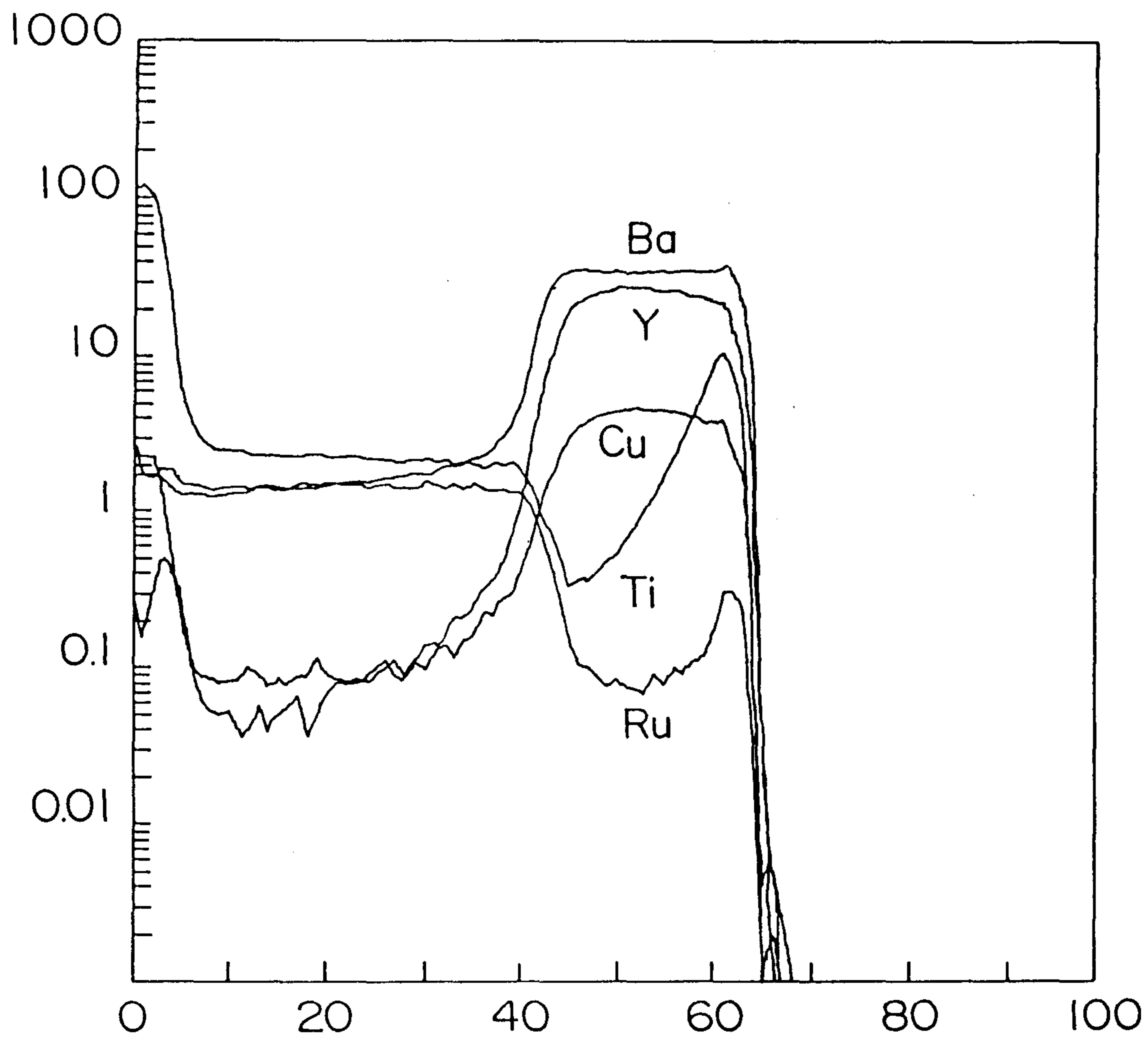


Fig. 2.2.6. Secondary ion mass spectra of a $\text{CaRuO}_3/\text{YBCO}/(\text{SrTiO}_3$ substrate) bilayer.

각된다.^[9] 실제로 같은 박막을 450 °C, 1기압 산소분위기에서 48시간 열처리 후, 임계온도가 80 K까지 상승하는 것을 관측하였다. 이러한 CaRuO₃ 박막의 산소 차단막 역할은 또 한편으로는 적절한 공정을 거칠 경우 YBCO 박막에서의 산소 이탈을 방지하는 산호보호층으로도 활용할 수 있을 것이다.

Fig. 2.2.5는 SrTiO₃ 기판 위에 CaRuO₃가 먼저 증착되고 YBCO가 나중에 증착된 이중박막의 SIMS 분석결과이고, Fig. 2.2.6은 그 반대 경우의 데이터이다. Fig. 2.2.5에서는 YBCO와 CaRuO₃의 경계면이 비교적 뚜렷하고 상호확산이 아주 적은 특성을 보여주고 있으며, Fig. 2.2.6에서는 Ti과 Ru의 확산이 조금 더 많은 것으로 나타나고 있다. 그러나 박막의 morphology에 따라 분석결과가 조금씩 다를 수 있음을 고려한다면 두 경우 모두 상호확산이 적은 것으로 생각할 수 있다. 특히, YBCO보다 CaRuO₃가 보다 매끈한 표면을 가졌음을 고려한다면 더욱 그렇다. 현재 CaRuO₃/YBCO//(SrTiO₃ 기판)의 이중박막증착 최적조건 도출을 위한 연구를 계속하고 있다.

제 3 절 낮은 산소분압에서 sputtering방법에 의한 YBCO박막의 in-situ 제작

양질의 초전도 박막제작에 있어 가장 먼저 필요한 것은 복잡한 조성과 구조의 초전도물질을 단결정 기판위에 초전도상을 유지하도록 가능한한 가지런히 배열하는 일이다. 일반적으로 덩어리 상태의 초전도체를 제작할 때 초전도상을 만들기 위해서는 800 °C 이상의 고온 열처리를 필요로 한다. 박막제작연구의 초기에는 낮은 온도에서 만들어진 박막을 800 °C 이상의 고온에서 열처리하여 초전도상을 형성시키는 ‘후열처리(post deposition annealing)’ 방식을 사용하였다. 그러나 이러한 후열처리방식에서는 초전도체와 기판사이에 반응이 나타나며 또 대체로 표면이 거칠어져 전자공학적인 응용에 있어 불리하였다. 이러한 문제점을 해결하기 위해 박막제작과 동시에 초전도상을 제작할 수 있는 ‘in-situ’방식이 사용되기 시작하였다.^{[10][11]} 이 방식에서는 기판을 후열처리온도 보다 낮게 가열한 상태에서 박막을 제작하고 그대로 산소분위기에서 냉각함으로써 초전도상의 박막을 바로 만들게 된다. In-situ방식에서는 박막이 성장하는 중에 표면확산을 통하여 원자의 이동 및 배열이 가능하게 되어 물질 내부로의 확산이 필수적인 후열처리 방식에 비해 낮은 온도에서도 초전도상의 형성이 가능하다. In-situ방식은 일반적인 후열처리 방식에 비해 낮은 온도에서 한번의 공정으로 양질의 박막을 제작할 수 있을 뿐만 아니라, 후열처리 방법으로는 거의 불가능한 다층박막제작이 용이하며 표면상태가 좋고 표면저항이 낮아 전자공학적인 응용에 대단히 유리하다. 그러므로 초기에는 일반적으로 산화물 박막제작에서 많이 쓰이는 후열처리방식의 ex-situ방법이 많이 사용되었으나 최근

박막의 전자공학적인 응용의 주요 대상인 YBCO박막 제작에 있어서는 대부분 in-situ 방식으로 바뀌게 되었다.

YBCO 박막증착에 있어 대단히 중요한 공정 변수는 산소의 분압이다. 특히 증착시의 산소분압에 따라 최적의 증착온도가 결정되며 또한 제작된 박막의 특성이 크게 영향을 받게 되기 때문에 산소분압의 영향을 이해하는 일은 대단히 중요하다. 실제로 최근에 일부 연구그룹에서는 YBCO 박막의 제작시 낮은 산소분압을 사용하여 후열처리온도를 in-situ방식에서 사용하는 온도 가까이 낮출 수 있게 되었으며 이렇게 제작된 YBCO박막은 in-situ방식으로 제작된 박막과 거의 같은 특성(특히 표면저항)을 나타내고 있다고^{[12]~[14]} 보고하였다.

본 연구에서는 현재 in-situ sputtering방식에서 일반적으로 사용되고 있는 수십내지 수백 mtorr의 산소분압 대신, 수 mtorr의 낮은 산소분압을 사용하여 박막을 제작함으로써 기존의 in-situ 방식보다 증착온도를 더 낮추고 증착속도를 증가시키기 위한 연구를 수행하였다.

1. Y-Ba-Cu-O 물질의 산소분압-온도 평형

박막제작시 상의 생성 및 성장은 일반적으로 비평형과정에 의한 경우가 많다. 그러므로 단순한 열역학적인 안정만으로는 예측하기가 매우 어려우며 박막제작 조건과 관련된 동역학적(kinetic) 요인이 대단히 중요하게 된다. 그러나 이러한 모든 요인을 종합한 상태도를 만드는 일은 거의 불가능하며 또 만들 수 있다하여도 일반적인 적용이 불가능하기 때문에 bulk형태의 물질에서 연구된 열역학적 상태도를 기초로 상 안정영역을 예

촉하게 된다. 특히 YBCO박막의 제작온도를 용융온도에 대한 비율(T/T_m)로 환산하면 0.7~0.85로 금속($T/T_m=0.2\sim0.38$) 및 반도체($T/T_m=0.3\sim0.45$)에 비해 현저히 높기 때문에 열역학적인 상태도로부터 상안정영역을 유추하는 것이 더욱 가능하다고 할 수 있다. Fig. 2.3.1은 산소분압과 온도에 따른 YBCO물질의 상태도이다.^[15] 이 상태도에는 YBCO물질의 안정영역과 함께 산소의 조성($Y_1Ba_2Cu_3O_{7-x}$ 에서 x 의 값으로 표시)도 표시되어 있다. 이 상태도 위에는 일반적으로 sputtering에 의한 박막제작 조건도 함께 표시되어 있다. 지금까지 sputtering방법을 포함하여 laser ablation 및 evaporation방법 등 대부분의 박막제작 방법을 사용하여 보고된 양질의 박막제작 조건은 YBCO123상의 분해선에 가까이 분포하고 있는데 낮은 산소분압을 사용함에 따라 박막제작 온도도 함께 낮아짐을 의미한다. 낮은 산소분압하에서는 평형 산소농도가 낮게 되어 (evaporation의 경우 평형산소 농도는 대략 6.1로 추정) 박막형성에 참여하는 금속원자들이 대부분 산화되지 않는 상태이므로 비교적 낮은 온도(600~700 °C)에서도 확산속도가 빨라 결정형성이 용이한 반면 보다 높은 산소분압하에서는 보다 많은 금속원자들이 산화된 상태로(laser ablation 또는 고압 sputtering의 경우 평형산소 농도는 6.3 정도) 확산속도가 느려지기 때문에 결정을 형성하는데 높은 온도가 필요하다고 알려져 있다.

2. 박막 제작 조건

본 연구에서는 낮은 산소분압의 효과를 보기 위하여 박막 증착시의 산소분압을 일반적인 증착조건의 약 1/10수준인 5 mtorr 로, 총 증착가스(Ar

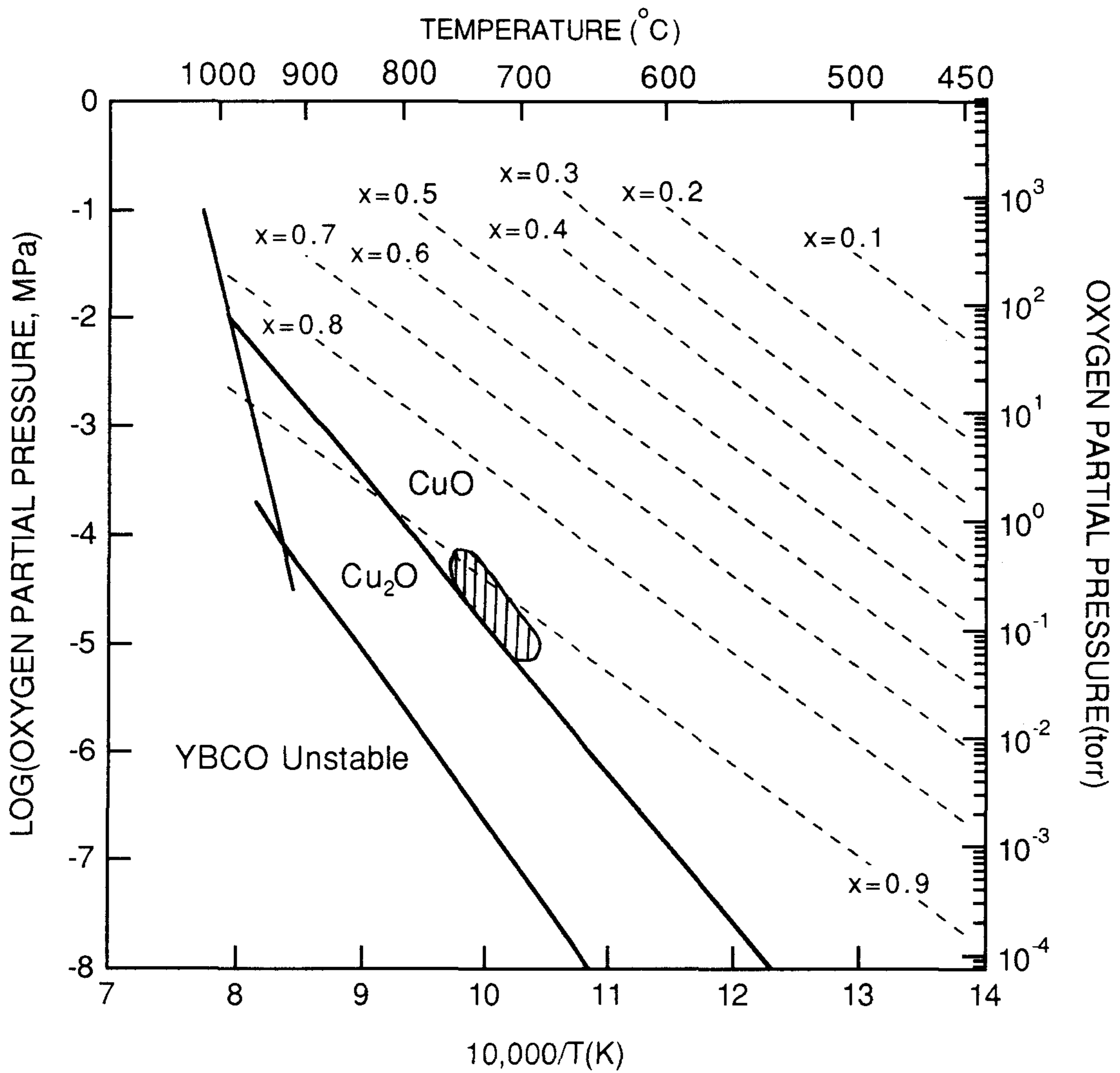


Fig. 2.3.1. Phase diagram of YBCO superconductor as a function of oxygen partial pressure.^[15] Regimes of successful thin film deposition by high pressure sputtering method is also shown.

+O₂)압력은 10 mtorr로 낮추어 사용하였다. 박막 제작방법은 90° off axis rf magnetron sputtering 방법을 사용하였으며 직경 2"인 단일 타깃을 사용하였다. Fig. 2.3.2은 타깃과 기판 등의 개략적인 배치도이다.

낮은 산소분압에서 증착한 박막에서 Ba양이 특성에 미치는 영향을 보기 위해 타깃조성에서 Ba양을 YBa₂Cu₃O_{7-x}(123)의 stoichiometric 조성인 2.0에서부터 Ba이 모자라는 1.0까지 변화시켰다. 또한 증착후 냉각과정에서의 산소압도 1기압에서부터 100 mtorr까지 낮추어 가면서 영향을 관찰하였다. 이와함께 123조성의 타깃과 산소분압 100 mtorr를 사용하여 박막을 제작하여 비교하였다. Fig. 2.3.3에는 Fig. 2.3.1의 평형상태도 위에 본 실험의 조건을 함께 표시하였으며 Table 2.3.1에는 증착조건을 요약하였다.

3. SrTiO₃ 기판 위에 제작된 박막의 임계온도와 격자상수에 미치는 Ba/Y 비의 영향

Fig. 2.3.4는 SrTiO₃ 기판위에 총증착압력 10 mtorr, 산소분압 5 mtorr, 증착온도 650 °C로 증착한 후, 산소압력 1 기압하에서 서서히 냉각시켜 제작한 박막의 임계온도(T_{c, zero})와 타깃의 Ba/Y비의 관계를 보여주고 있다. 박막의 조성은 Rutherford Backscattering Spectroscopy(RBS)와 Inductively Coupled Plasma(ICP) Absorption Spectroscopy로 분석한 결과 타깃의 Ba/Y비와 유사한 값을 나타내었다. 산소분압이 5 mtorr일 때 박막의 임계온도는 Ba/Y의 비가 2에서 1까지 감소함에 따라 거의 직선적으로 증가하여 그 값이 1일 때 84 K 이상을 나타내었다. 비교를 위해 산소분압 100 mtorr, 기판온도 740 °C에서 Ba/Y의 비가 2인 타깃을 이용하여 증착

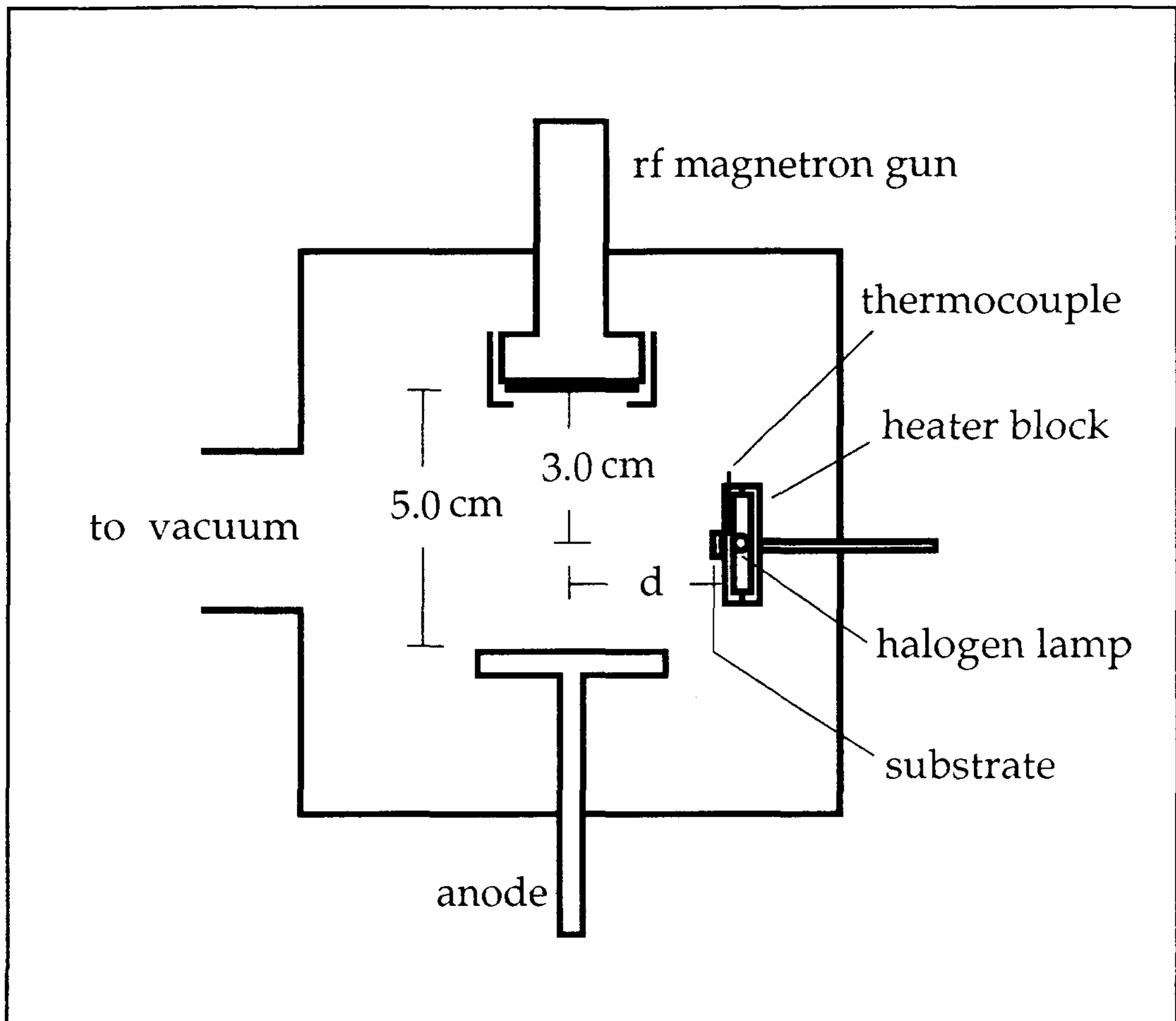


Fig. 2.3.2. Schematic diagram of the off-axis rf magnetron sputtering system.

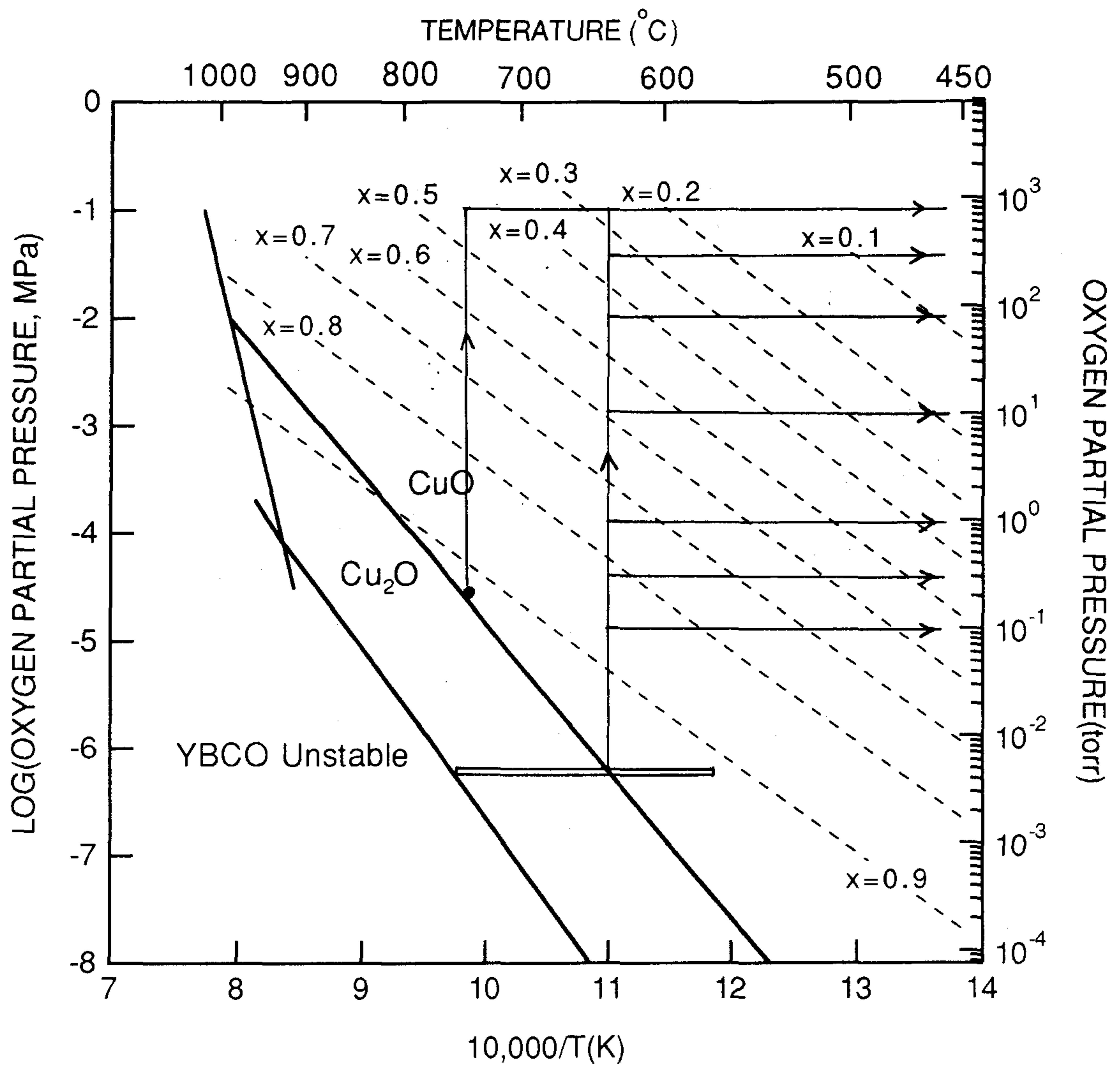


Fig. 2.3.3. Temperature and oxygen partial pressure adopted in this experiment.

Table 2.3.1. Deposition parameters of this experiment.

	low oxygen pressure deposition	high oxygen pressure deposition
○ target composition	Y ₁ Ba _{2.0} Cu _{3.0} Y ₁ Ba _{1.8} Cu _{3.2} Y ₁ Ba _{1.5} Cu _{3.0} Y ₁ Ba _{1.3} Cu _{2.8} Y ₁ Ba _{1.2} Cu _{3.5} Y ₁ Ba _{1.0} Cu _{2.5}	Y ₁ Ba _{2.0} Cu _{3.0}
○ deposition gas (Ar+O ₂) pressure	10 mtorr	200 mtorr
○ oxygen pressure	5 mtorr	100 mtorr
○ rf power density	2.5 W/cm ²	2.5 W/cm ²
○ deposition temp.	645 °C	740 °C
○ substrate	SrTiO ₃ , MgO	SrTiO ₃
○ cooling condition	annealing at 480 °C, 1h	annealing at 480 °C, 1h
○ oxygen pressure during cooling	1 atm~100 mtorr	1 atm
○ distance between target and substrate	6 cm	4 cm
○ deposition rate	~20 Å/min	~8 Å/min

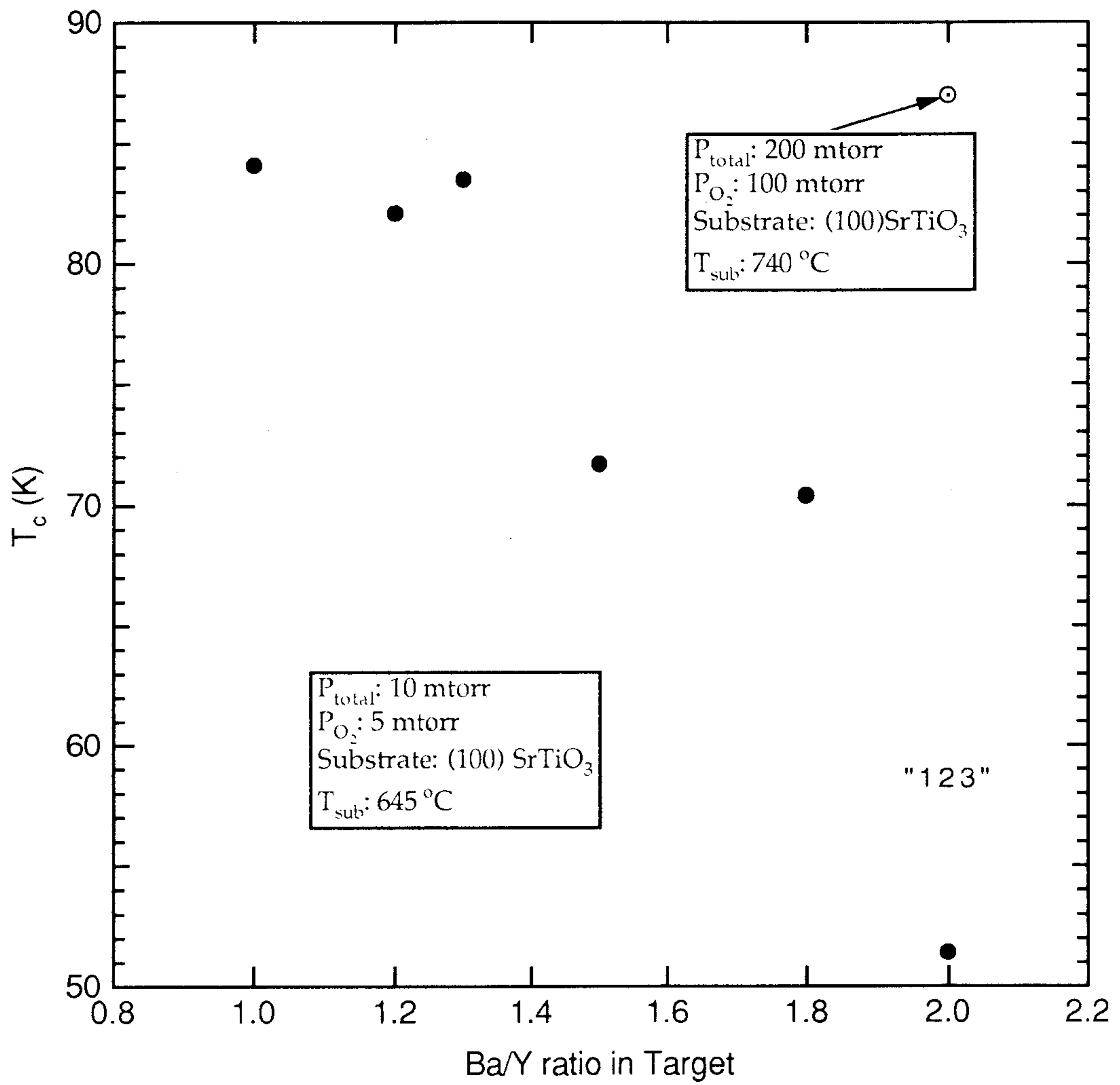


Fig. 2.3.4. $T_{c, zero}$ of the thin films fabricated in low oxygen partial pressure.

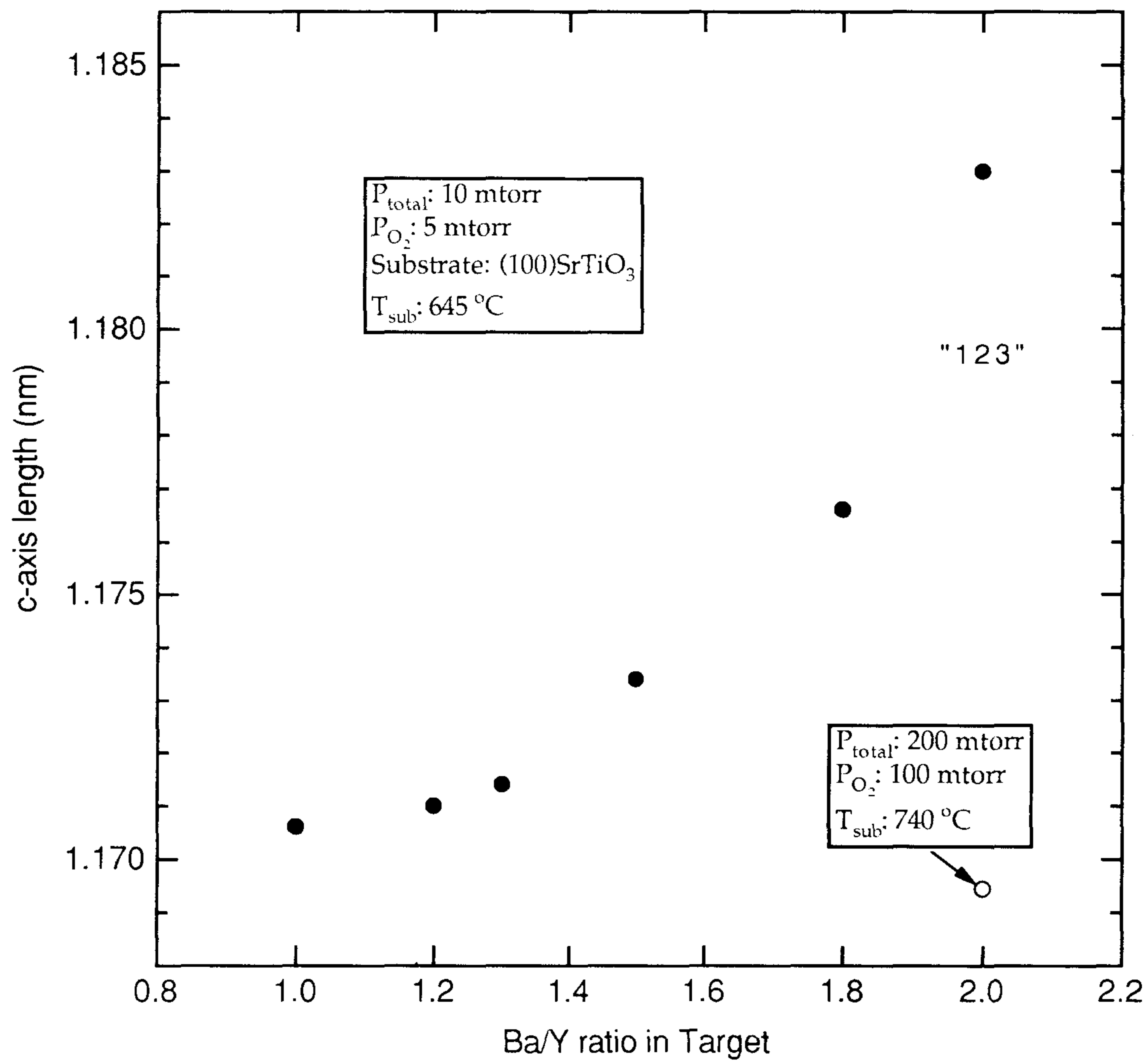


Fig. 2.3.5. C-axis lattice parameters of the thin films fabricated in low oxygen partial pressure.

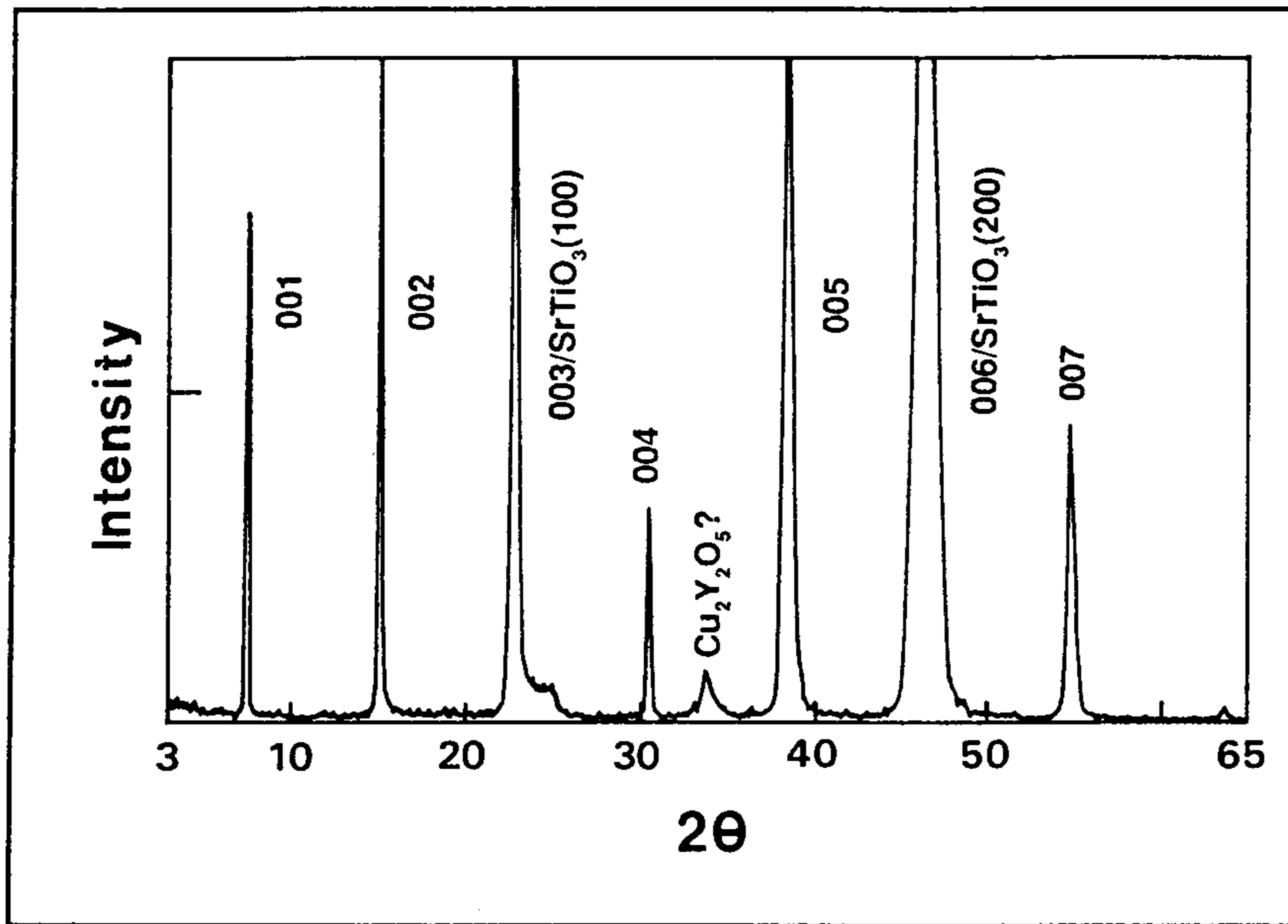
한 후 동일한 조건으로 냉각한 박막의 임계온도를 함께 표시하였다.

Fig. 2.3.5는 같은 Fig. 2.3.4와 동일한 박막들의 X-선 회절 분석 결과의 (007) 피크로부터 계산된 c축 길이를 Ba/Y비의 함수로 그린 그림이다. 박막의 c축 길이는 Ba/Y비가 1일때 1.1706 nm로 가장 짧으며 Ba/Y비가 증가함에 따라 급격히 증가하였으며 고압산소에서 제작된 박막의 경우 c축 길이는 1.1695 nm로 보다 덩어리 시편의 c축 길이에 접근하였다.

4. SrTiO₃ 기판 위에 제작된 박막의 X-선 회절 분석 및 표면 미세조직

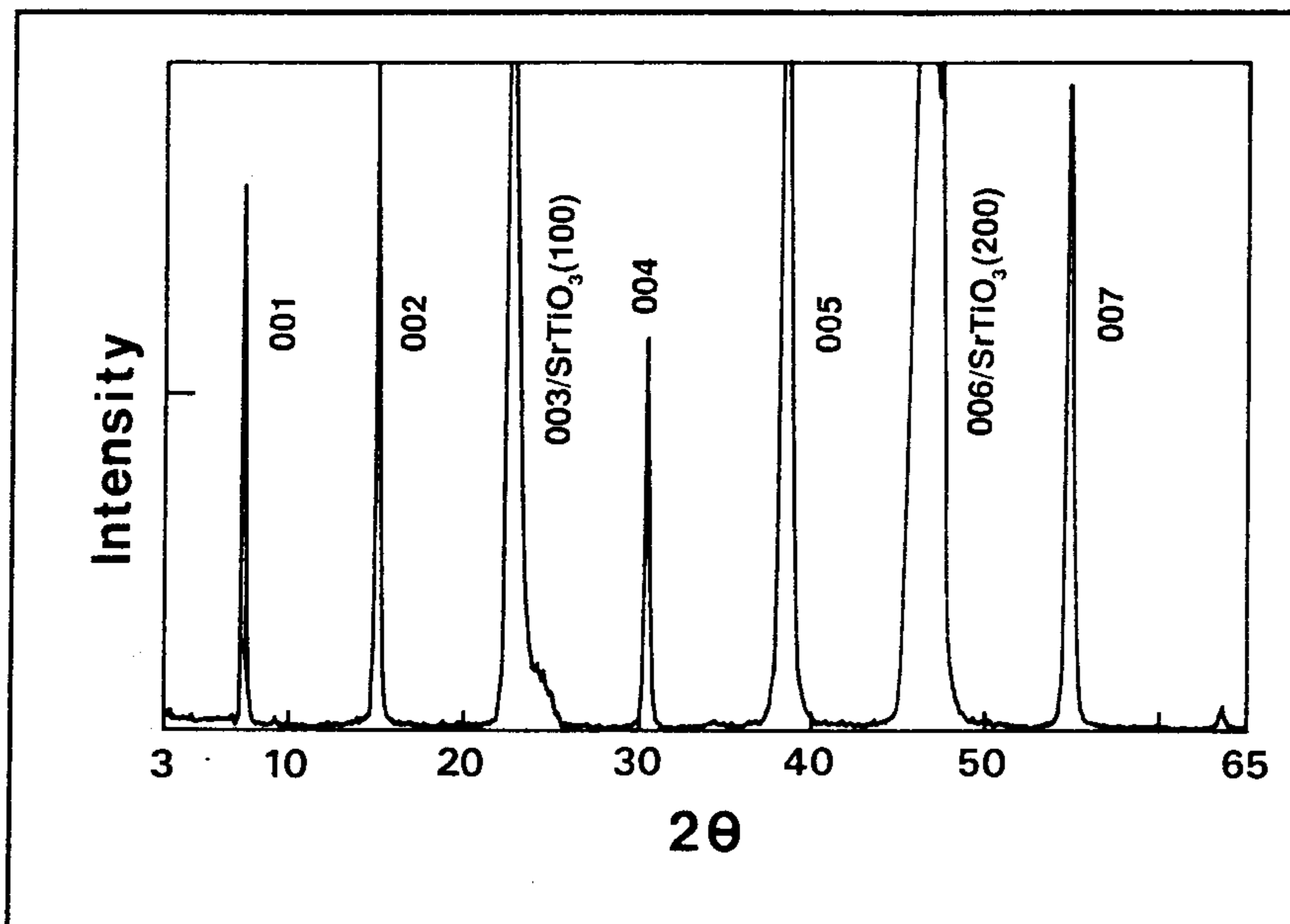
Fig. 2.3.6은 저압산소 및 고압산소에서 제작된 박막의 대표적인 X-선 회절 패턴이다. 두 경우 모두 c축이 기판면에 수직하게 잘 배향되어 있음을 알 수 있다. 그러나 저압산소에서 제작된 박막에서는 Cu₂Y₂O₅로 추정되는 미량의 불순물 피크가 관찰되고 있다. 두 박막의 (005) 피크 주위에서 이중 결정 회절장치를 이용하여 rocking curve를 측정한 결과 FWHM이 저압산소에서 증착한 박막은 0.86°, 고압산소에서 증착된 박막은 0.3°로 고압산소에서 증착한 박막의 결정성이 보다 우수하였다.

Fig. 2.3.7은 저압산소에서 증착한 박막의 표면 형상을 주사전자현미경(SEM)으로 관찰한 사진이다. Cu가 3.2인 박막에서는 CuO로 추정되는 결정의 돌출물들이 관찰되며 Ba이 1.5인 시편의 경우 표면이 가장 평활하며 입계가 관찰되지 않고 있다. Ba의 양이 1.3과 1.0일 때에는 표면의 coverage가 나쁜 편이며 박막은 granular 형태로 성장하였음을 알 수 있다.



$Y_1Ba_{1.0}Cu_{2.5}$
 $P_{total}: 10 \text{ mtorr}$
 $P_{O_2}: 5 \text{ mtorr}$
 $T_s: 645 \text{ }^\circ\text{C}$

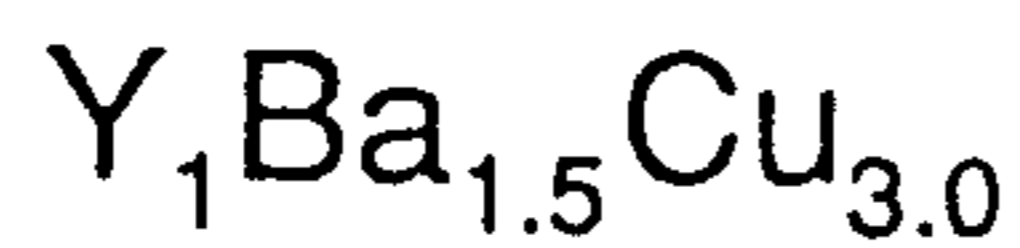
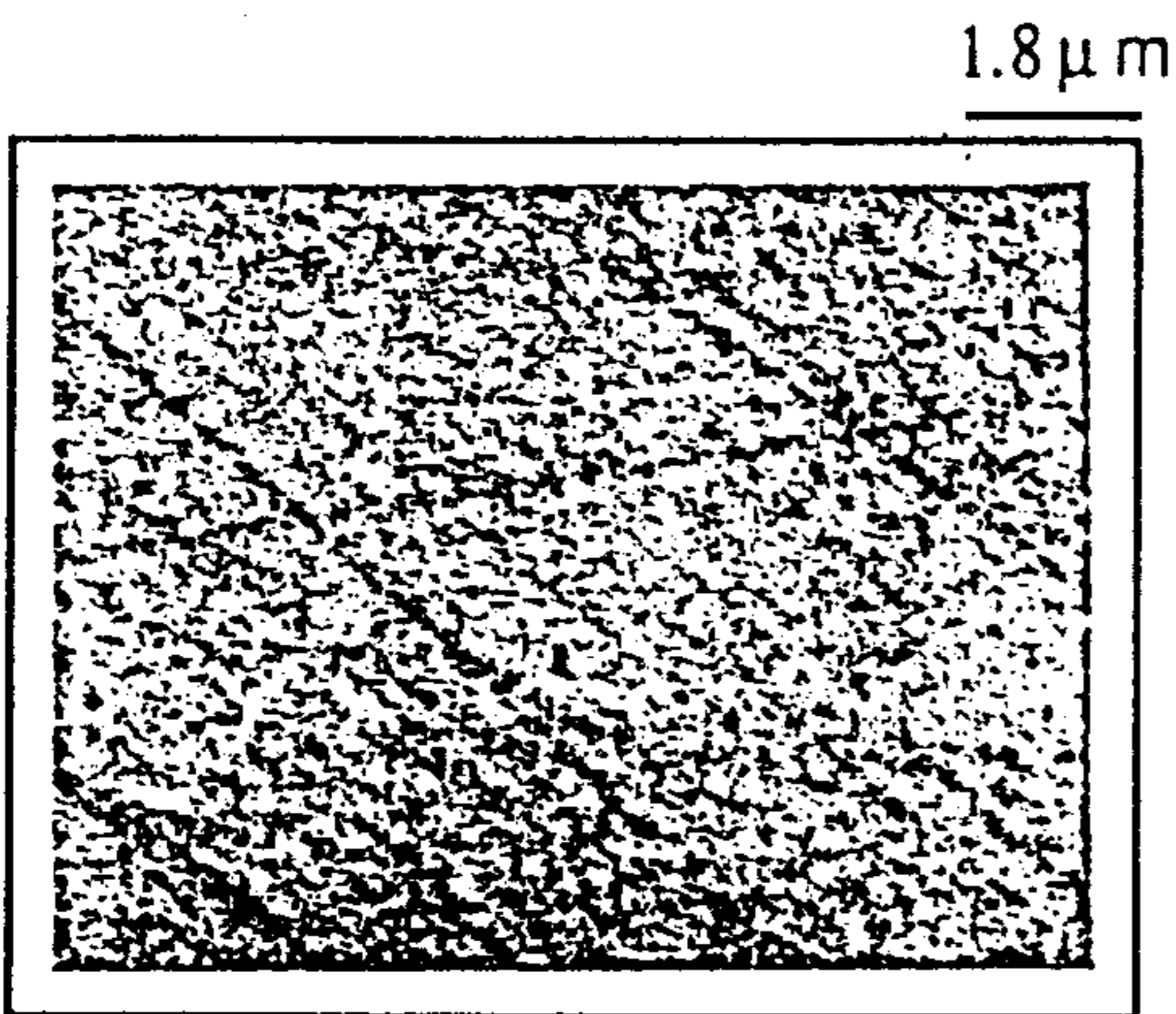
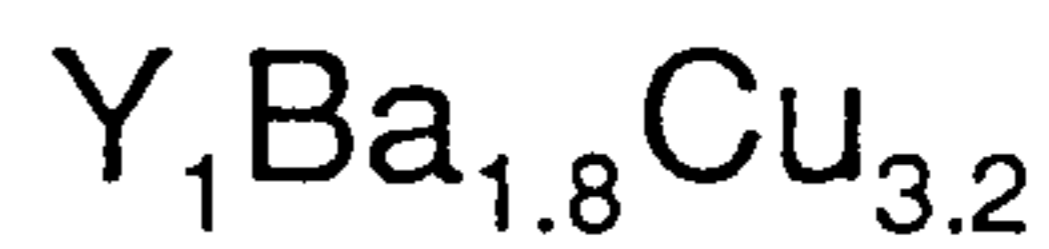
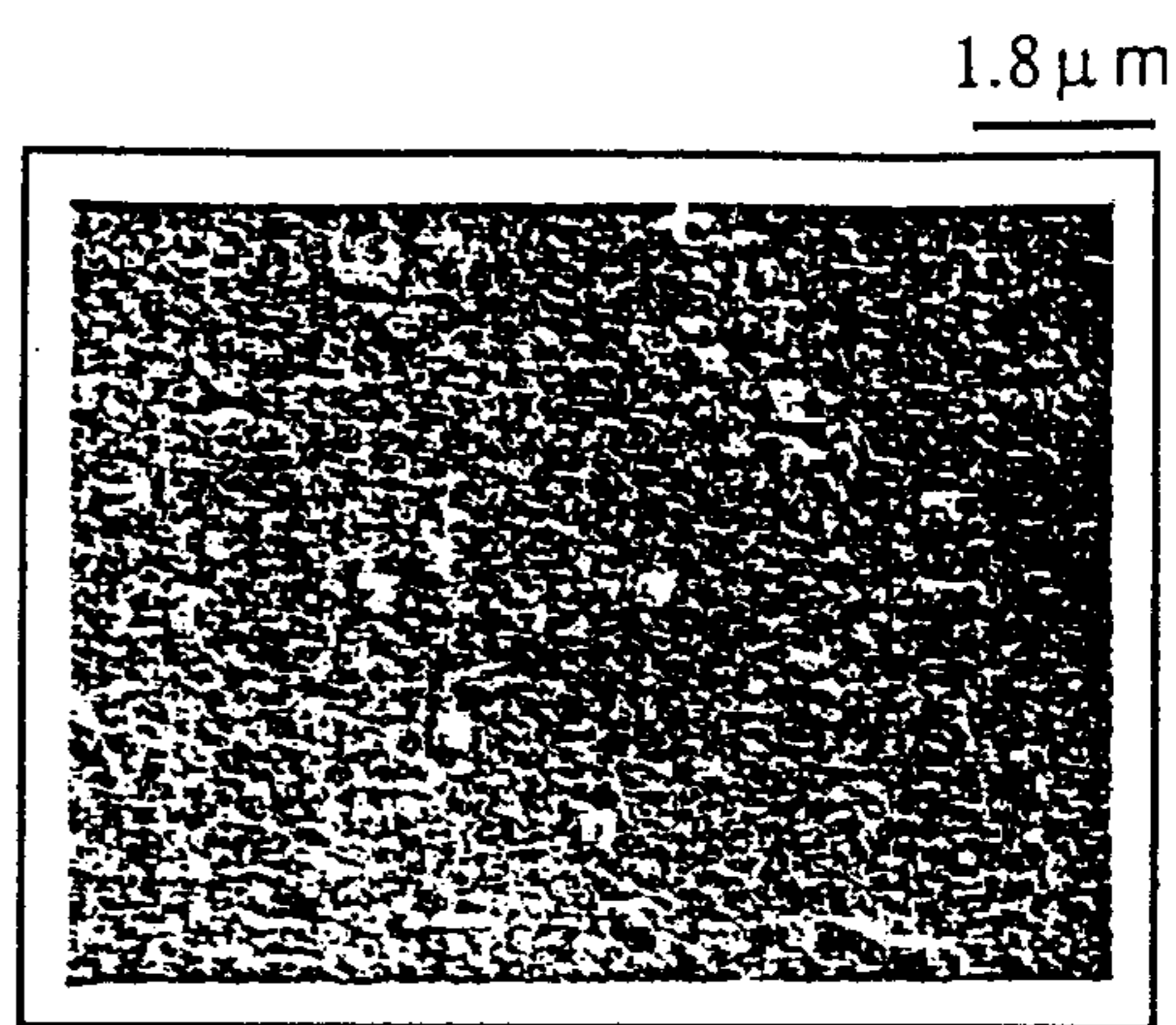
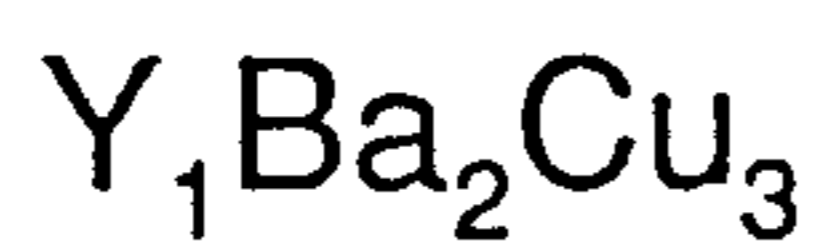
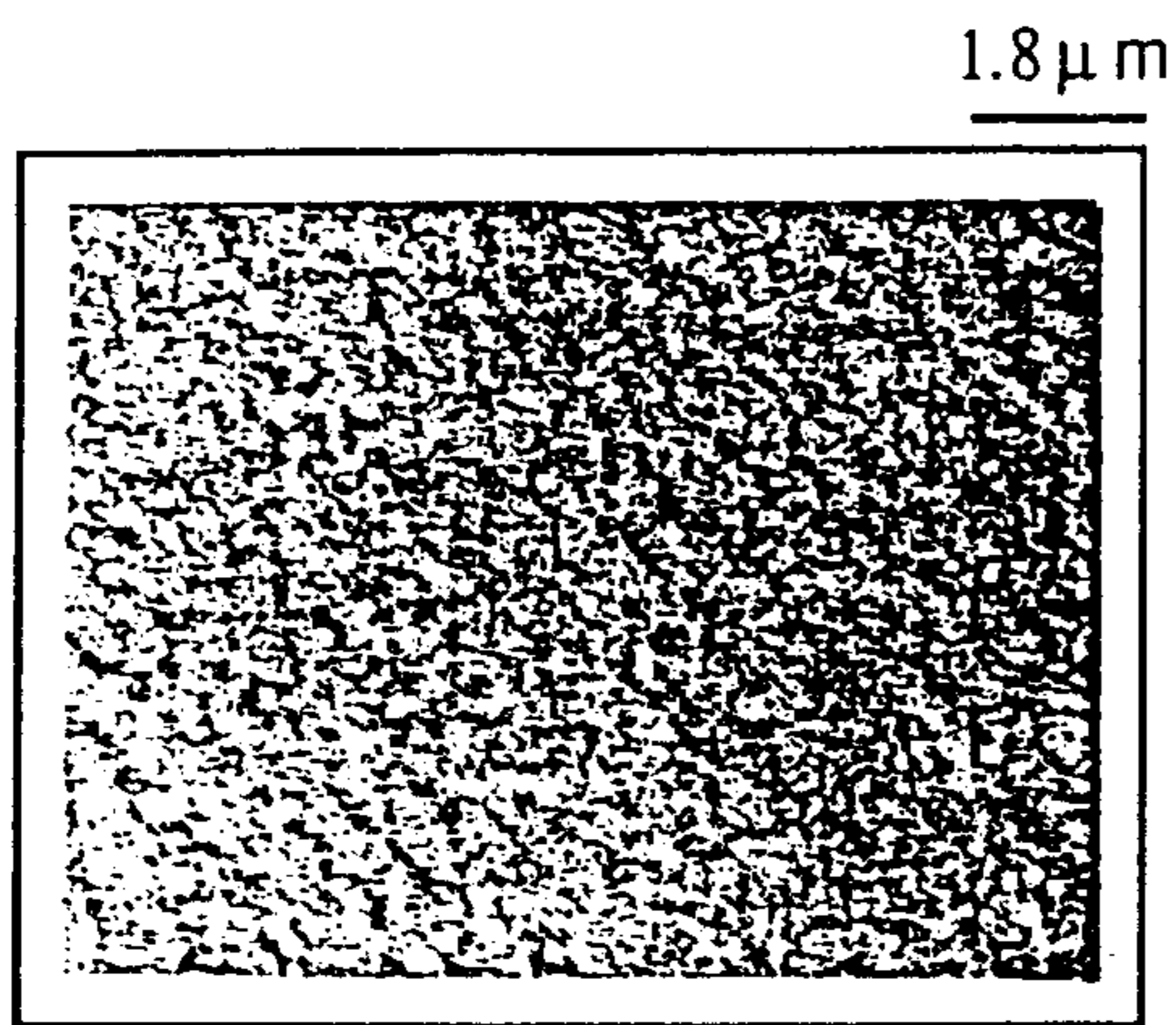
FWHM of (005)
 rocking curve:
 0.86°



$Y_1Ba_2Cu_3$
 $P_{total}: 200 \text{ mtorr}$
 $P_{O_2}: 100 \text{ mtorr}$
 $T_s: 740 \text{ }^\circ\text{C}$

FWHM of (005)
 rocking curve:
 0.3°

Fig. 2.3.6. Typical X-ray diffraction pattern of the films fabricated in (a) low oxygen partial pressure and (b) high oxygen partial pressure.



$P_{total}: 10 \text{ mtorr}$
 $P_{O_2}: 5 \text{ mtorr}$
 $T_s: 645 \text{ }^\circ\text{C}$
 Substrate : (100)SrTiO₃

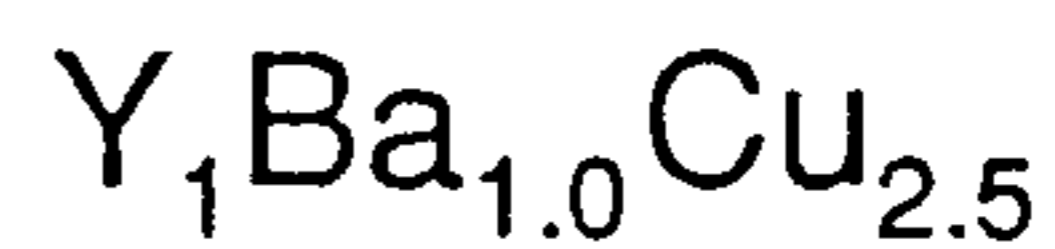
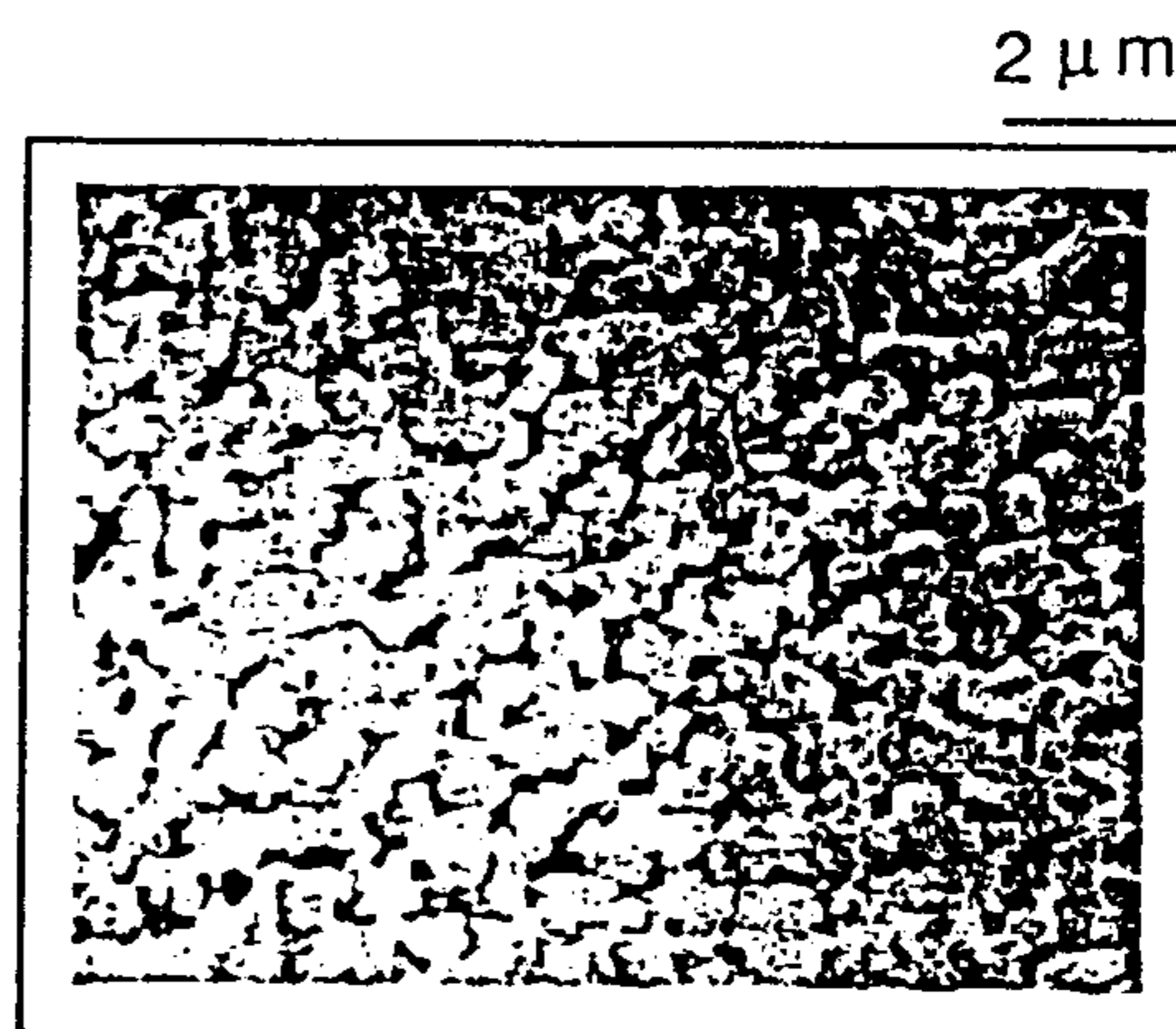
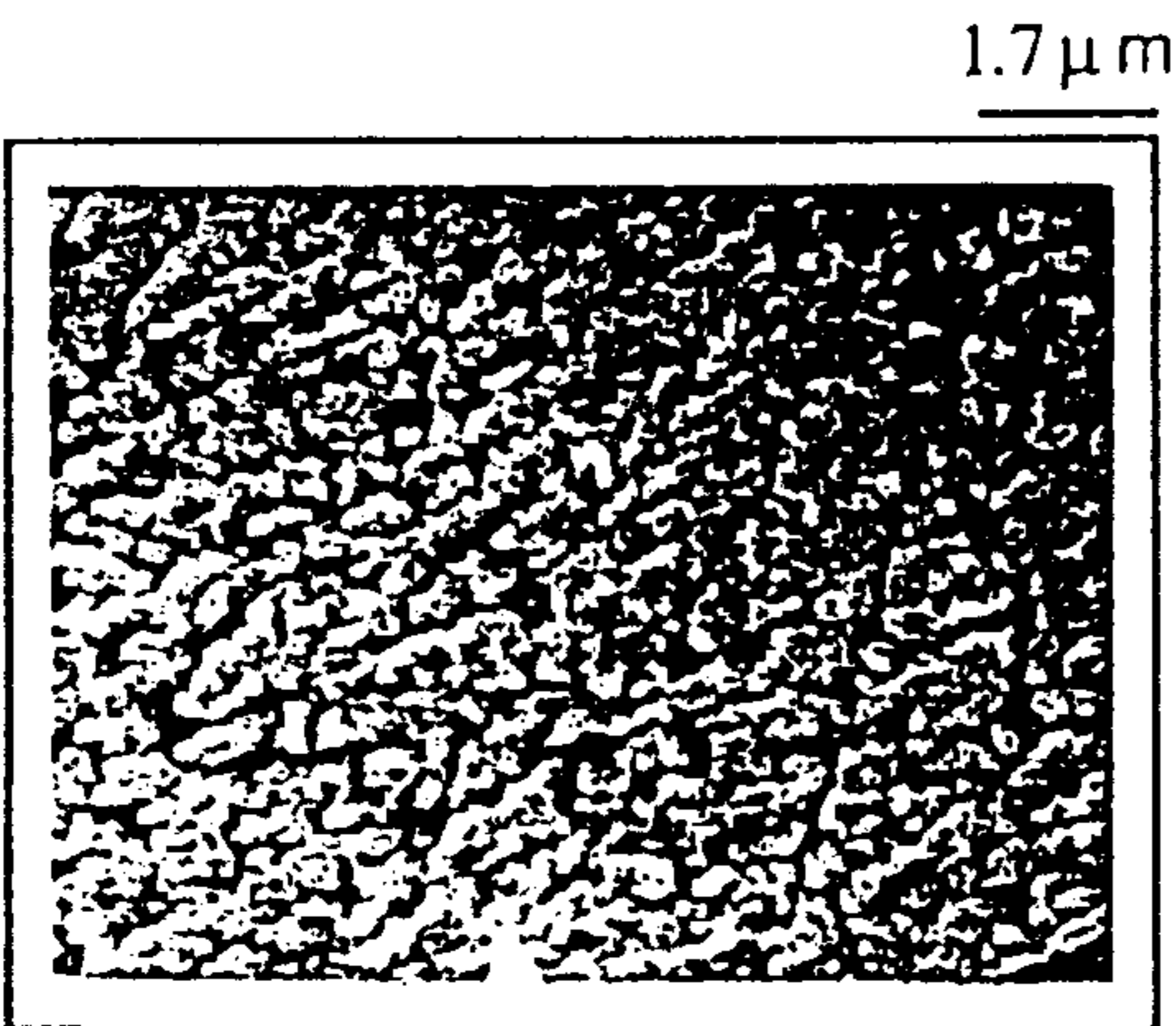


Fig. 2.3.7. SEM micrographs of the surfaces of the films fabricated from different Ba composition in low oxygen partial pressure.

5. Antisite Disorder Model에 의한 실험결과의 해석

저압산소에서 증착된 박막에서 Ba의 감소에 따라 임계온도가 상승하고 c축의 길이가 짧아져 덩어리시편에서의 값에 접근하는 현상은 Matijasevic 등이^[14] coevaporation 방법으로 제작한 YBCO박막에서도 발견하였으며 이를 설명하기 위해 antisite disorder model을 제시하였다.^[16]

산소의 양이 충분하지 않은 상태에서 층상구조의 박막을 성장시킬 때에는 열역학적으로는 불안정하지만 동역학적으로는 가능한 양이온의 치환이 가능하다. 열역학적으로는 Ba이 Y를 치환하는 일이 거의 일어나지 않지만 저압산소에서 박막을 증착할 경우에는 Fig. 2.3.8과 같이 $YBa_2Cu_3O_x$ 내의 Ba의 용해도가 증가하게 된다. 저압산소에서 YBCO 박막을 성장시킬 때에는 CuO_2 면에 산소가 충분하지 못하여 이 면에 산소가 다 채워지지 못하게 되면 산소의 vacancy에 의한 전기적 중성을 유지하기 위해 Ba^I 이온이 Y^{III} 이온 자리에 보다 용이하게 치환될 수 있다. 또한 Fig. 2.3.9에서 보듯이 산소원자가 구리원자보다 이온 반경이 더 크기 때문에 산소의 vacancy는 Ba이 국부적으로 치환해 들어가는데 더욱 용이하게 한다. 물론 냉각중에 산소가 일부 채워지게 되나 전기적인 중성을 유지하기 위해서는 Ba이 치환된 만큼의 산소량은 채워지지 못하게 되고 양이온의 총 전하는 stoichiometric 123 보다 적게 될 것이다.

Y자리에 이온 반경이 더 큰 Ba이 치환되면 CuO_2 면간의 거리는 증가하게 될 것이다. 또한 Ba 치환에 따른 산소의 vacancy 증가로 인해서 c축 길이는 더욱 증가하게 된다. 반대로 만일 Ba 자리에 Y이 치환되면 CuO_2 면간의 거리는 감소하고 산소량의 증가로 c축 길이는 더욱 감소하게 될

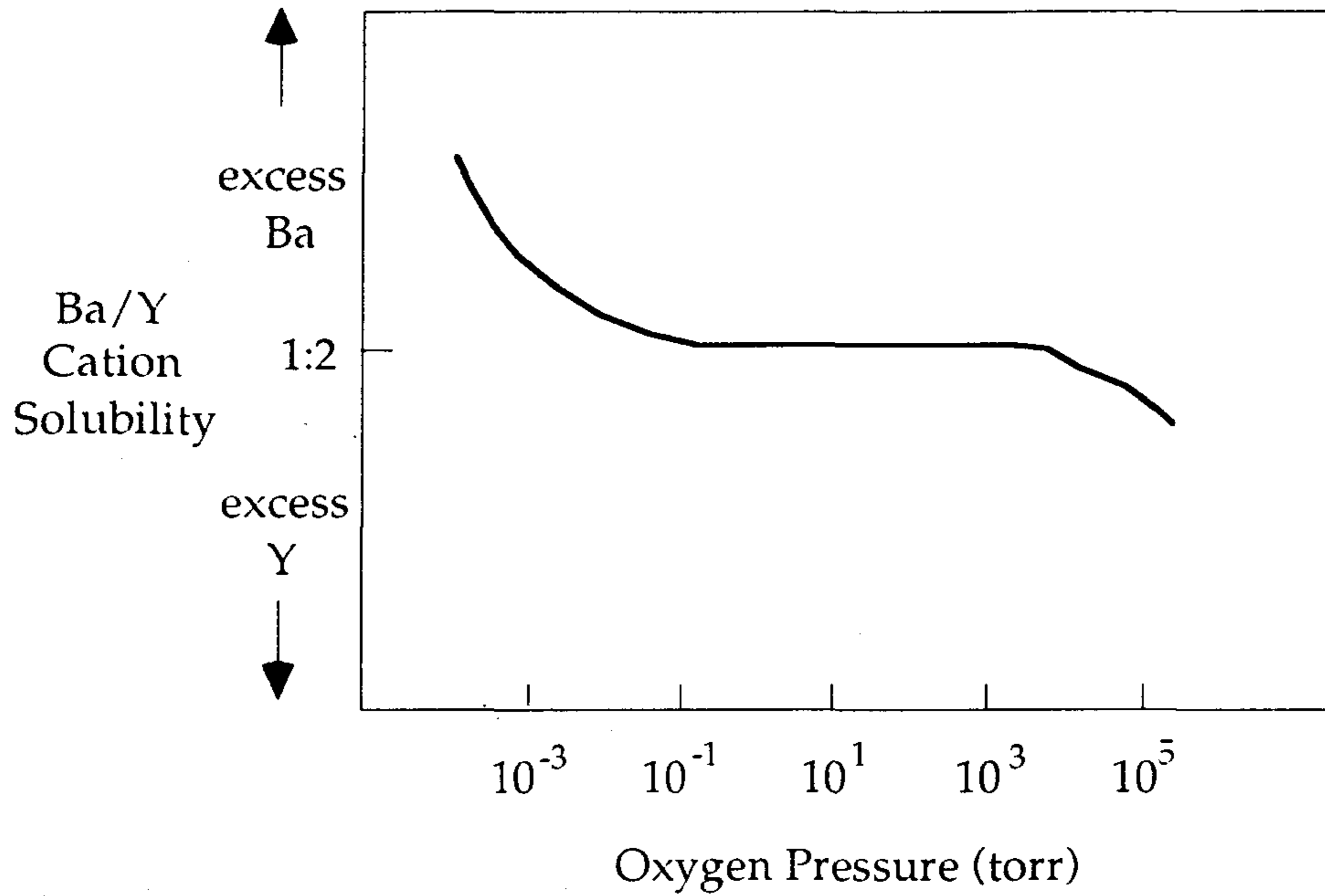


Fig. 2.3.8. Possible phase solubility diagram for $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ as a function of oxygen partial pressure during thin film deposition.^[14]

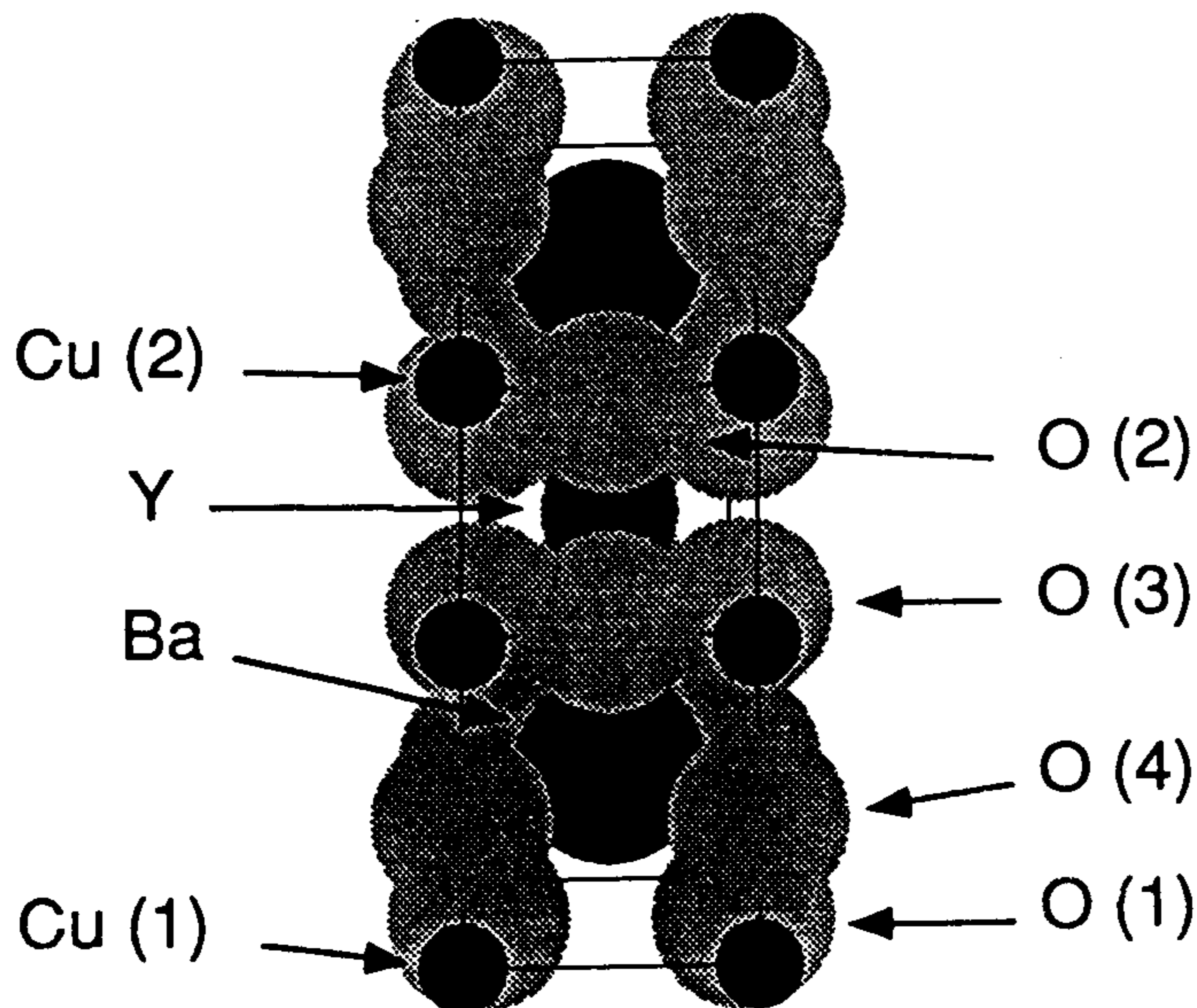


Fig. 2.3.9. Atomic structure of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$.^[16]

것이다. 본 연구에서는 Fig. 2.3.5에서 보듯이 Ba량이 증가함에 따라 c축 길이가 증가하고 있어 Y자리에 Ba이 치환되고 있다고 할 수 있다.

6. 냉각중 산소압력의 영향

구리산화물계 초전도체의 임계온도는 CuO_2 면에서의 전하 나르계(charge carrier)농도의 함수임이 경험적으로 알려져 있다.^{[17][18]} 임계온도는 면 당 홀 농도가 0.2부근에서 최대가 되며 그 이상과 이하에서는 포물선 형태로 감소한다. Feenstra^[19] 등은 Ba/Y antisite defect의 농도가 크지 않을 경우 낮은 온도에서의 산소 열처리에 의해 홀이 최적농도보다 많이 들어가게 되어(over doping) 임계온도가 낮아지며 이 시점에서 산소를 약간 제거해 줌으로써 임계온도의 상승이 가능하다고 보고하였다. 또한 Ba/Y antisite defect의 농도가 큰 경우 낮은 온도에서의 산소 열처리를 하더라도 전기적인 중성을 유지하기 위해 산소가 충분히 채워지지 않아 최적 홀 농도보다 홀농도가 낮아지게 되어(under doping) 임계온도가 낮아진다고 하였다.

Feenstra의 경우 제작된 박막을 후열처리를 통하여 산소량을 조절하였는데 본 연구에서는 낮은 산소 분압에서 제작된 박막을 Fig. 2.3.3에 표시된 경로를 따라 여러 산소압력하에서 in-situ로 열처리하여 임계온도 및 c축 길이에 미치는 영향을 관찰하였다. Fig. 2.3.10은 타깃조성이 다른 세개의 박막에서 냉각시의 산소압에 따른 임계온도의 변화를 나타내고 있다. Ba/Y의 비가 1.0 및 1.3으로 낮은 경우에는 냉각시의 산소압이 100 mtorr까지는 산소압이 감소함에 따라 임계온도가 큰 변화가 없거나 약간 증가하

는 경향을 보이거나 Y/Ba의 비가 1.8인 박막에서는 냉각시의 산소압이 감소함에 따라 임계온도가 급격히 감소하고 있다. 이는 Ba/Y의 비가 높을 경우 저압산소에서 증착시 많은 양의 Ba이 Y자리에 치환되어 Feenstra 등이 말하는 antisite defect의 농도가 높은 경우에 해당한다 할 수 있으며 낮은 산소압력으로 열처리함으로써 더욱 산소의 점유율이 낮아져 급격한 임계온도의 감소를 나타낸다고 할 수 있다. 반면 Ba/Y의 비가 1.0 및 1.3으로 낮은 경우에는 낮은 산소분압에서 증착하더라도 Ba이 Y자리에 치환해 들어가는 확률이 상대적으로 적어지고 antisite defect의 농도가 낮아 냉각시 산소압이 1기압 이하로 낮아져도 오히려 임계온도가 약간 상승하는 경향을 보인다고 할 수 있다. Fig. 2.3.11에는 동일한 시편에서 측정된 c축 길이의 변화를 냉각중 산소 압력의 함수로 나타내었다. Fig. 2.3.10과 유사한 경향을 보이고 있으며 Ba/Y비가 1.8인 시편에서 냉각시 산소압이 감소함에 따라 급격히 c축 길이가 길어짐으로써 산소의 농도가 급격히 감소함을 알 수 있다.

Fig. 2.3.12는 여러 조건에서 제작된 시편들의 임계온도와 c축 길이의 관계를 그린 것으로 상당히 높은 상관관계가 있음을 알 수 있다.

7. MgO기판을 사용한 YBCO박막 제작

고온초전도체 박막을 마이크로파 응용소자로 사용하기 위해서는 기판의 유전상수가 작아야 한다. MgO기판은 유전상수가 작고 비교적 양질의 박막 제작이 가능한 것으로 알려져 있으나 SrTiO₃에 비해 YBCO와 격자상수의 차이가 크고 균일한 성질의 배향성 박막을 제작하기 위한 적정 공

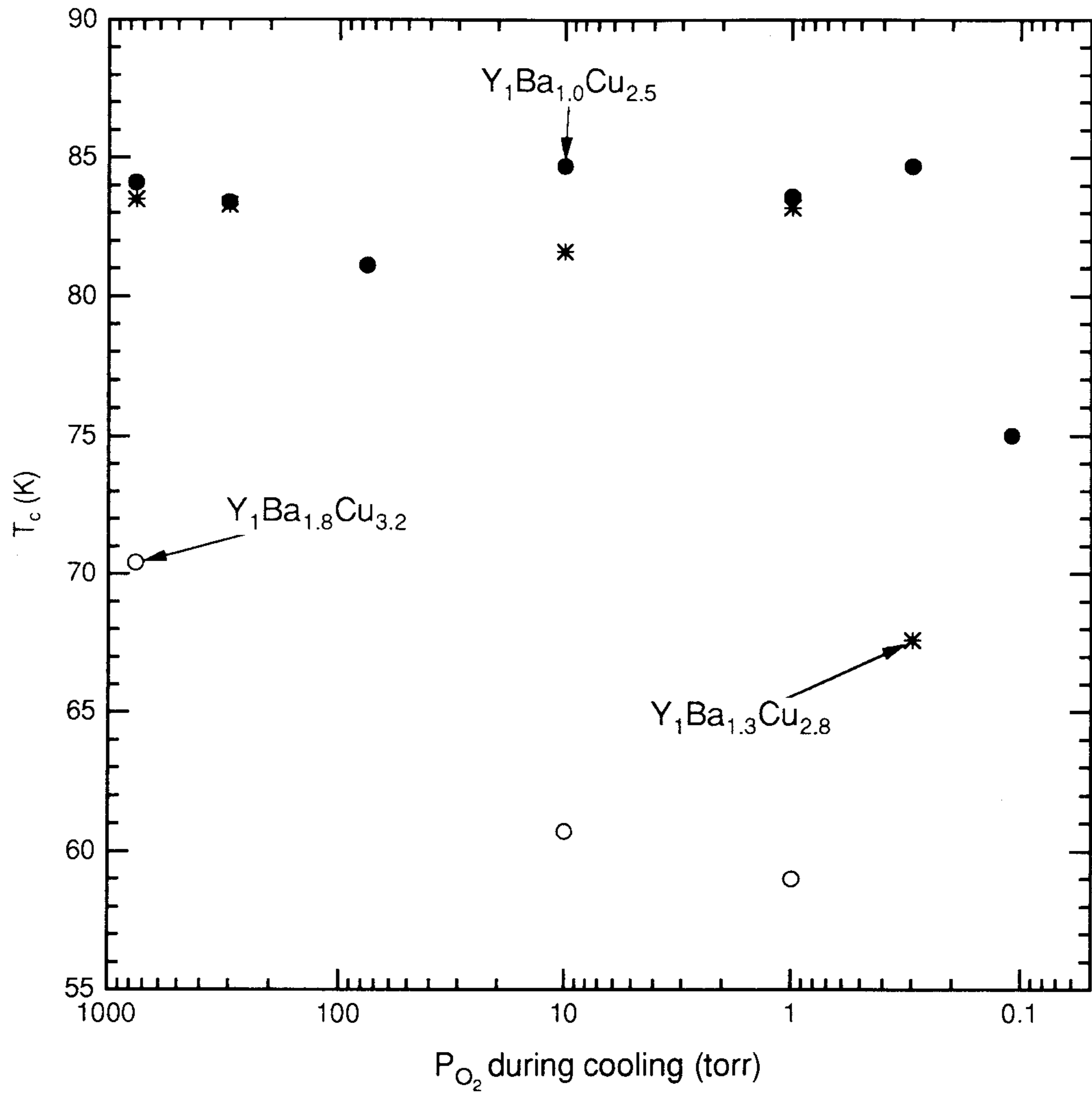


Fig. 2.3.10. Variation of $T_{c, zero}$ with oxygen pressure during cooling after deposition.

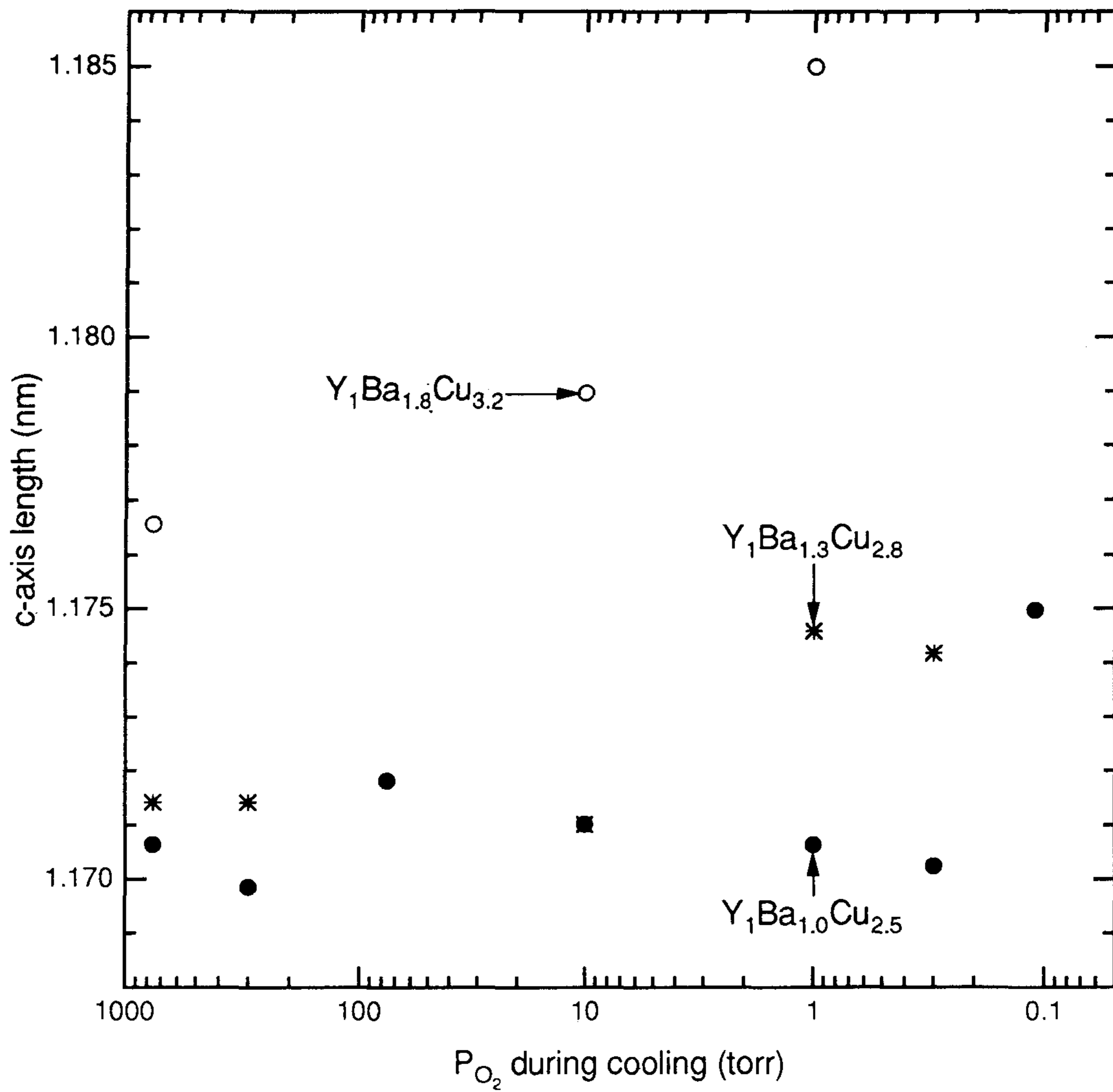


Fig. 2.3.11. Variation of c-axis length with oxygen pressure during cooling after deposition.

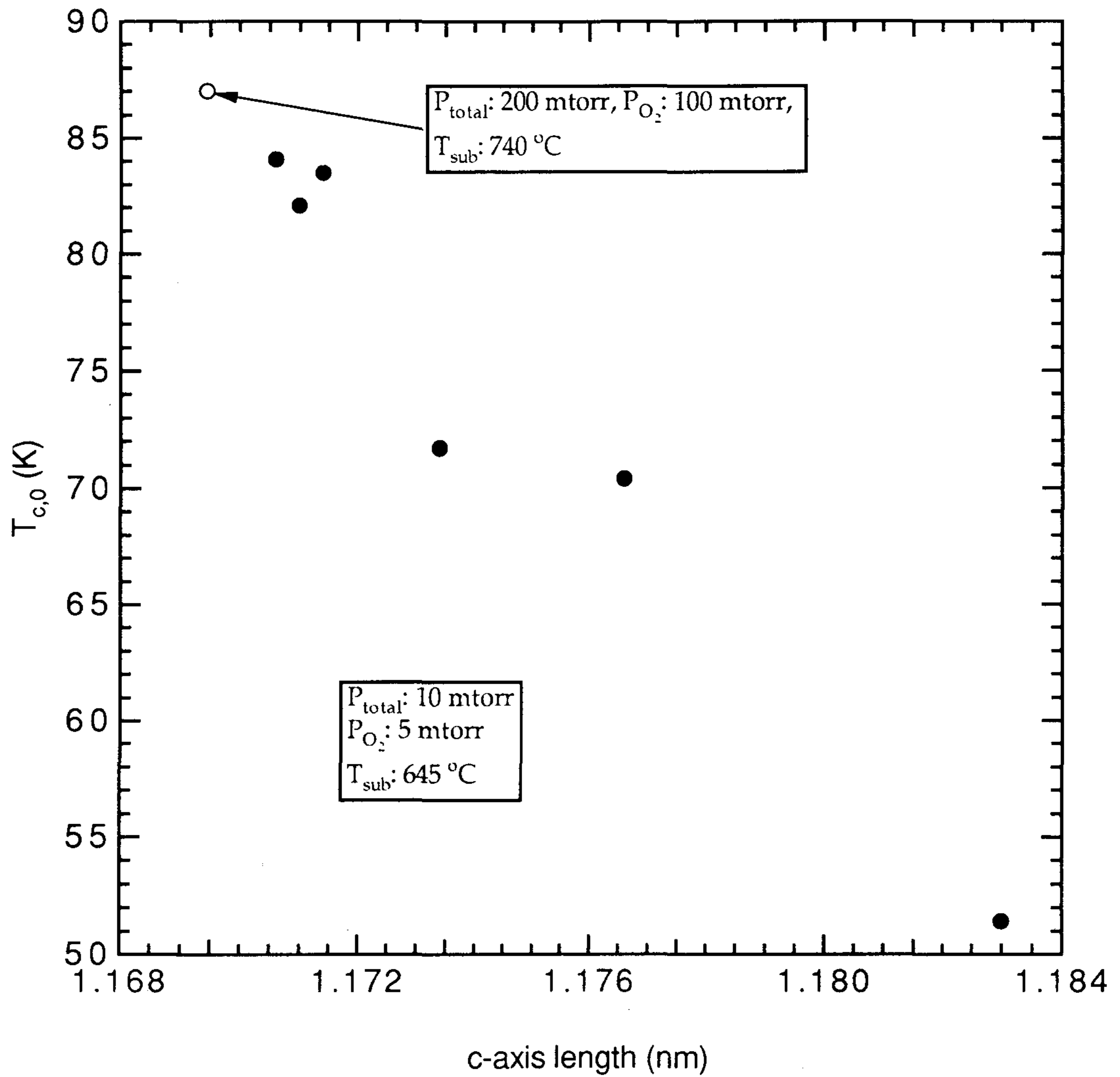


Fig. 2.3.12. Relationship between T_c and c-axis length of YBCO films on SrTiO_3 substrate grown under various conditions.

정 조건(온도, 산소압력 등)의 범위가 좁아 재현성 있게 좋은 특성의 박막을 제작하기가 어렵다. 더우기 기판의 표면 특성에 따라 제작된 박막의 특성이 큰 차이를 보이고 있다. 본 연구에서는 MgO 기판위에서 성장된 YBCO 박막의 증착에 미치는 온도와 압력의 영향을 살펴보았다. 또한 본 연구에서는 MgO기판과 YBCO박막 사이에 존재할 수 있는 in-plane orientation을 살펴보았다.

본 실험에서는 우선 압력을 일정하게 고정시키고, 온도를 변화시키면서 박막의 물성변화를 살펴보았다. Target의 조성은 앞에서 SrTiO_3 를 기판으로 사용하여 수행한 실험에서 가장 좋은 특성을 보인 Y : Ba : Cu의 비가 1 : 1 : 2.5인 target을 사용하였다. 총 증착 압력을 10 mtorr로 고정시킨 후 580~780 °C까지 온도를 변화시켰다.

실험결과 전체 온도구간에서 c축 배향성을 가지는 박막을 얻을 수 있었으나 620 °C 근처에서 가장 뛰어난 배향성을 가지는 박막을 얻을 수 있었다. 증착속도는 압력이 낮기 때문에 15 Å/min로 고압에 비해 빠른 편이었고, 낮은 온도에서 표면이 매끄러운 박막을 얻을 수 있었다. 초전도체를 전자공학적으로 응용하기 위해서는 표면 형상이 좋아야 하는데 저온 저압에서 성장된 박막이 가장 평활한 표면을 가졌다.

Fig. 2.3.13는 증착온도에 따른 임계온도의 변화를 보여주고 있다. 그림에서는 620 °C 근처와 760 °C 근처의 두 곳에서 80 K 이상의 임계온도를 갖는 박막을 얻을 수 있었다. 본 실험에 사용한 산소분압에서 620 °C는 경험적으로 좋은 특성의 박막제작이 가능한 영역으로 알려져 있다. 이 조건은 Fig. 2.3.1의 상평형도에서 phase transition line 근처에 위치하고 있어 초전도 상이 불안정하기 때문에 sputtering시에 각 원자들의 mobility가 커

지고 산소량도 6.1 정도로 적어 각 원자들이 이동하기에 충분한 공간이 제공된다. 반면에 760 °C 근처에서는 온도가 높아져 산소의 농도가 증가하여 금속원자들이 산화물을 형성하더라도 충분한 mobility를 가지므로 격자성장이 용이하여져 높은 임계온도를 가지는 박막을 얻을 수 있는 게 아닌가 추측되지만 이제까지 sputtering에 의한 YBCO 박막제작에 있어 적정 온도 범위가 이와 같이 두 영역으로 분리된다는 보고는 없었다. 두 온도의 중간부분에서는 phase transition line에서 떨어짐에 따라 초전도체의 CuO chain내의 산소량이 증가하여 금속원자들이 산화물을 형성하면서 mobility가 떨어지지만 온도의 증가가 미치지 못해서 좋은 물성을 나타내지 못하는 것으로 생각된다.

Fig. 2.3.14는 결정격자상수와 임계온도와의 관계를 나타내고 있다. SrTiO₃를 기판으로 사용하여 제작된 박막에 비해 격자상수값이 YBCO의 평형 격자상수값인 1.168 nm에서 더 길어져 있는데 이는 MgO가 SrTiO₃보다 YBCO와 격자상수의 부정합(mismatch) 정도가 더 크기 때문이다. Fig. 2.3.12와 마찬가지로 결정격자상수가 작아질수록 임계온도가 증가하였다.

기판의 전처리가 박막의 물성에 미치는 영향을 살펴보기 위하여 1000 °C에서 10시간동안 열처리한 기판을 이용하여 증착을 하였다. 기판은 연마 과정에서 (100)면에서 벗어난 high index로 이루어진 면을 가질 수 있다. 이러한 면들은 열처리 도중에 {100}면들로 이루어진 step을 만들어 기판이 {100}면들로만 이루어지게 되므로 그 위에 증착된 박막은 우수한 물성을 지닐 것이 예측된다. 그러나 실험결과 열처리한 기판과 열처리하지 않은 기판위에 증착된 박막의 물성은 차이가 나지 않았다.

박막 제작시의 산소분위기 효과를 알아보기 위해 산소압을 변화시키면서

박막을 제작하였다. 이 실험에서는 증착온도를 720 °C로 고정시키고 압력을 10~200 mtorr 로 변화시키면서 박막의 특성을 조사하였다. 이때 사용된 target은 주로 Y : Ba : Cu의 비가 1:2:3인 것이었다.

모든 조건에서 c축 배향성을 나타내는 박막을 얻을 수 있었고, 증착속도는 고압에서는 느리고 저압에서는 빠르기 때문에 150 mtorr 이상의 고압에서는 4시간, 30 mtorr 이하의 저압에서는 2시간 30분 동안 증착하였고, 중간 압력에서는 3시간동안 증착하였다. 압력이 박막의 표면에 미치는 영향을 광학현미경을 통하여 관찰하였는데, 고압에서는 증착속도가 느리므로 기공이 적고 치밀한 박막이 얻어졌으며 저압에서는 상대적으로 기공이 많은 open structure를 가졌다.

Fig. 2.3.15는 증착압력에 따른 c축 결정격자상수의 변화를 보여준다. 증착압력이 커질수록 격자상수가 감소함을 알 수 있다. 격자상수는 11.59~11.69 Å까지 변화한다. 낮은 압력에서는 앞에서 설명된 바와 같이 Ba의 Y치환으로 설명될 수 있으나, 높은 압력에서 관찰되는 평형값보다 작은 결정격자상수에 대해서는 아직 정확한 설명이 어려운 상태이다. 다만 산소분압이 높으므로 거꾸로 Y이 Ba 자리에 들어가는 현상이 일어나는 것이 아닌가 하고 추측하고 있다. 50 mtorr에서 덩어리 시편의 격자상수에 가장 가까운 격자상수를 갖는 박막을 얻을 수 있어 적정 증착조건이라 생각할 수 있으나 실제 측정된 임계온도는 다른 압력에서 증착한 박막과 별다른 차이가 없었다. YBCO는 기판인 MgO와 격자불일치가 크므로 초전도상이 평형격자상수를 가지면 박막과 기판사이에 큰 응력이 생기고 이것이 물성에 나쁜 영향을 미칠 수 있다. 따라서 평형격자상수를 가지는 조건이 최적조건이라고 말할 수 없게 된다. 또한 약간의 Ba와 Y의 치환효

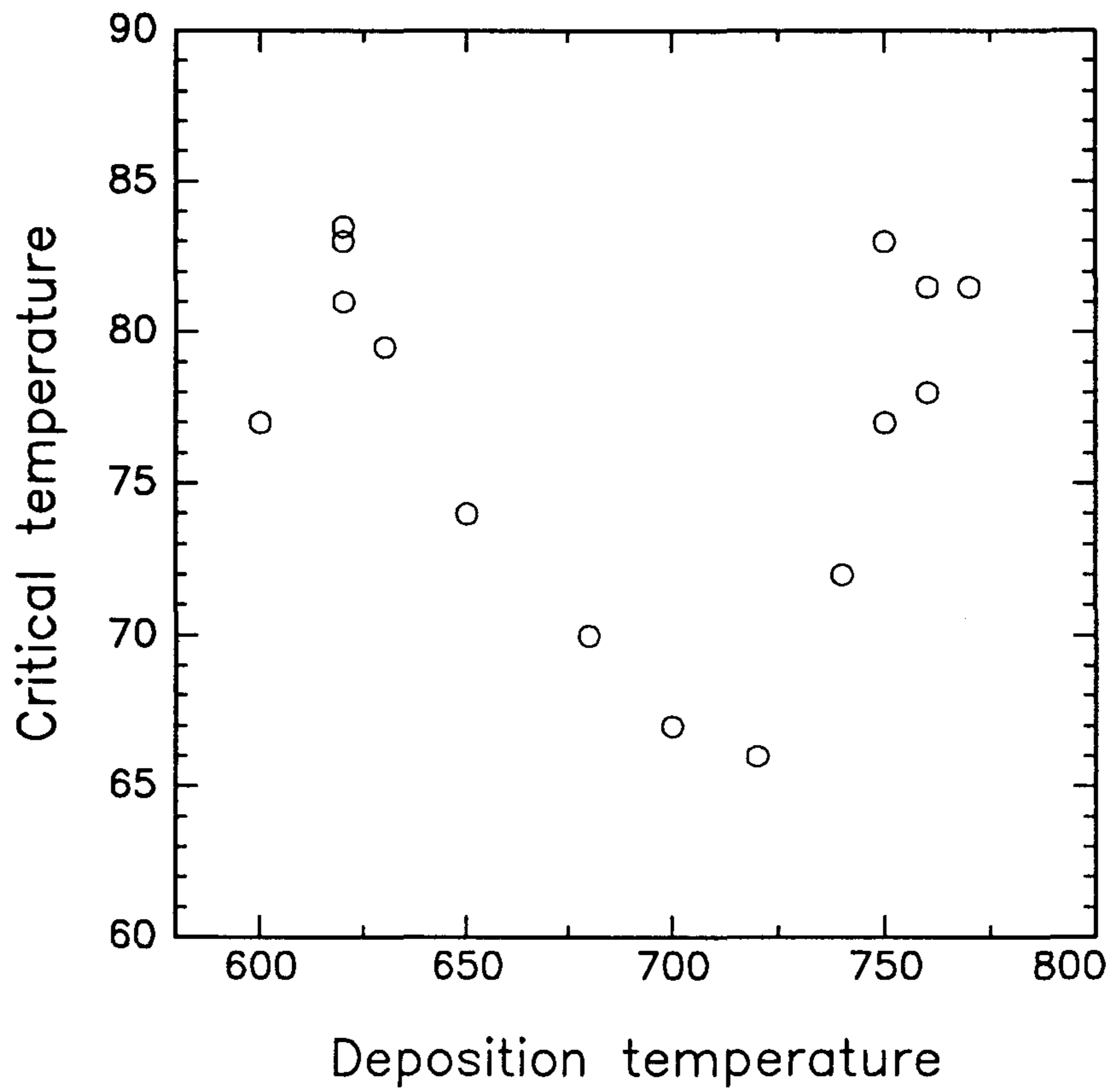


Fig. 2.3.13. Variation of the critical temperatures of YBCO films deposited on MgO at different deposition temperatures.

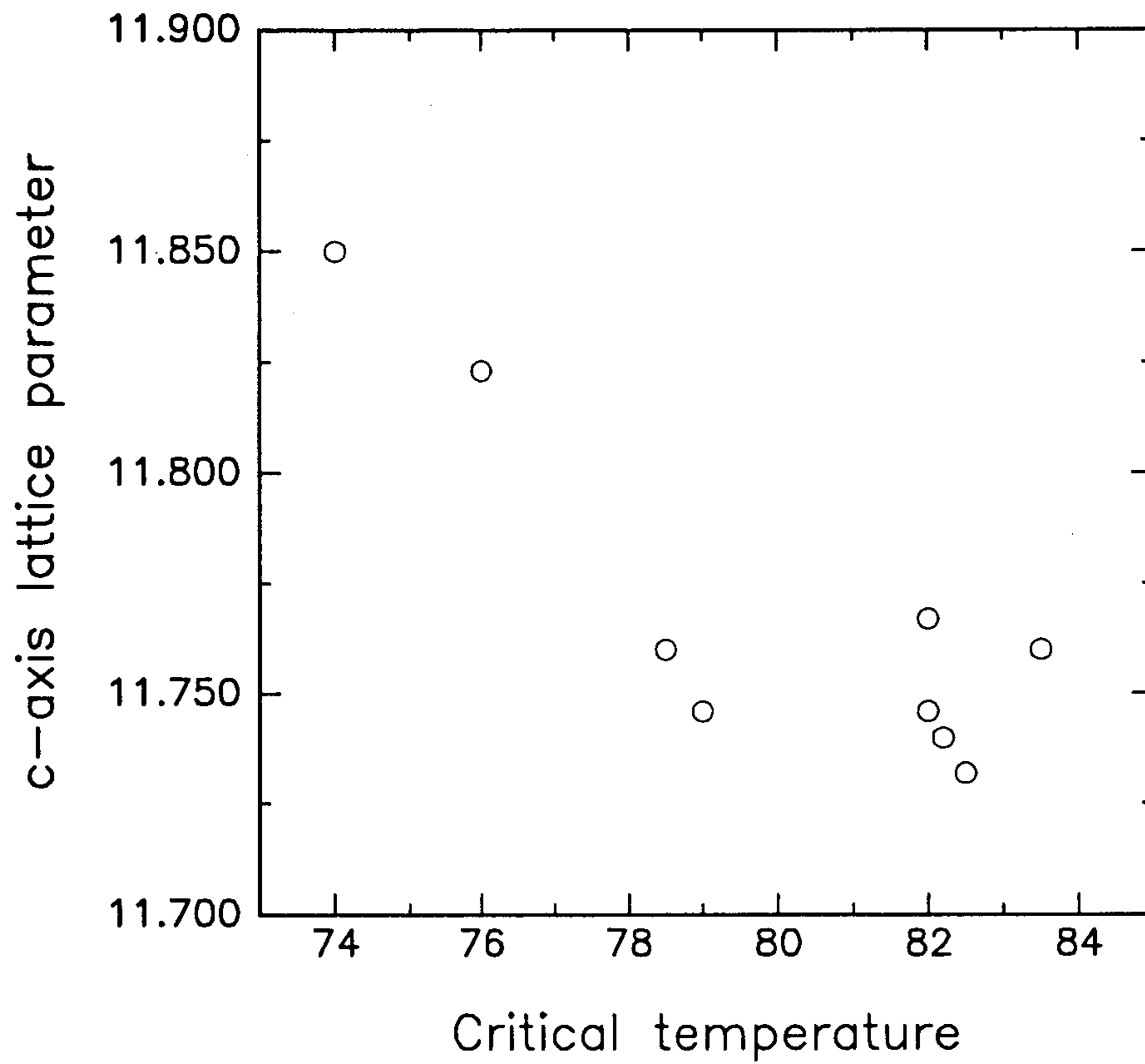


Fig. 2.3.14. Relationship between c-axis length and the critical temperature of the YBCO films deposited on MgO.

과가 생기면 초전도상내에 point defect가 생기게 되고 이러한 결함이 pinning center로 작용하여 임계전류밀도를 증가시키고,^[19] 격자상수도 증가시켜 박막과 기판의 응력을 감소시키는 등의 복잡한 요인들이 작용하므로 정확하게 평형격자상수값을 갖는 조건보다는 약간 크거나 작은 격자상수를 가지는 조건에서 오히려 뛰어난 물성을 가지는 박막을 얻을 수 있으리라 생각된다.

MgO는 YBCO박막과의 격자불일치도가 크므로 다른 기판과는 달리 기판 면상에서 여러가지의 배향이 가능하다. Hwang 등은^[20] Balluffi 등이^[21] 주장한 near coincidence site lattice theory를 적용하여 8가지의 in plane orientation이 존재할 수 있다고 설명하였다. 이러한 in plane orientation은 전자현미경이나 X-ray를 이용한 ϕ -scan방법으로 측정할 수 있다. 그러나 본 연구에서는 박막의 미세구조를 통하여 쉽게 박막의 in plane orientation을 관찰하였다. 고온에서는 증착속도를 빠르게 하면 공동이 쉽게 생성되므로 이러한 조건에서 공동의 모양을 관찰하여 in plane orientation을 알아보았다. 한 박막에서 대부분의 공동은 특별한 방향성을 나타내지 않고 자라거나 cube on cube관계를 가진다. 그러나 박막중의 일부분을 살펴보면 Fig. 2.3.16과 같이 공동이 MgO의 {110}면에 평행한 방향을 가진다. YBCO는 MgO와 cube on cube 관계를 가지므로 위의 부분은 YBCO의 $\langle 100 \rangle$ 방향이 MgO의 $\langle 100 \rangle$ 방향과 45° 의 각을 이루면서 성장하였음을 알 수 있다. 45° 이외에도 다른 각도관계를 가지는 공동들도 관찰되지만 그중에서 가장 많은 것은 45° 의 각도관계를 가지는 것들이다. 이와같이 공동의 모양을 보고 박막과 기판의 방향관계를 추측할 수 있다.

실제로 X-ray ϕ -scan방법을 통하여 in plane orientation을 알아보았다.

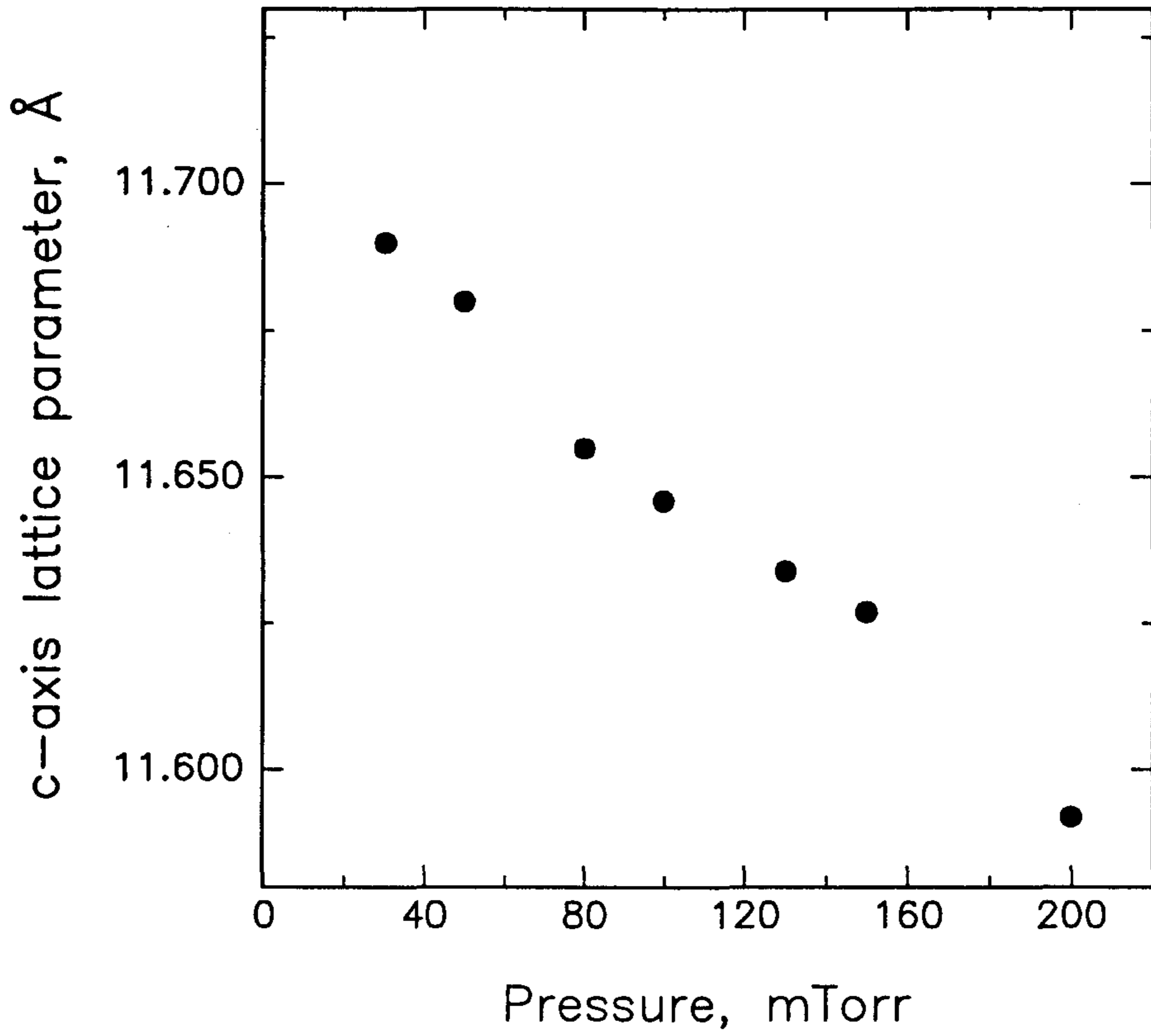


Fig. 2.3.15. Variation of c-axis length of YBCO thin film deposited on MgO at 720 °C under the different deposition pressure



Fig. 2.3.16. The microstructure of the voids in as grown YBCO film on MgO substrate.

Fig. 2.3.17의 (a)는 MgO의 {220}면을 ϕ -scan한 것인데 정확하게 90° 간격으로 4-fold symmetry를 갖는 peak가 관찰되었다. Fig. 2.3.17의 (b)는 YBCO의 {110}면을 ϕ -scan한 결과인데 90° 간격의 큰 peak 사이에 45° 간격으로 작은 peak들이 나타나고 있다. 이는 박막의 일부분이 MgO에 대해 상대적으로 45° 회전되었다는 것을 나타내는 것이며 peak의 intensity가 큰 peak에 비해 아주 작으므로 회전된 부분은 아주 적은 분율이라는 것을 알 수 있다. 광학현미경을 통하여 공동의 모양을 관찰하여도 회전된 부분은 최고 10%를 넘지 못할 것으로 추정된다.

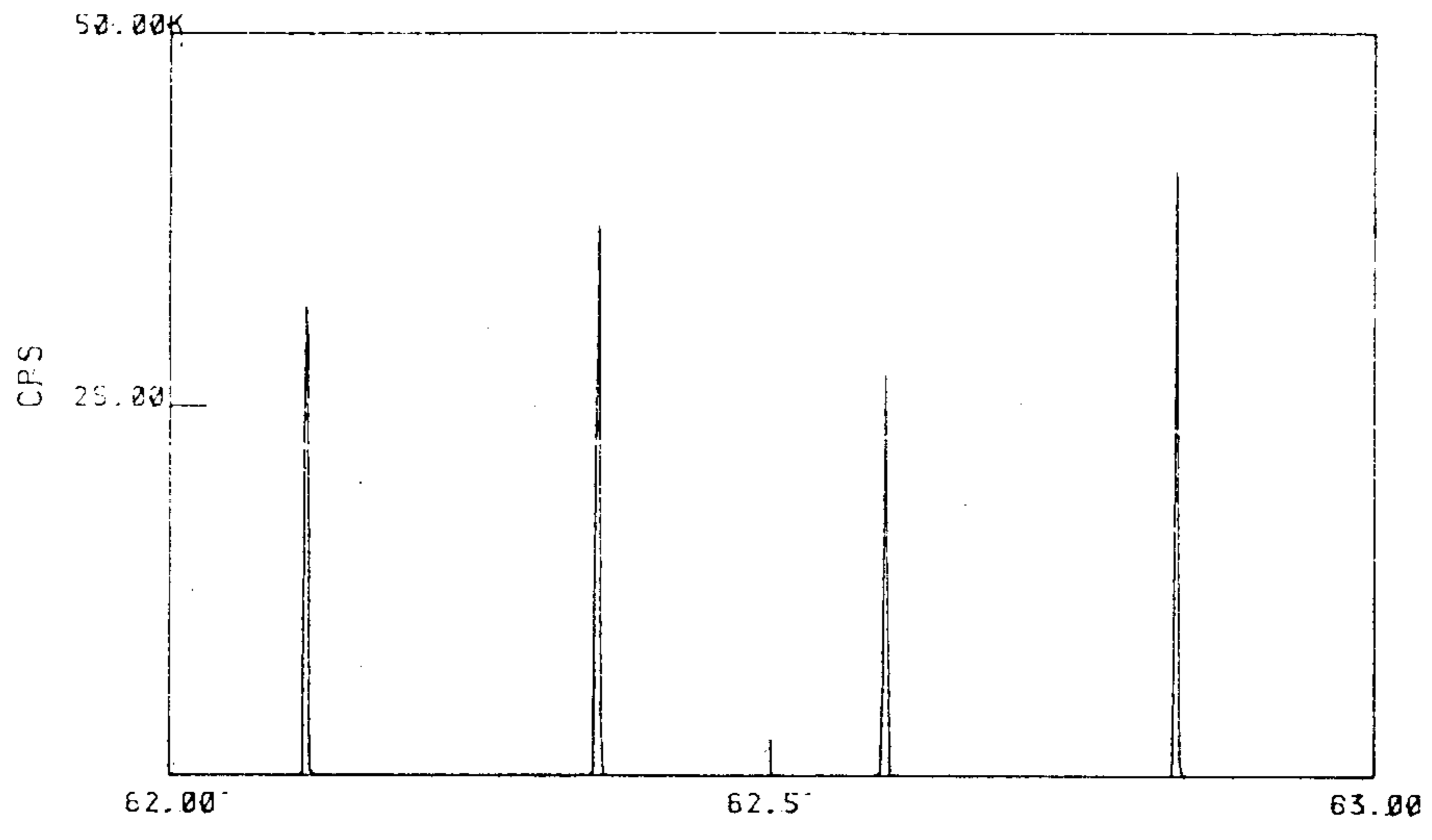
620°C 이하의 저온에서 증착한 박막의 경우는 치밀한 표면을 가지므로 직접적인 미세조직 관찰로는 회전 여부를 알 수 없었다. Fig. 2.3.18에서와 같이 이들 박막을 1000°C 에서 melting 시키거나 800°C 에서 10시간 동안 annealing시키면 치밀하던 박막이 open structure로 가지게 되어 입자들의 모양을 관찰할 수 있으므로 각도관계를 알 수 있다. 역시 여기에서도 여러가지 각도를 가진 공동들이 관찰되므로 저온에서도 기판과 박막은 여러가지 in plane orientation을 가지고 있음을 알 수 있다. 이런 박막에서도 X-ray ϕ -scan방법을 통하여 45° 회전된 peak를 관찰할 수 있었다.

MgO의 이러한 성질을 활용하면 그 위에 증착된 YBCO박막 내에 예리한 결정입계를 형성할 수 있어 약접합 제작에 응용할 수도 있다. 실제로 MgO 기판의 반쪽을 가리고 노출된 쪽만을 ion miller를 이용하여 etching한 후 YBCO박막을 증착하면 etching한 면에서 성장한 YBCO 박막 부분이 다른 반쪽면에서 성장한 박막에 대해서 45° 회전된다고 알려져 있다.^[22]

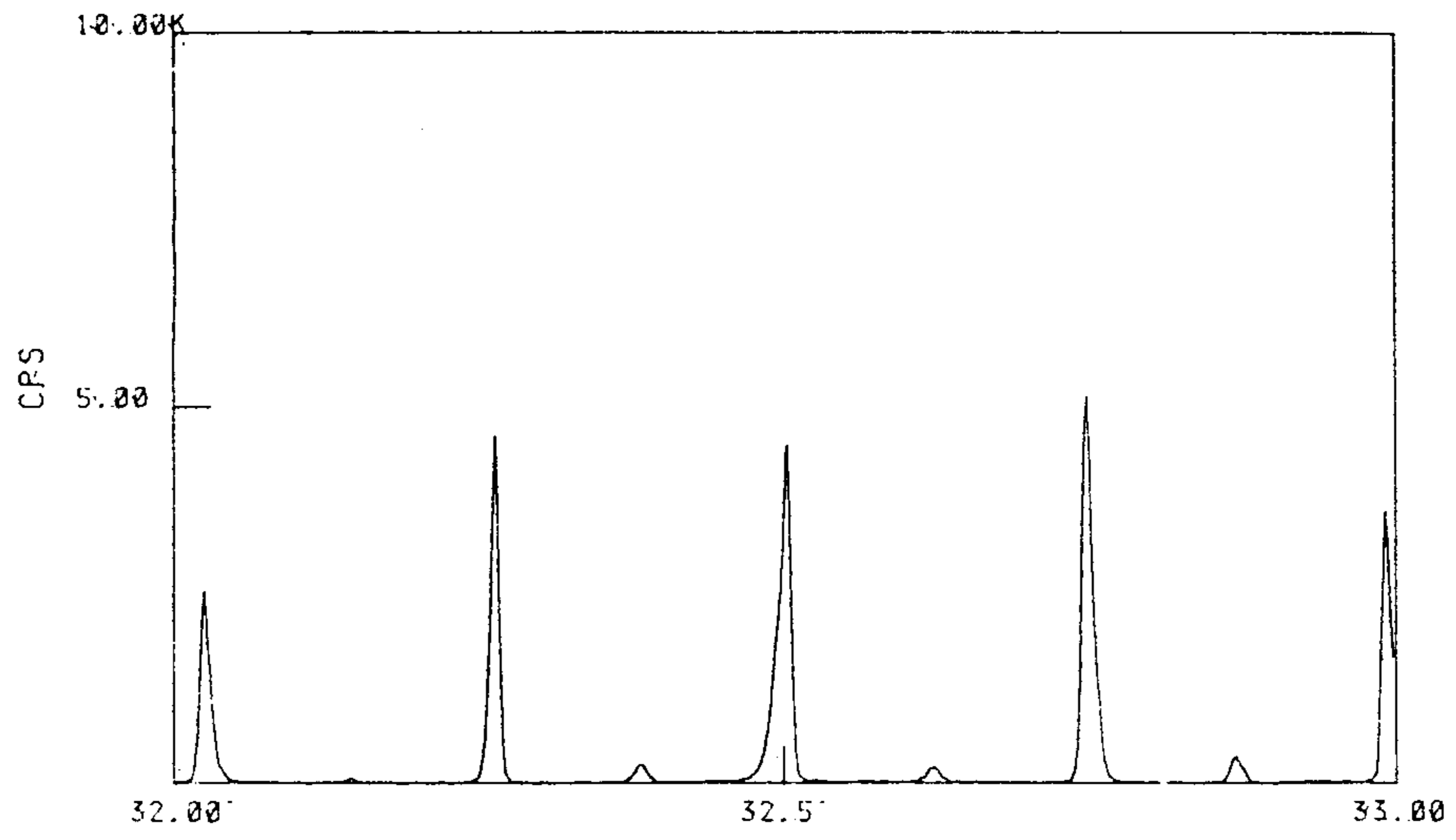
Fig. 2.3.19는 Ar^+ 이온빔으로 각각 15 nm와 45 nm 깊이로 etching한 MgO기판위에 최적조건인 620°C 에서 3시간 동안 증착한 박막의 ϕ -scan결

과이다. Fig. (a)에는 기판으로 사용된 MgO의 {220}면을 ϕ -scan한 것인데 정확하게 90° 간격으로 4-fold symmetry를 갖는 peak가 나타난다. Fig. (b)에서는 15 nm로 etching한 기판을 사용한 YBCO 박막의 {110}면을 ϕ -scan한 결과이다. 45° 간격마다 비슷한 intensity를 가지는 {110} peak들이 나타난다. Fig. (c)는 milling한 부분을 가리고 ϕ -scan한 결과이다. 약간의 회전된 부분이 있지만 MgO peak와 같은 4-fold symmetry를 가지므로 cube on cube관계를 가진다는 것을 알 수 있다. Fig. (b)와 Fig. (c)로부터 milling한 부분위에 증착된 YBCO박막은 다른 부분에 대해 45° 회전되었다는 것을 알 수 있다. Fig. (d)는 43 nm로 etching한 기판을 사용한 YBCO 박막의 {110}면을 ϕ -scan한 결과이다. Fig. (b)와는 달리 전혀 회전된 부분이 나타나지 않았다. Ion milling시간이 MgO기판과 YBCO박막의 in plane epitaxy에 미치는 영향에 대한 명확한 원인은 밝혀져 있지 않으며 앞으로 더 연구해야할 필요가 있다.

이러한 방법을 통하여 제작한 박막은 초전도 박막의 입계특성을 연구하는데 쓰일 수 있으며, Josephson junction 제작 등에도 응용할 수 있다. 특히 기존의 biepitaxial 박막을 제작하는 것보다 간단한 방법으로 깨끗한 boundary를 얻을 수 있을 뿐 아니라 거의 평면구조를 지니므로 유용할 것으로 보인다.

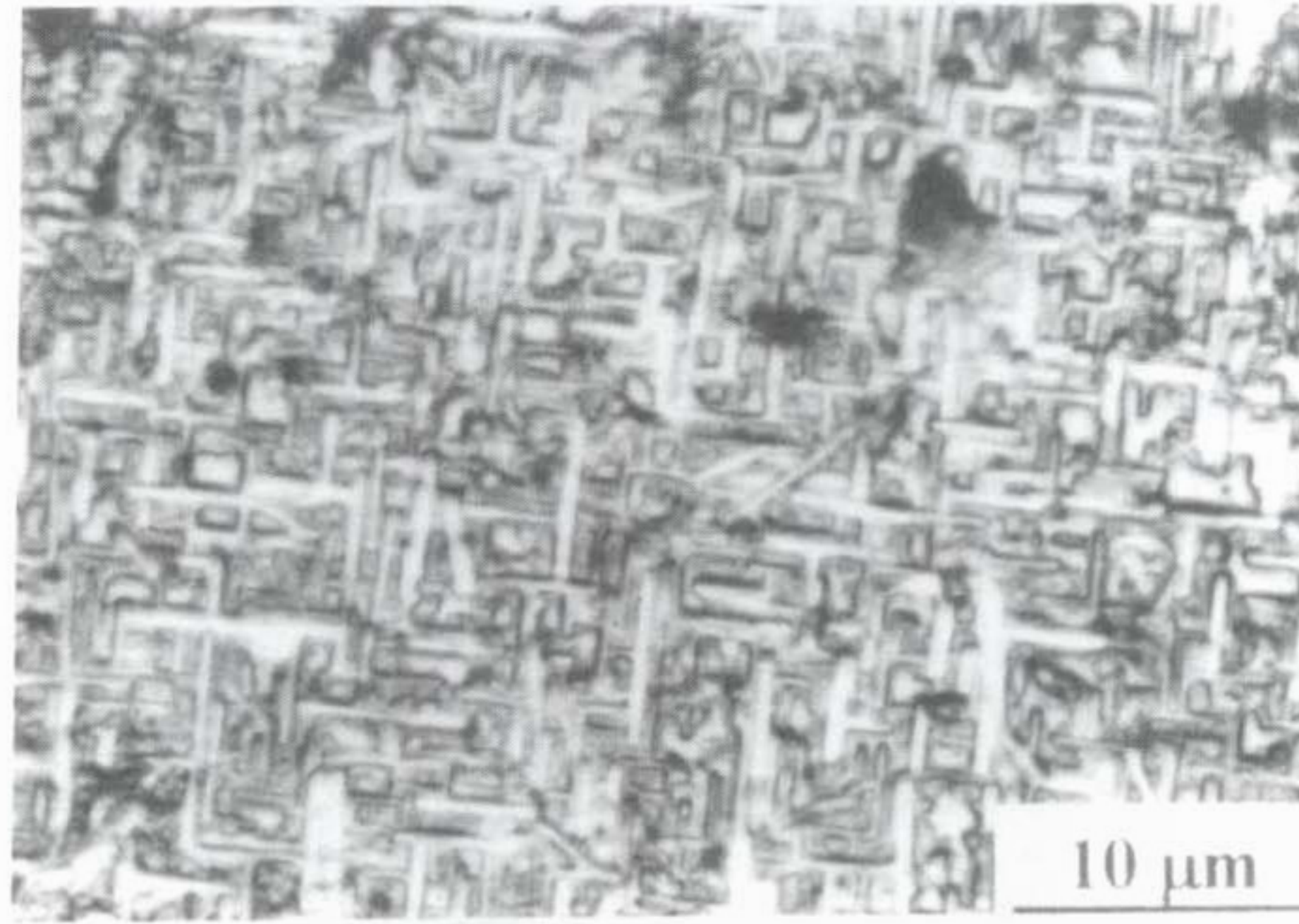


(a)

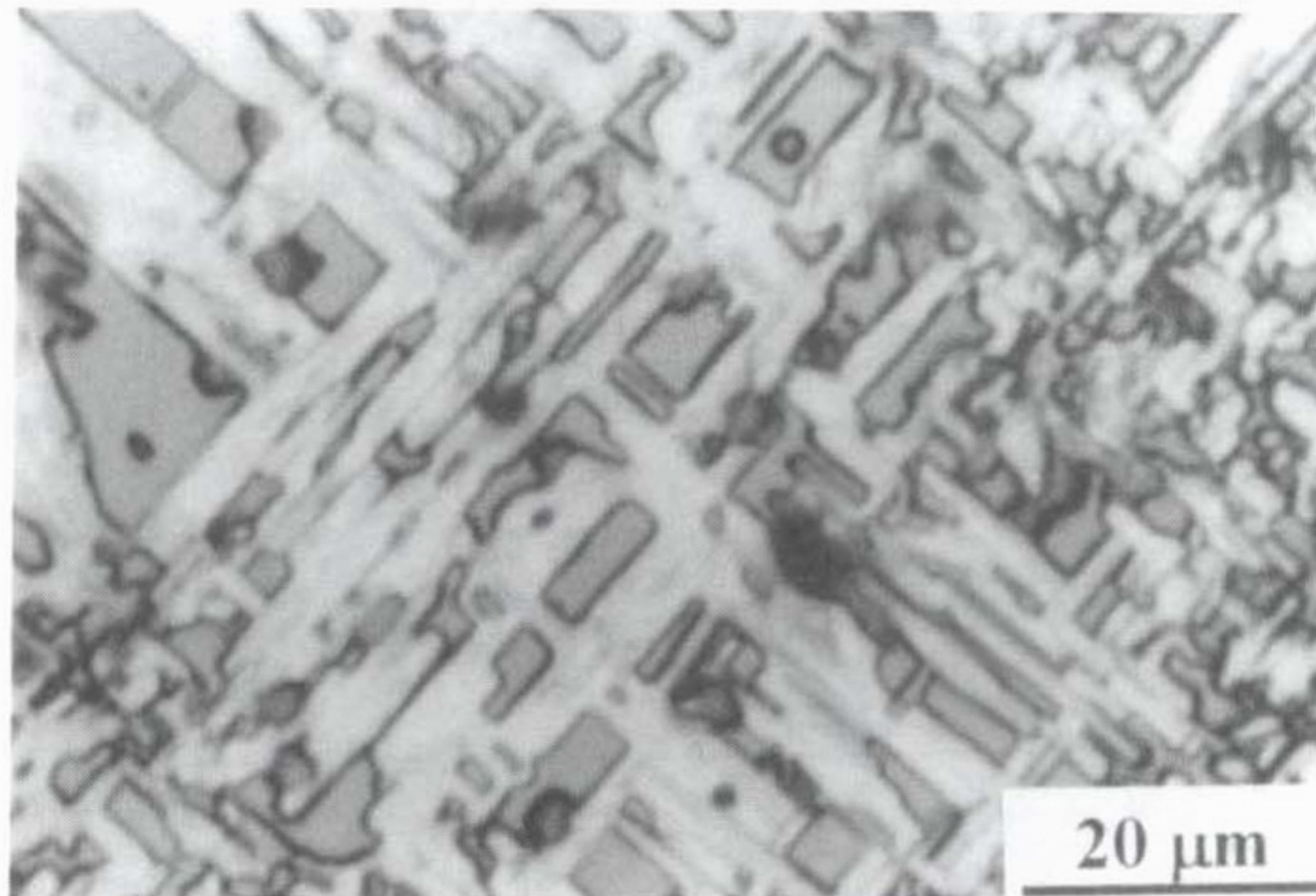


(b)

Fig. 2.3.17. X-ray ϕ -scan diffraction pattern of (a) MgO(220) peak and (b) YBCO(110) peak.

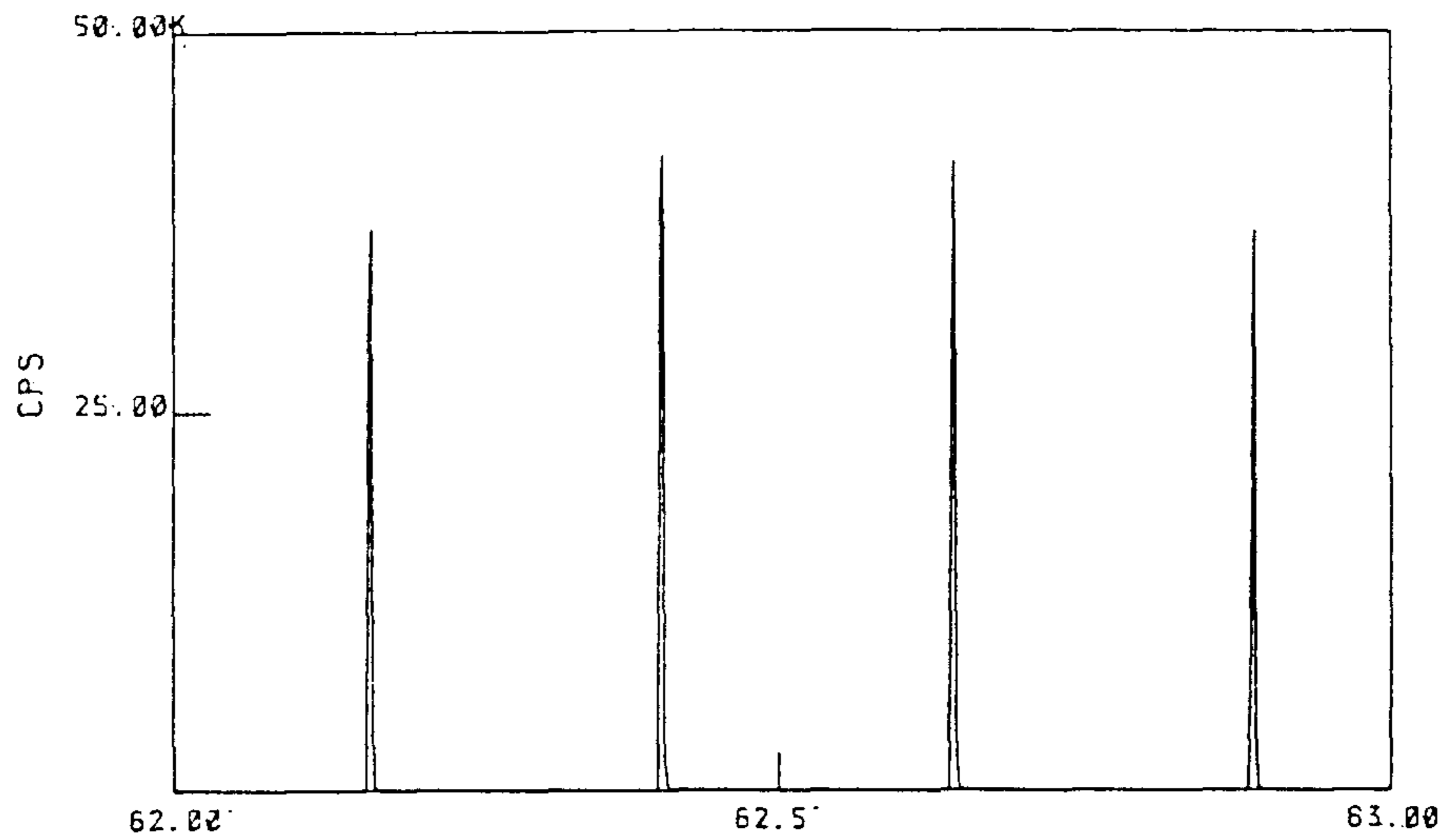


(a)

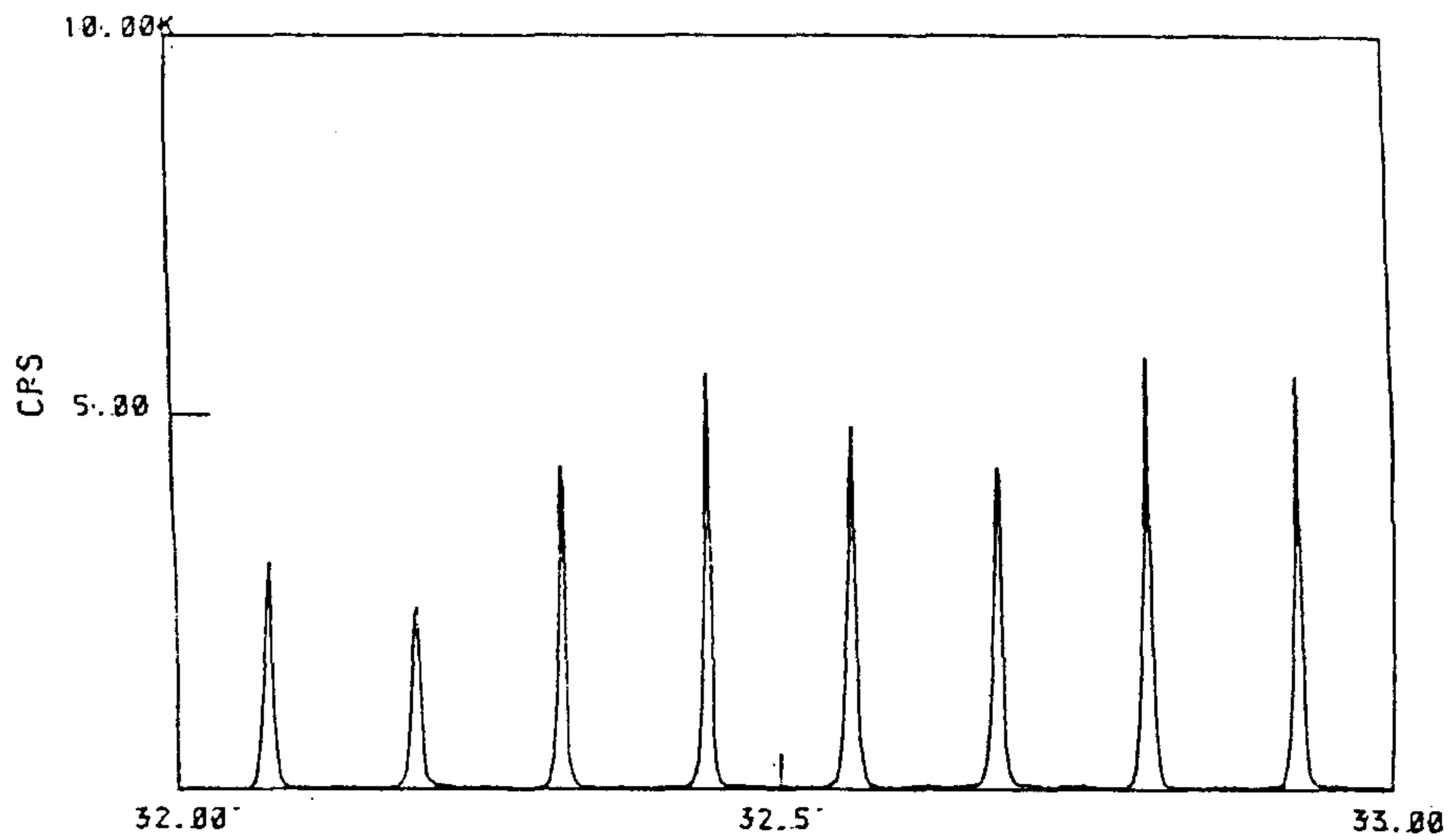


(b)

Fig. 2.3.18. The microstructures of the voids in YBCO films grown at 620 °C on MgO after thermal treatment at (a) 1000 °C for 1 min and (b) 800 °C for 10 h.

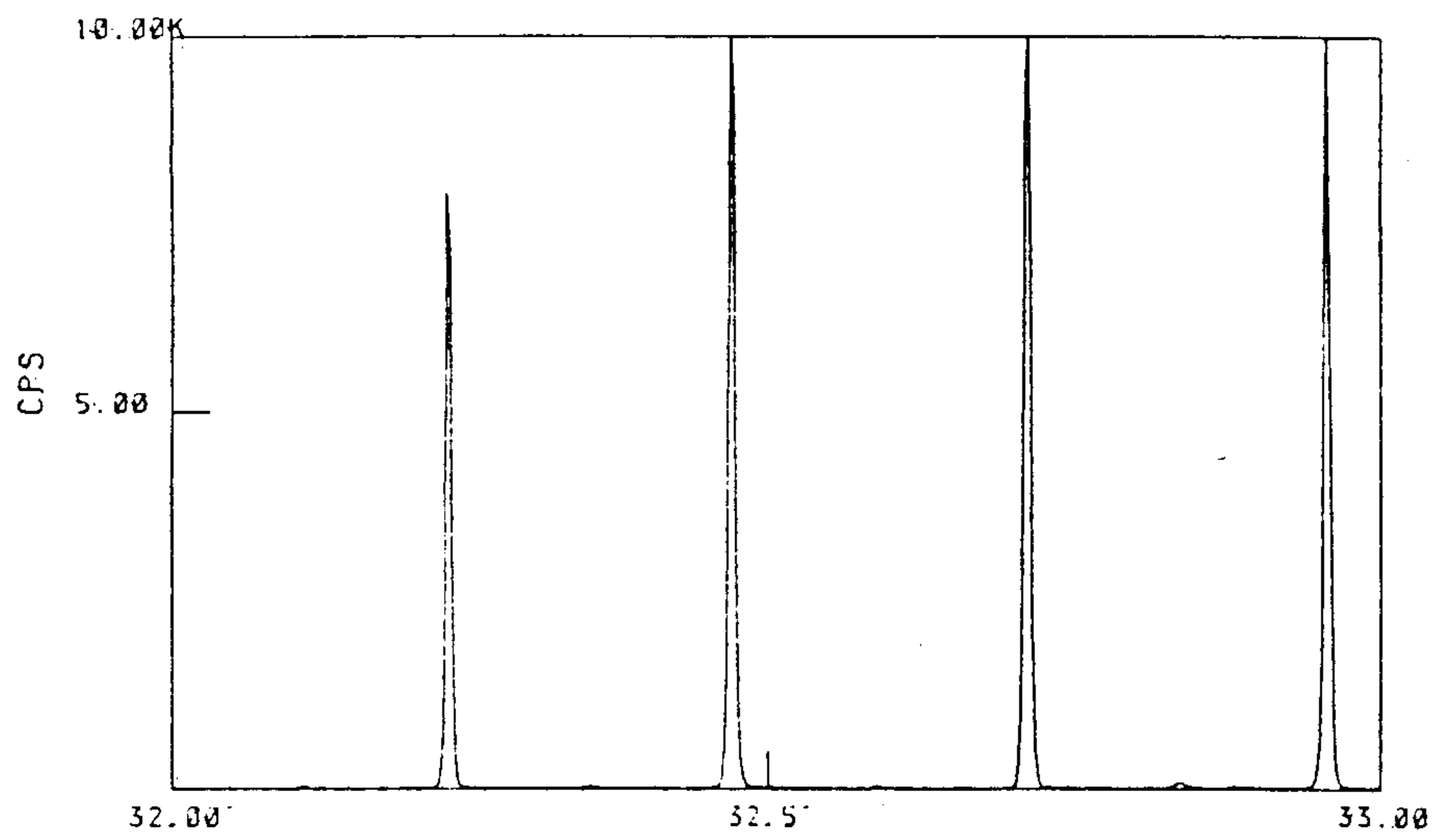


(a)

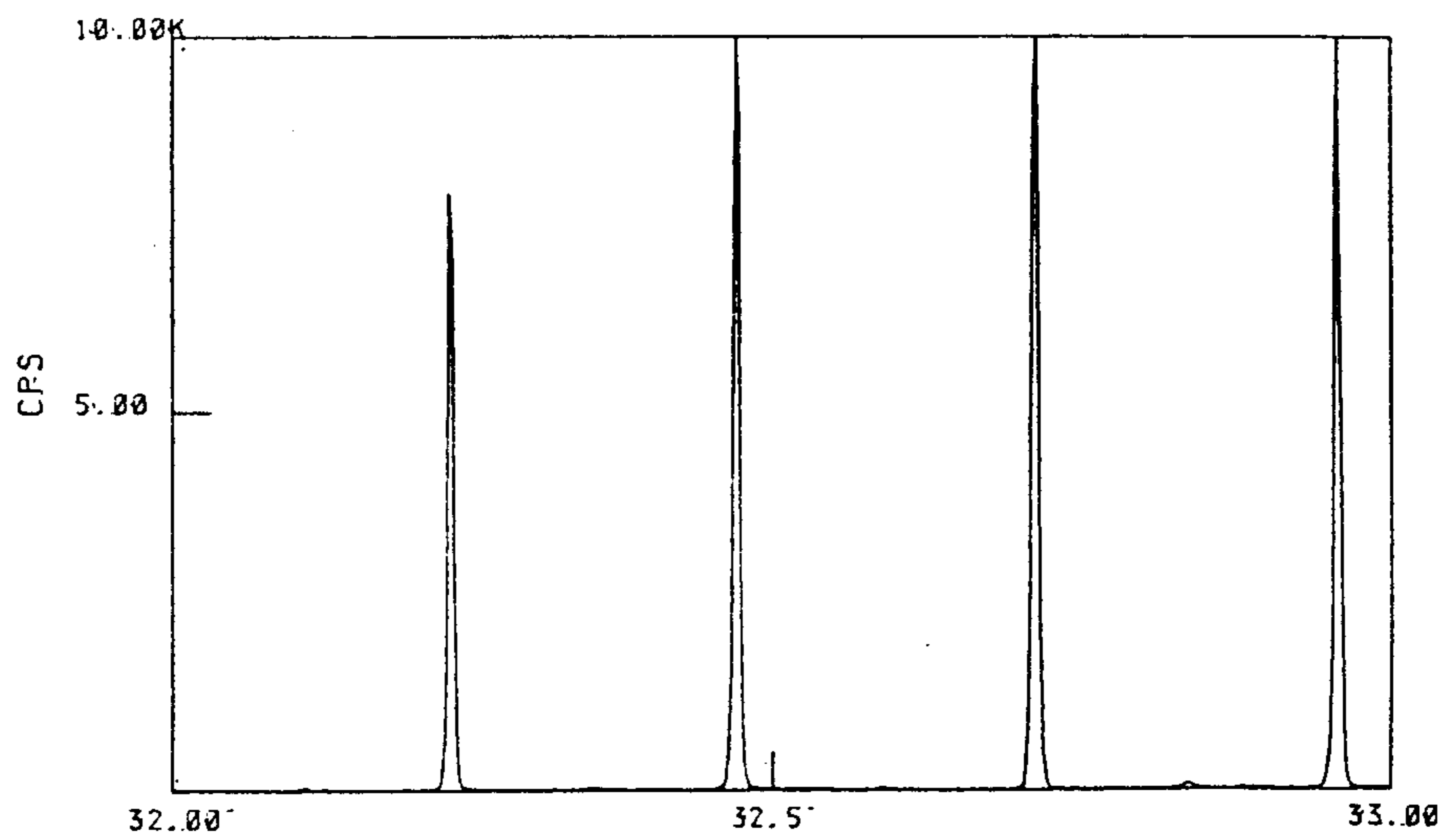


(b)

Fig. 2.3.19. X-ray ϕ -scan diffraction patterns.
 (a) MgO(220) peak from the substrate,
 (b) YBCO(110) peak of the film deposited on MgO etched by 15 nm,
 (c) YBCO(110) peak of the film deposited on unetched MgO,
 (d) YBCO(110) peak of the film deposited on MgO etched by 43 nm.



(c)



(d)

Fig. 2.3.19. Continued

제 4 절 Ar ion milling장치 제작

박막을 이용한 device 제작에서 필수 공정중의 하나인 식각을 위해 전용 장비인 Ar ion milling 장치를 제작하였다. Milling gun은 Ion Tech inc. model no. 5-1500-250 5 cm beam source를 사용하였는데 ion beam을 중성화시켜 기판 표면의 손상을 최소화시키기 위해 neutralizer filament가 장착되어 있다. 식각할 기판이 붙는 anode는 cathode(ion source) 표면에서 약 20 cm 가량 떨어져 있어 beam density가 일정 면적이상 uniform하도록 하였다. 또한 anode에 냉각수를 흘려 식각시 ion beam에 의해 기판의 온도가 올라가 기판 mask로 주로 사용하는 PR이 변형하는 것을 막도록 하였다.

Fig. 2.4.1은 제작된 Ar ion milling장치의 전면사진이다. 진공 chamber 앞쪽에 내부를 볼 수 있는 window가 2개 있으며 위쪽 chamber를 hoist로 들어 올려 sample을 anode에 silver paste 등을 이용하여 붙이도록 하였다. Chamber안의 진공은 diffusion pump를 사용하여 뽑고 식각시 mass flow controller(Ion Tech MPS-3000FC)를 이용하여 Ar gas를 2~3 sccm씩 흘려준다.

Table 2.4.1은 SrTiO₃ 기판 표면에 step를 만들때 조건을 나타낸다. 이와 같은 조건하에 SrTiO₃ 기판의 식각률은 50 Å/min인 것으로 나타났다. 식각시 비록 anode에 냉각수를 흘리고 열전달이 쉽게 되도록 기판을 anode 표면에 silver paste 등으로 단단히 붙이지만 여전히 기판의 온도가 올라가 mask로 사용한 PR의 온도가 올라간다. 이때 PR 경계 부분이 흘러 식각된 기판의 step edge 부분이 완만한 기울기를 갖거나 edge 선이 울퉁불퉁

하게 될 가능성이 생긴다. 따라서 이를 방지하기 위해 짧은 시간 식각하고 다시 beam을 끄고 기판을 식힌 후 다시 짧은 시간 식각하는 방법으로 장시간의 기판 식각을 수행한다.

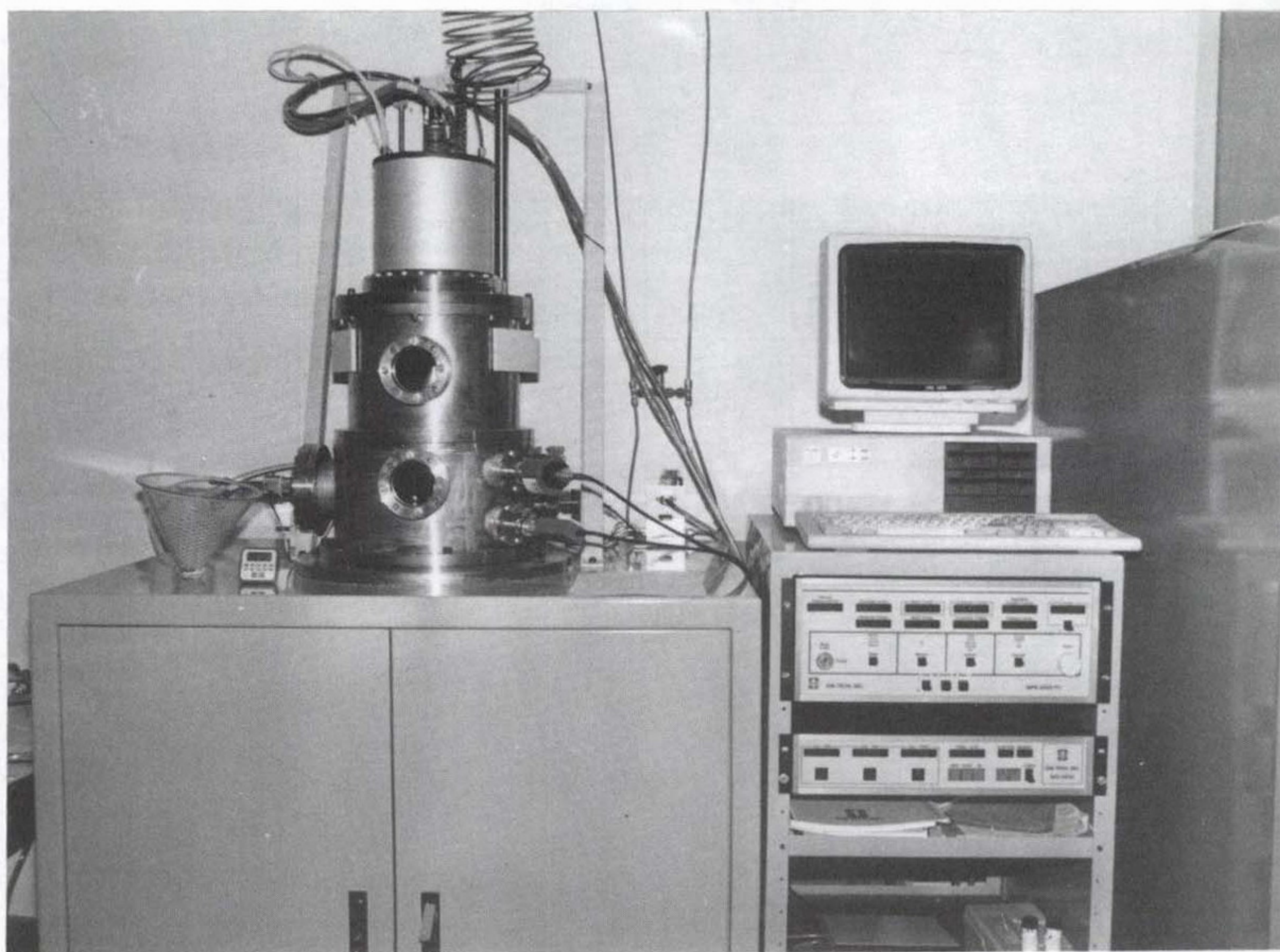


Fig. 2.4.1 Ar ion milling system.

Table 2.4.1. Ar ion milling conditions for step edge on SrTiO₃ substrate.

_____ 쪽

사용일자 : 1993. 3. 31. 사용자 : 박 근 선
 베이스 진공도 : 1.2×10^{-5} mbar
 아르곤 압력 : 1.8×10^{-4} mbar 아르곤 유속 : 1.92 sccm

Cathode Current	Discharge Current	Beam Current	Accelerator Current	Neutralizer Emission Current	Probe
2.99 A	0.34 A	24 mA	0 mA	0 mA	mA
	Discharge Voltage	Beam Voltage	Accelerator Voltage	Filament Current	
	55.0 V	300 V	250 V	1.00A	

용도 : 식각 (O) 클리닝 ()
 재료 : SrTiO₃ 마스크 : PR
 시간 : 30 min 사이클 : 3분 밀링 2분 휴식
 각도 : normal

기타 사항 :

식각 깊이 : 1500 Å _____
 표면 상태 : _____
 기타 사항 :

제 5 절 결 론

본 장에서는 laser ablation과 off-axis rf sputtering방법을 사용하여 YBCO박막을 제작할 때 필요한 조건에 관한 연구를 수행하였다. 이미 1~2차년도 연구를 통해 응용 가능한 양질의 단일층 박막제작에는 성공하였지만 여기서는 증착조건들이 박막 특성에 미치는 영향에 대해 보다 정량적인 연구를 수행하였다.

Laser ablation방법으로 YBCO박막을 제작할 때 입사빔의 에너지, 산소압, 기판의 온도가 증착박막의 특성에 어떻게 영향을 미치는가에 대해 박막의 전기적 성질과 SEM구조, X-ray회절실험 등을 통해 규명하였다. 또한 SQUID 제작과 관련한 YBCO, PBCO, SrTiO₃, CaRuO₃ 등으로 된 다층구조들을 제작하여 결정배향, 임계특성 및 확산 등에 대하여 조사하였다. 물질에 관계없이 모두 epitaxial한 결정배향 특성을 가졌으며 확산이 거의 발견되지 않았고, YBCO 다층막의 임계특성은 CaRuO₃ 박막이 위를 덮은 경우를 제외하고는 모두 YBCO 단일층과 같은 특성을 보였다.

Off-axis rf sputtering에서는 산소분압이 최적 증착온도와 깊이 관련되어 있음을 밝히고 낮은 산소분압하에서 YBCO박막을 증착할 때 target의 Ba/Y비에 따른 임계온도와 격자상수의 변화를 조사하였다. 낮은 산소분압이 낮은 증착온도와 빠른 증착속도로 큰 잇점을 가지며 박막 형성 과정을 밝히는데 중요한 실험변수로 사용될 수 있음을 알 수 있었다. 또한 박막 응용소자 제작시 필요한 박막 및 기판의 식각을 위해 전용장비인 5 cm Ar ion beam milling장치를 제작하였다.

참 고 문 헌

- [1] B. Roas, B. Hensel, G. Saemann-Ischenko, and L. Schultz, Appl. Phys. Lett. 54, 1051(1989).
- [2] R.K. Singh, J. Narayan, A.K. Singh, and J. Krishnaswamy, Appl. Phys. Lett. 54, 2271(1989).
- [3] G. Koren, A. Gupta, E.A. Geiss, A. Segmuller, and R.B. Laibowitz, Appl. Phys. Lett. 54, 1054(1989).
- [4] A. Inam, M.S. Hegde, X.D. Wu, T. Venkatesan, P. England, P.F. Miceli, E.W. Chase, C.C. Chang, J.M. Tarascon, and J.B. Wachtman, Appl. Phys. Lett. 53, 908(1988).
- [5] M.C. Foote, B.B. Johns, B.D. Hunt, J.B. Barner, R.P. Vasquez and L.J. Bajuk, Physica C 201 176(1982).
- [6] H.F. Sakeek, M. Higgins, W.G. Graham, T. Morrow, R.J. Turner and D.G. Walmsely, J. Appl. Phys. 70, 2455(1991).
- [7] J.Q. Zheng, M.C. Shih, S. Williamms, S.J. Lee, Hiroshi Kajiyama, X.K. Wang, Z. Zhao, K. Viani, S. Jacobson, P. Dutta, R.P.H. Chang and J.B. Ketterson, Appl. Phys. Lett. 59, 231(1991).
- [8] R. Borman and J. Nolting, Appl. Phys. Lett. 54, 21(1989).
- [9] S.G. Lee, C.C. Chi, G. Koren, A. Gupta and A. Segmüller, SPIE vol. 1287 High Tc Superconductivity : Thin Films and Applications, 30(1990).
- [10] M. Kawasaki, S. Nagata, Y. Sato, M. Funabashi, T. Hasegawa, K. Kishio, K. Kitazawa, K. Fueki and H. Koinuma, Jap. J. Appl. Phys. 26

L738(1987).

- [11] R.E. Somekh, M.G. Balmire, Z.H. Barber, K. Butler, J.H. James, G.W. Morris, E.J. Tomlinson, A.P. Schwarzenberger and J.E. Evetts, *Nature* 326, 857(1987).
- [12] R. Feenstra, T.B. Lindermer, J.D. Budai and M.D. Galloway, *J. Appl. Phys.* 69, 6569(1991).
- [13] A. Mogro-Campero, L.G. Turner, A.M. Kadin and D.S. Mallory, *Appl. Phys. Lett.* 60, 3310(1992).
- [14] V.C. Matijasevic, P. Rosenthal, R.H. Hammond, M.R. Beasley and K. Shinohara, NATO Advanced Study Institute Physics & Materials Science of High Temperature Superconductors-II, Porto Carras, Greece (August 1991).
- [15] T.B. Lindemer, F.A. Washburn, C.S. MacDougall, R. Feenstra and O.B. Cavin, *Physica C* 178, 93(1991).
- [16] V. Matijasevic, P. Rosenthal, K. Shinohara, A.F. Marshall, R.H. Hammond and M.R. Beasley, *J. Mater. Res.*, 6, 682(1991).
- [17] M.W. Shaffer, T. Penney and B. Olsan, *Phys. Rev.* B36, 4047(1987).
- [18] J.L. Tallon and N.E. Flower, *Physica C* 204, 237(1993).
- [19] R. Feenstra, D.K. Christen, C.E. Klabunde and J.D. Budai, *Phys. Rev.* B45, 7555(1992).
- [20] M. Hwang et al., *Acta Metall.*, 28, 621(1980).
- [21] R.W. Balluffi et al., *Surf. Sci.*, 21, 68(1972).
- [22] N.G. Chew et al., submitted to *Appl. Phys. Lett.*

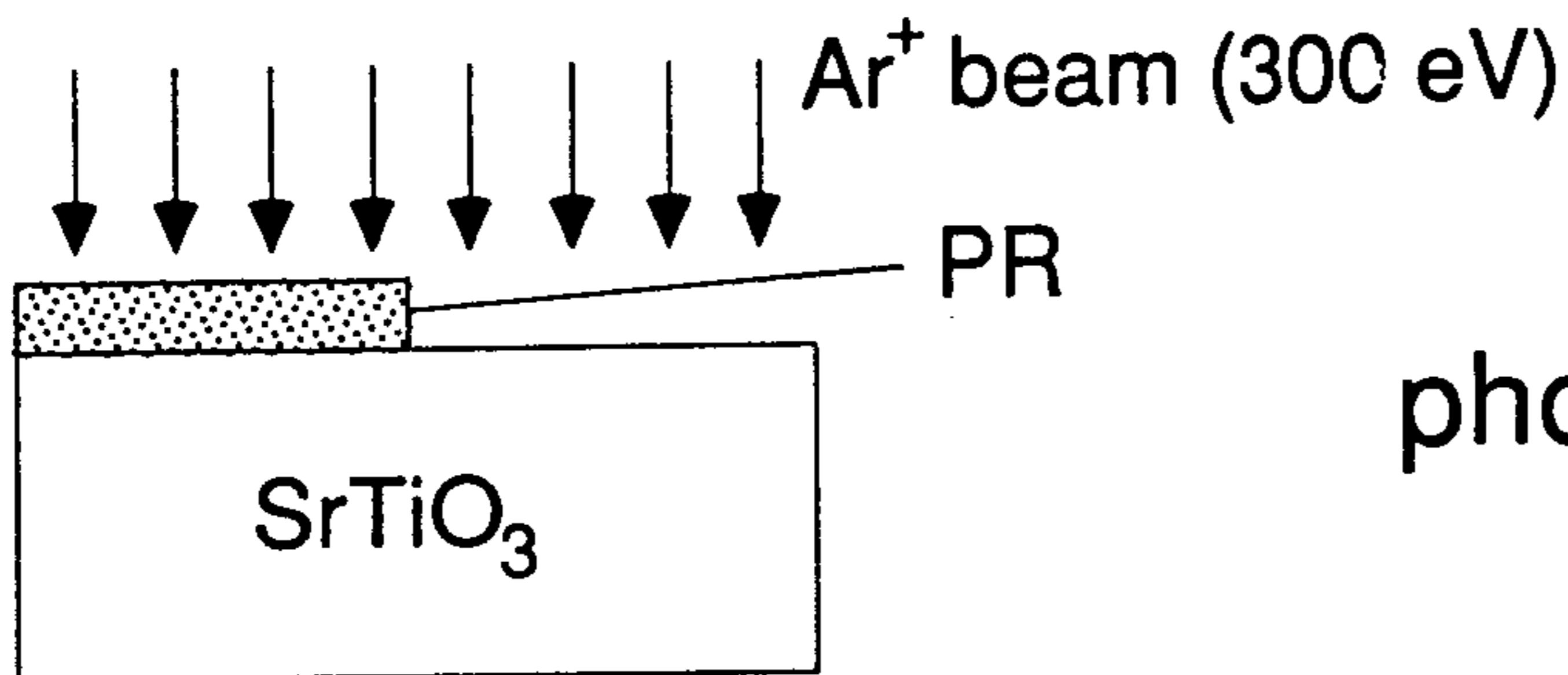
제 3 장 Step edge junction SQUID 제작

제 1 절 YBCO 단일층 step edge junction SQUID 제작

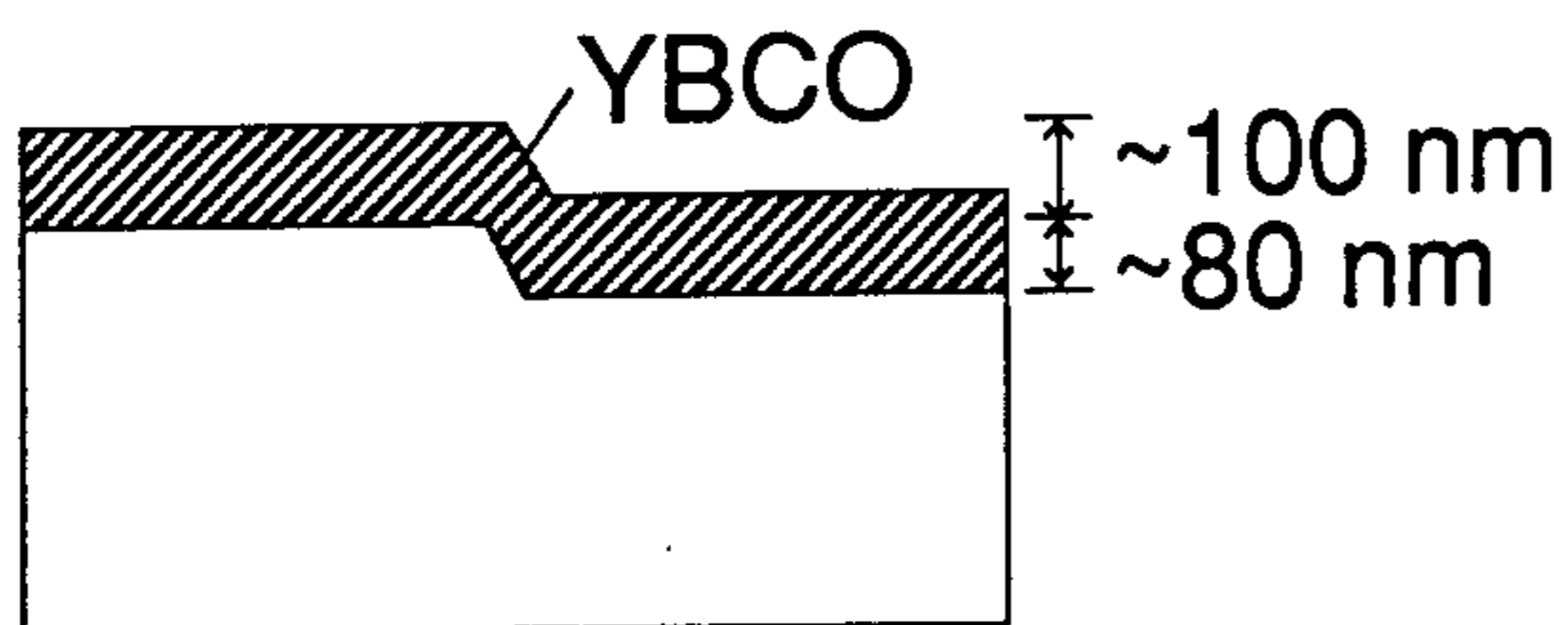
Step edge가 만들어진 SrTiO₃ 기판위에 단일층의 YBa₂Cu₃O_x 고온초전도 박막을 off-axis rf sputtering 방법^[1]으로 증착하여 포토리소그래피와 Ar⁺ milling으로 pattern함으로써 dc SQUID를 제작하였다. Fig. 3.1.1은 이러한 YBa₂Cu₃O_x 단일층 step edge 접합형 dc SQUID^[2]의 제작과정을 나타낸다.

먼저 SrTiO₃ 기판위에 step을 제작하기 위해 포토리소그래피 작업을 통하여 포토레지스트를 mask로 하는 pattern을 기판위에 형성시킨다. 포토레지스트가 없는 부분을 Ar⁺ milling으로 식각하여 최종적으로 step의 높이가 80~100 nm가 되게 하였다. Ar⁺ milling으로 식각할 경우 Ar⁺에 의해 SrTiO₃ 기판표면이 부분적으로 환원되면서 손상되는데 이를 완전히 없애려면 산소 beam을 사용하여 식각하는 것이 가장 이상적이지만 여기서는 Ar⁺ beam의 에너지를 가능한 작게하여 (300 eV) 표면 손상을 최소화 하였다.

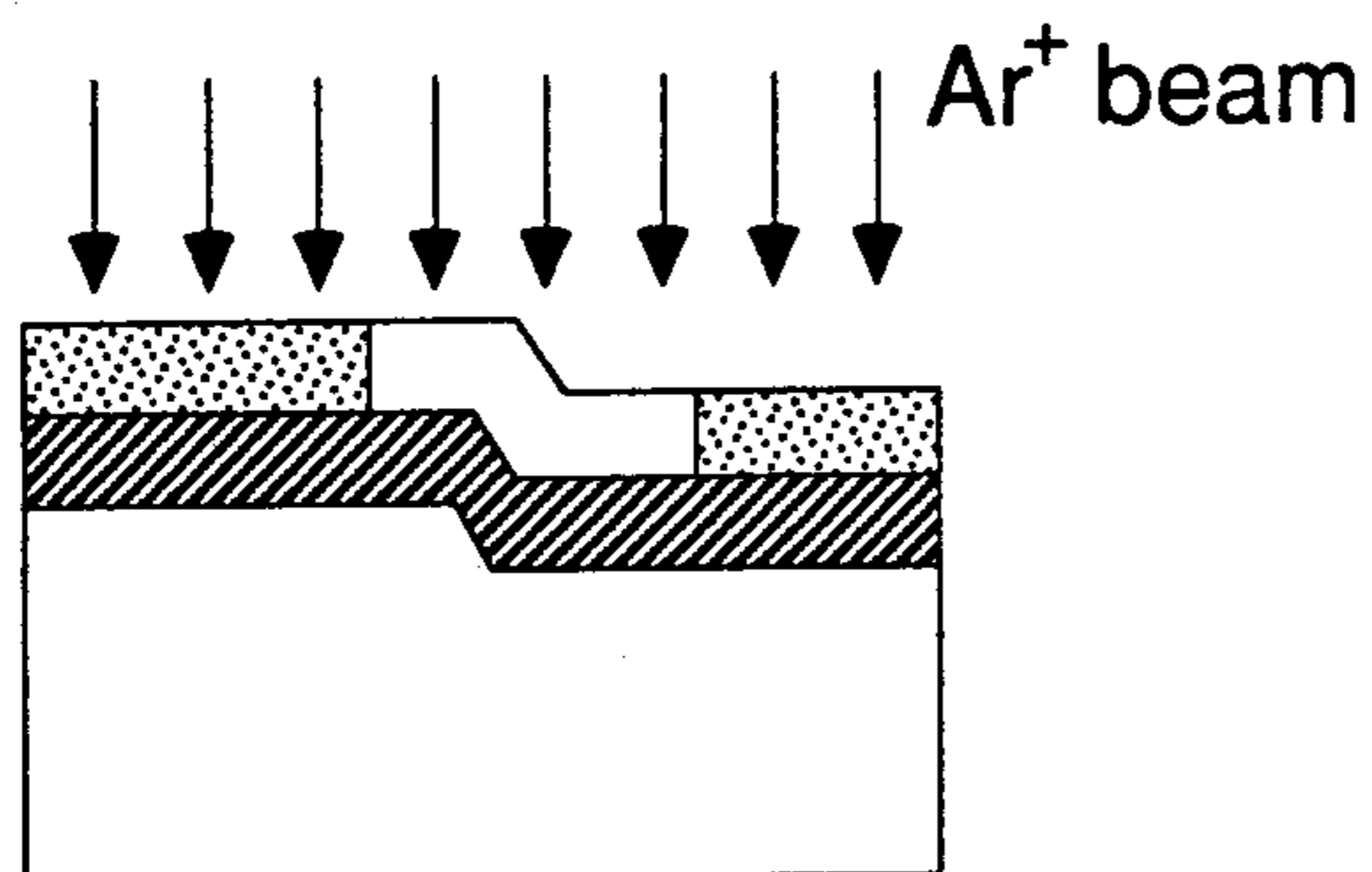
기판표면을 식각한 후 포토레지스트를 제거하고 그 위에 YBa₂Cu₃O_x 고온초전도 박막을 off-axis rf magnetron sputtering을 이용하여 in-situ로 증착하였다. 증착시 2 inch 직경의 stoichiometric 조성(YBa₂Cu₃O_x)을 갖는 single target을 사용하였다. 산소와 아르곤이 혼합된 gas를 증착 chamber 내에 주입하여 증착시 전체 압력이 200 mtorr가 되게 하였으며 이때 산소의 분압은 80~100 mtorr였다. 기판의 온도는 할로겐 램프를 열원으로 사용하여 700~750 °C가 되도록 하고 rf power는 50 W에서 YBa₂Cu₃O_x 박막



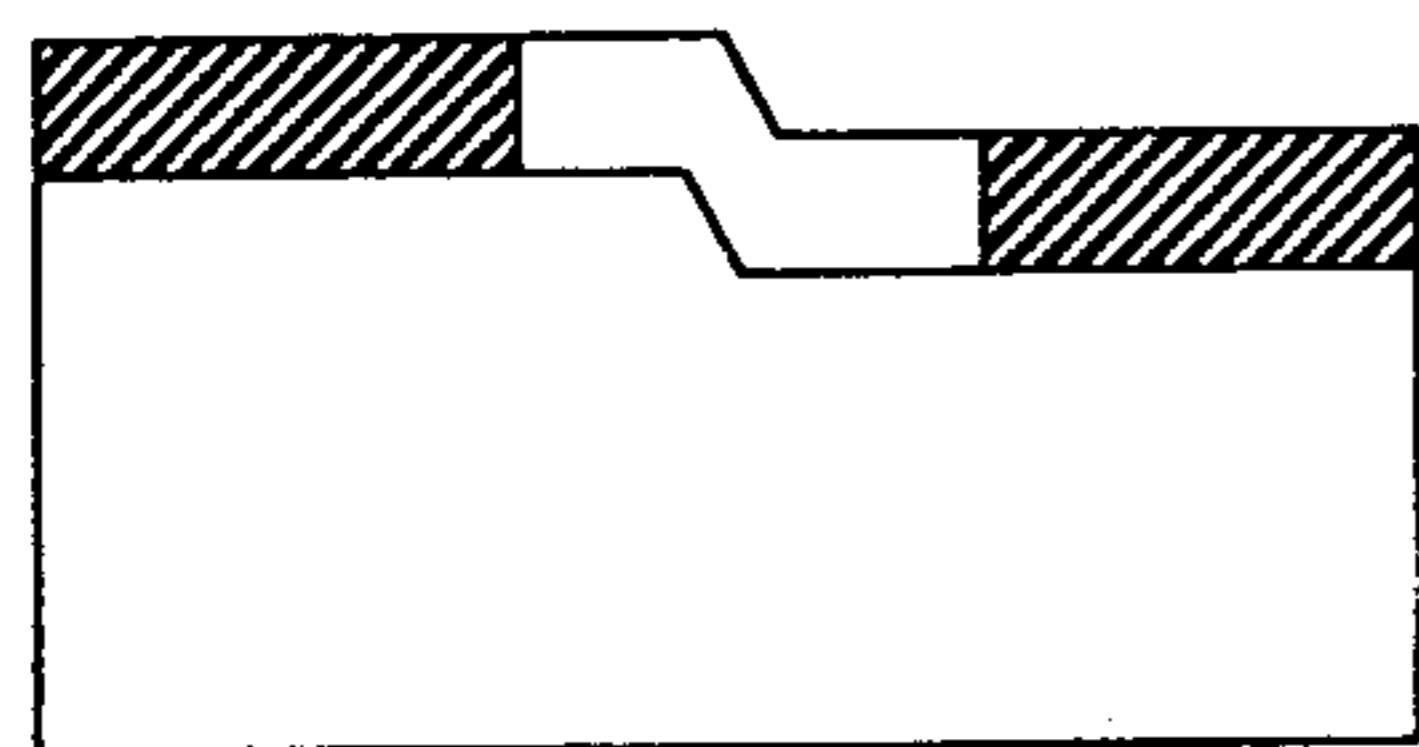
photolithography
and Ar⁺ milling



removing PR and
YBCO deposition



photolithography
and Ar⁺ milling



removing PR

Fig. 3.1.1. Fabrication process of single layer dc SQUID using step edge junction.

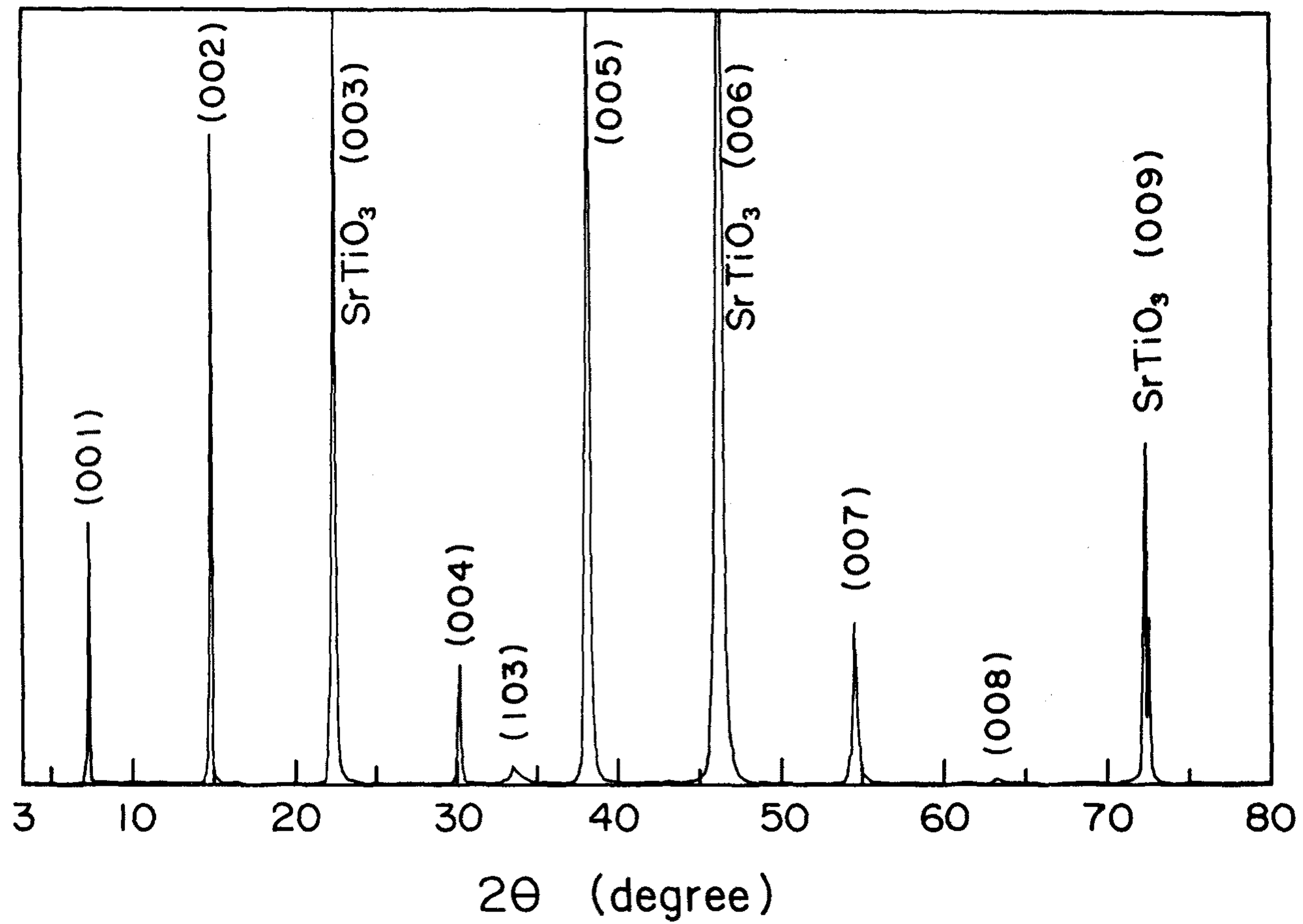


Fig. 3.1.2. X-ray diffraction pattern of YBa₂Cu₃O_x thin film deposited on high oxygen pressure by off-axis rf sputtering.

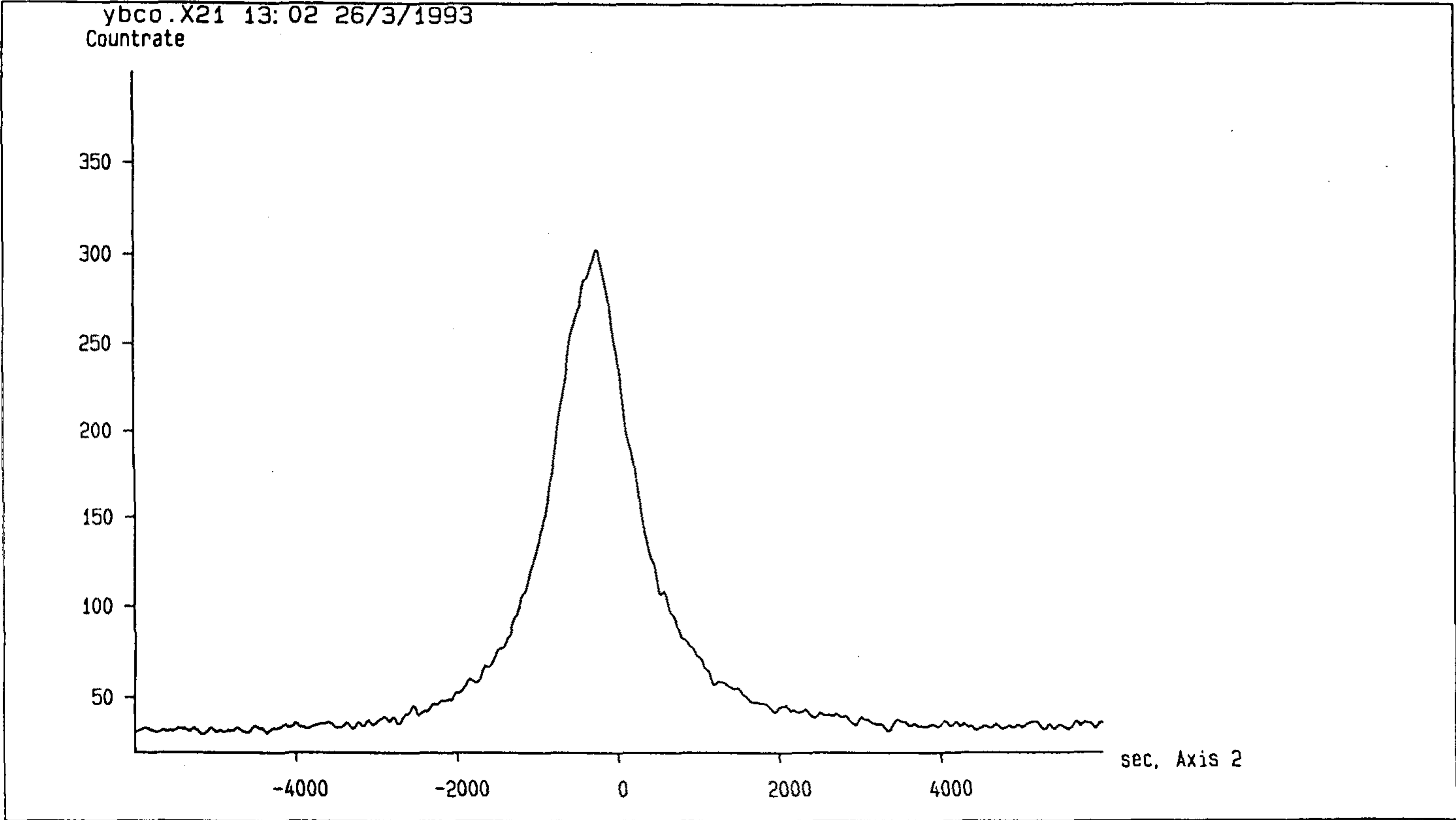


Fig. 3.1.3. Rocking curve of (005)peak of $YBa_2Cu_3O_x$ thin film deposited by off-axis rf sputtering.

을 증착하였다. 이때 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ 박막의 증착율은 약 $6 \text{ \AA}/\text{min}$ 정도였다. 증착 후 진공 chamber내에 산소 gas를 1기압으로 채우고 $480 \text{ }^\circ\text{C}$ 정도로 기판 온도를 낮춘 후 이 조건에서 1시간정도 열처리하였다.

이와 같이 제작된 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ 박막은 임계온도가 약 87 K , ΔT_c 는 1.4 K , 임계전류 밀도는 77 K 에서 $10^6 \text{ A}/\text{cm}^2$ 이상으로 SQUID 응용에 적당한 특성을 지녔다. 또한 $\text{SrTiO}_3(100)$ 기판 표면에 수직으로 c 축 배향성이 매우 잘 되었다는 것을 X-ray 회절 측정(Fig. 3.1.2)으로부터 알 수 있었으며 이때 c 축의 격자 상수는 1.169 nm 였다. 또한 (005) peak의 rocking curve (Fig. 3.1.3)로 부터 FWHM(Full Width at Half Maximum)은 0.3° 로 결정성이 매우 좋다는 것을 알 수 있었다.

기판 step 높이의 1.2~1.3배 두께로 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ 고온초전도 박막을 입힌 후 포토리소그래피 방법으로 포토레지스트를 mask로 하는 pattern을 형성

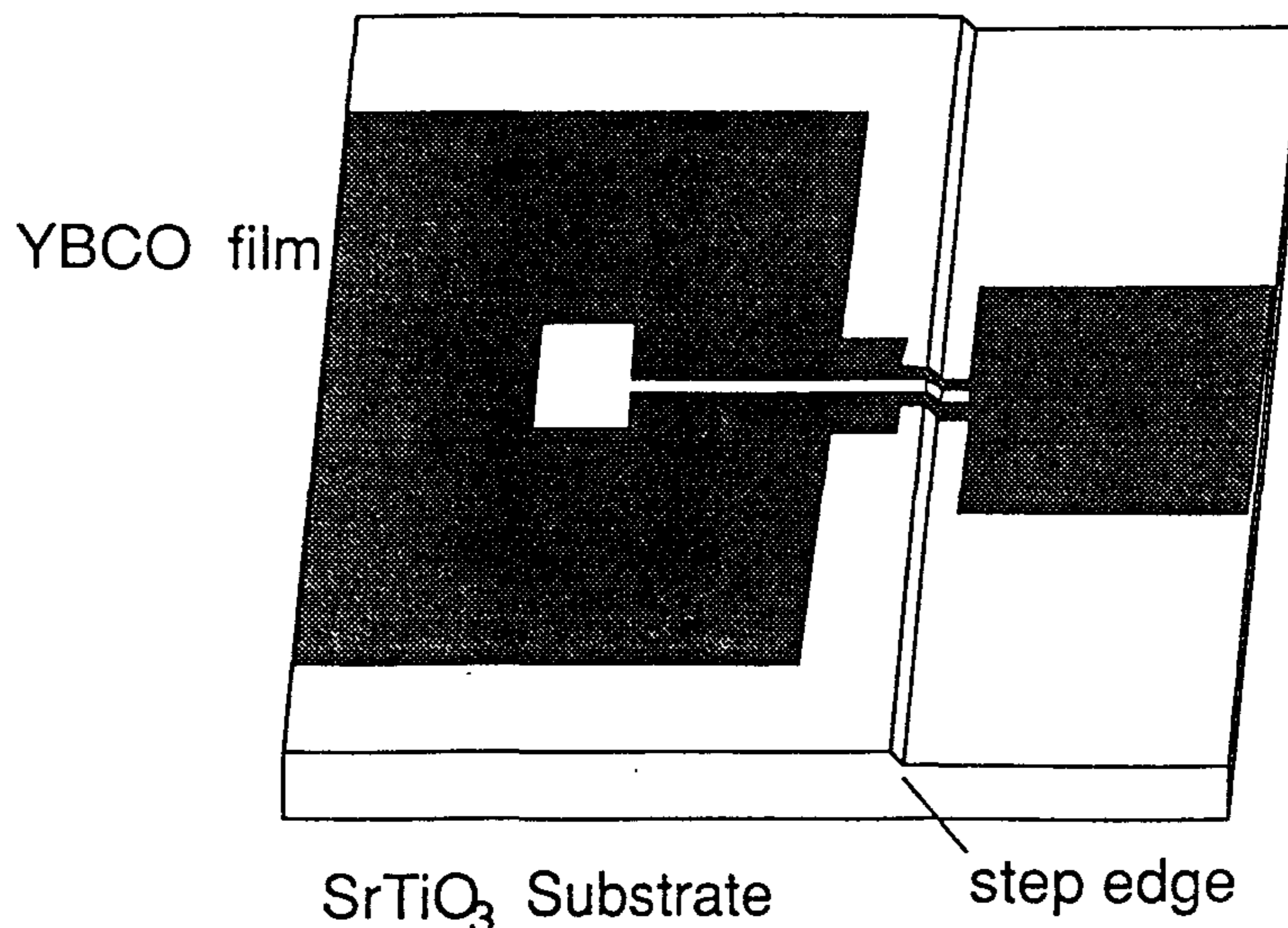


Fig. 3.1.4. Schematic of step edge junction SQUID.

시킨다. Step edge를 만들때와 같은 방법으로 Ar^+ milling을 하고 포토레지스트를 아세톤으로 제거함으로써 최종적으로 dc SQUID pattern을 얻었다. 이때 Fig. 3.1.4에서 처럼 dc SQUID loop에서 두 군데의 좁은 line 부분이 기판 step 부분에 걸치게 함으로써 여기에 조셉슨 접합이 형성되도록 하였다. Fig. 3.1.5는 제작된 step edge 접합형 dc SQUID의 광학 현미경 사진이다. Gradiometer 등에서의 응용을 고려하여 두 개의 dc SQUID가 좌우로 대칭되어 있고 가운데 변조 coil을 서로 공유하고 있다.

제작된 dc SQUID loop은 square washer 형태로 여기에 측정을 위한 pad가 조셉슨 접합을 사이에 두고 2개씩 4개가 연결되어 있다. 이 pad에 lift-off과 ion sputtering 방법으로 gold를 약 $200\sim 300 \text{ \AA}$ 두께로 입히고 indium

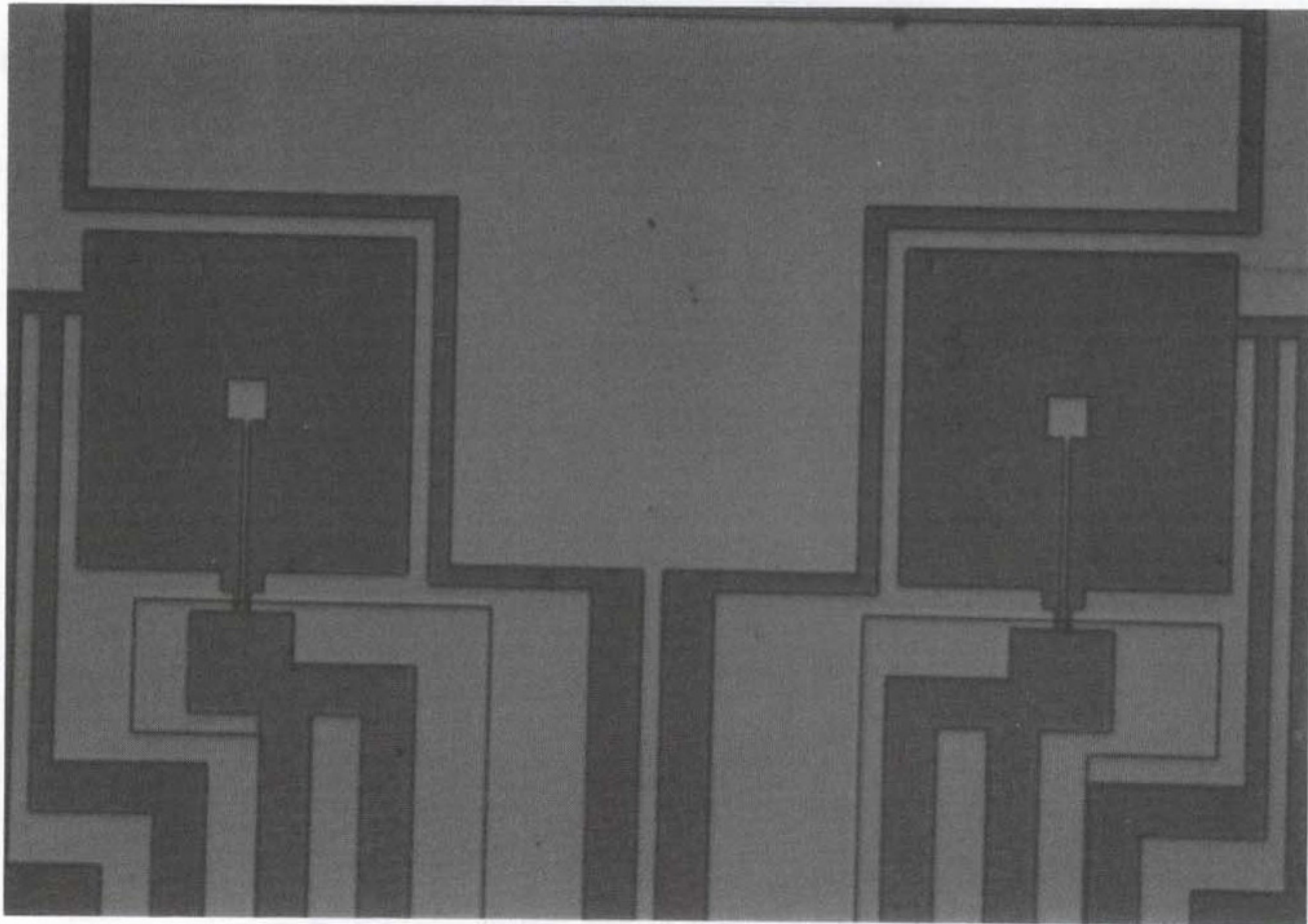


Fig. 3.1.5. Micrograph of step edge junction SQUIDs.

press contact 방법으로 측정용 wire를 연결하였다. 측정시 액체질소나 액체 헬륨 탱크에 sample holder를 담갔으며 heater를 사용할 경우 noise가 발생할 소지가 크므로 sample의 온도를 조절할 때에는 액체 헬륨 탱크안에서의 온도 gradient를 이용하였다.

제작된 SQUID의 특성을 조사하기 위하여 전류-전압곡선을 측정하고 외부자기장하에서 SQUID 변조신호를 측정하였다. Fig. 3.1.6은 SQUID 변조신호를 측정하기 위한 실험장치의 개요를 나타낸다.

SQUID 신호를 관측하기 위하여 필요한 자기장은 0.005 inch 두께의 구리 선을 7 mm 직경으로 10 turn 감은 coil에 HP 3325B function generator로 부터 톱니파형 전압과 10~100 k Ω 저항을 직렬로 연결하여 발생시켰다. Keithley 224 current source를 이용하여 접합에 임계전류 근방의 bias current를 걸어주고 접합의 전위차는 Ithaco 1201 low noise preamplifier로 증폭하였다. 증폭된 전위차는 oscilloscope(Tektronix 2221 digital storage oscilloscope)의 y축에 연결하고, 자기장 측정을 위해서는 coil에 직렬로 연결된 저항에 병렬로 oscilloscope의 x축에 연결하여 SQUID 변조신호를 얻었다.

접합의 전류-전압 특성이나 임계전류와 normal 저항을 측정할 때에는 Fig. 3.1.6과 같은 실험장치에서 function generator로 부터 톱니파형이나 sine 파형의 ac bias current를 접합에 걸어주고 증폭된 접합 전위차의 변화를 측정한다. Fig. 3.1.7은 77 K에서 측정된 대표적인 전류-전압 곡선을 나타낸다. 제작된 dc SQUID의 inductance^[3]는 대략 60~90 pH로 임계전류 10~100 μ A, normal 저항 0.1~1 Ω 일때 조셉슨 접합 특성이 나타나고 있다.

Fig. 3.1.8은 sample의 온도 77 K일때 oscilloscope에 나타난 대표적인

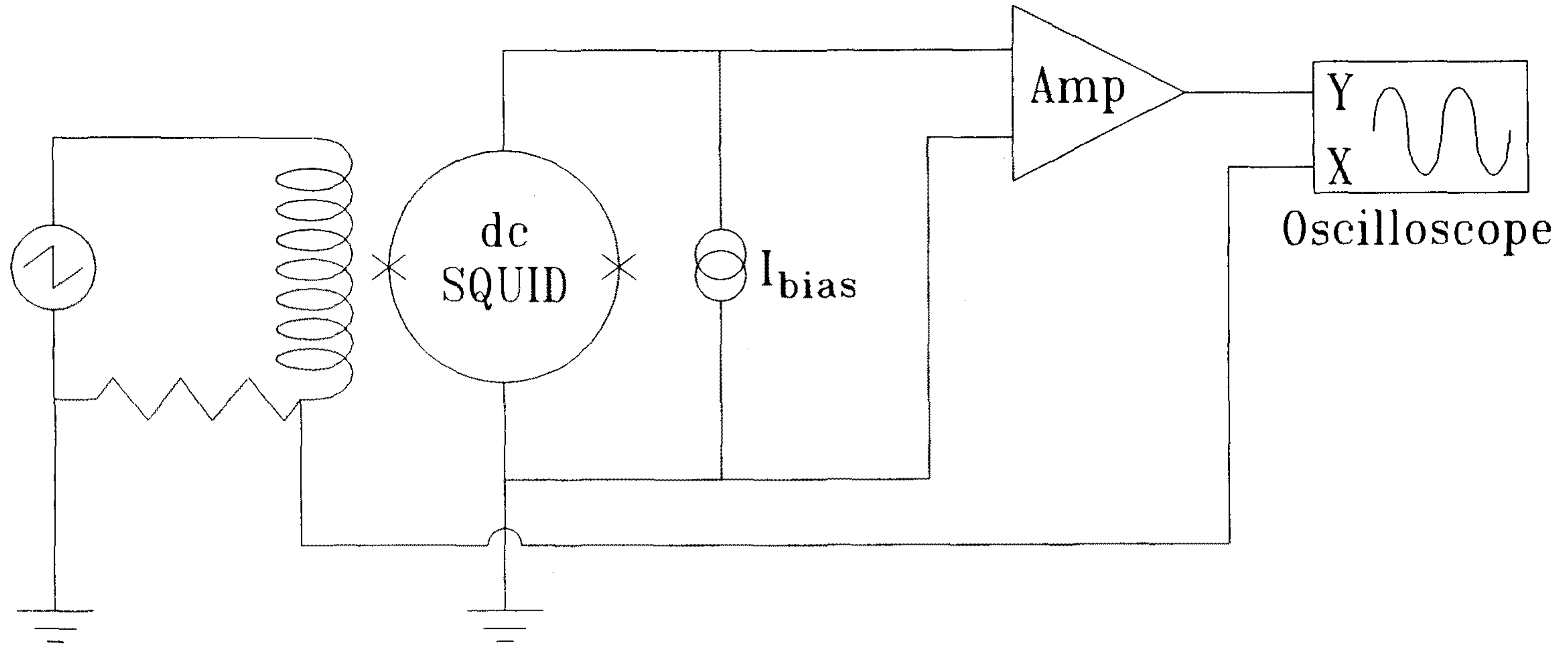


Fig. 3.1.6. Circuit diagram for dc SQUID modulation voltage measurement.

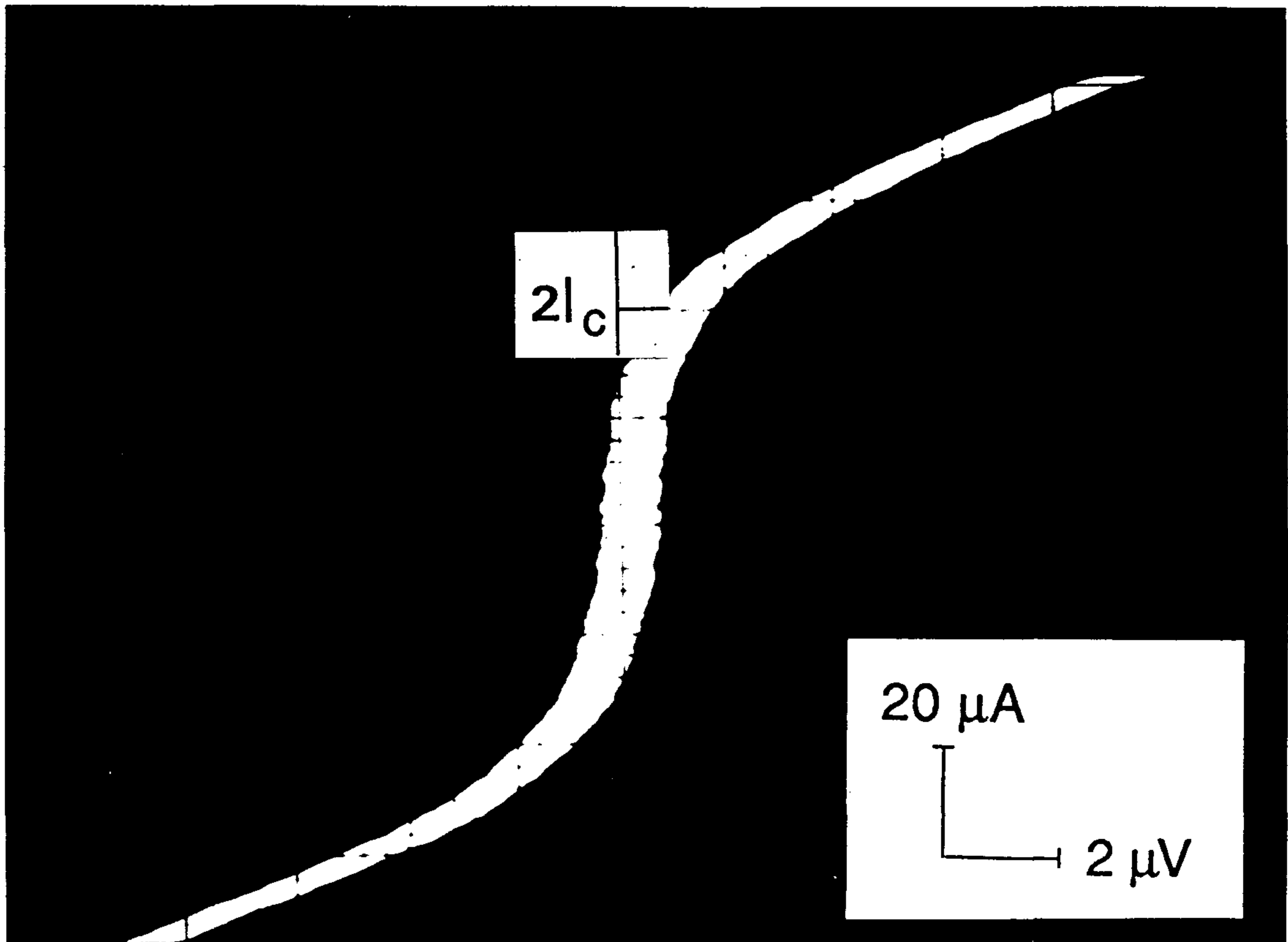


Fig. 3.1.7. Current-voltage characteristics of step edge junction SQUID at 77 K.

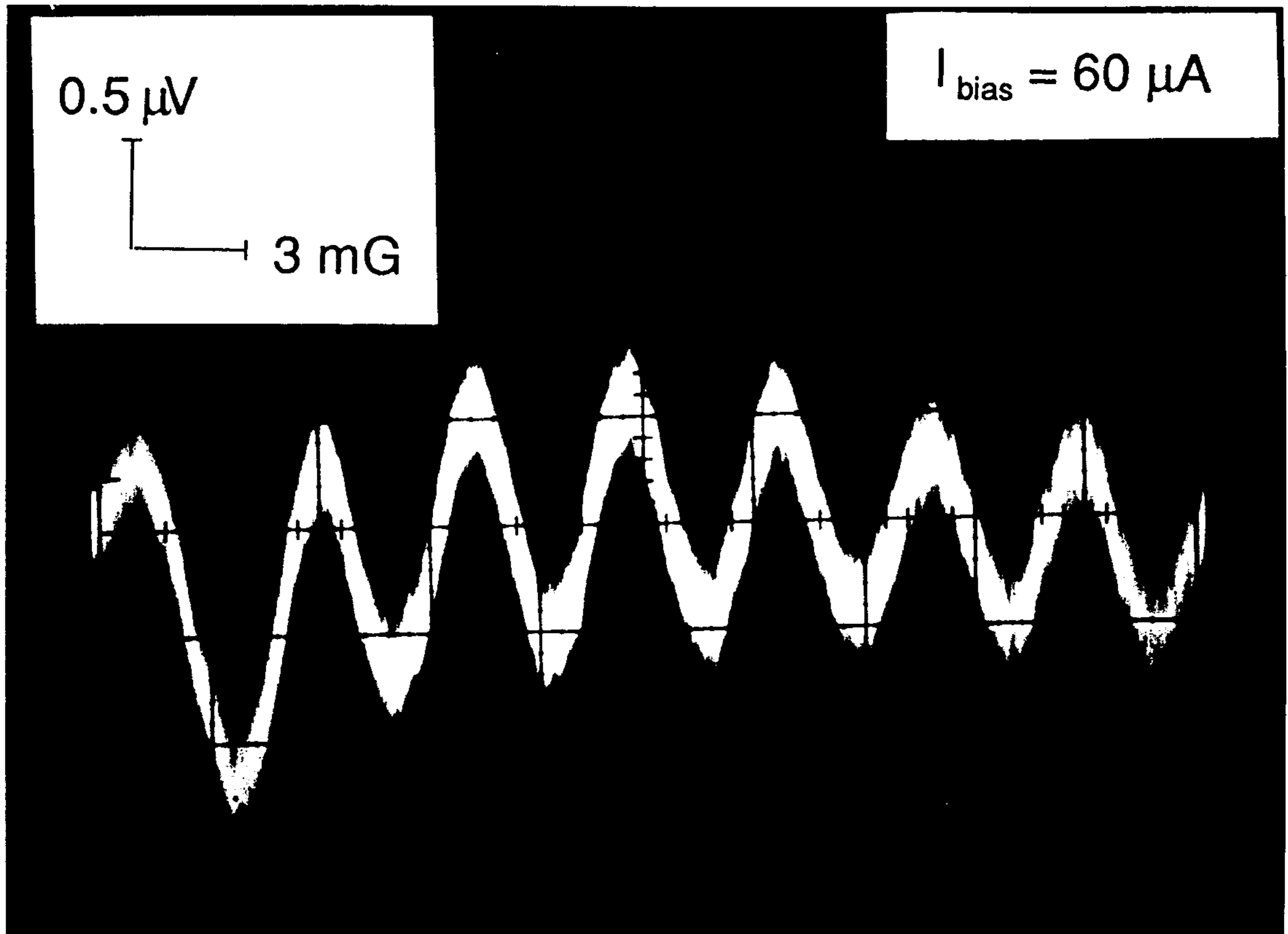


Fig. 3.1.8. Voltage modulation of step edge junction SQUID at 77 K.

SQUID 변조신호를 나타낸다. Table 3.1.1에 77 K에서 측정된 대표적인 step edge 접합형 dc SQUID들의 특성을 정리하였다.

Table 3.1.1. Characteristics of step edge junction SQUID at 77 K

		SQUID A	SQUID B
Loop area(μm^2)	A	1.7×10^3	3.2×10^3
Junction width(μm)	W	25	4
Inductance(pH)	L	65	90
Critical current(μA)	$2I_c$	40	20
Normal state resistance(Ω)	R_n	0.24	2.5
Modulation voltage(μV)	V_{mod}	1	0.5
Effective area(μm^2)	A_{eff}	4.7×10^3	2.06×10^4
Focussing parameter	A_{eff}/A	2.7	6.4
Screening parameter	β	1.3	0.9
$(\beta = 2LI_c/\phi_0)$			

SQUID A의 경우 $2I_cR_n$ 은 대략 $9.6 \mu\text{V}$ 이며, SQUID B의 경우는 $50 \mu\text{V}$ 이고 screening parameter가 각각 1.3, 0.9인데도 불구하고 변조신호 진폭(modulation voltage)이 각각 $1 \mu\text{V}$, $0.5 \mu\text{V}$ 로 $2I_cR_n$ 에 비해 매우 작게 나타나고 있다. 이와 같은 차이가 생기는 이유는 여러가지가 있겠지만 여기서는 한개의 dc SQUID 안에서 두개의 조셉슨 접합의 특성이 서로 같지 못하고 차이가 생김으로 해서 나타나는 것으로 볼 수 있다. 이론적으로는 접합의 임계 전류에서 SQUID loop의 screening flux가 magnetic quantum

flux의 1/2일때, 즉 screening parameter가 1일때 변조신호가 최대값을 갖으며^[4] 이 최대값은 $2I_c R_n$ 과 비교되는 값이 된다.

SQUID B의 focussing parameter는 6.4로 SQUID A의 focussing parameter 2.7보다 큰 값을 갖는데 이는 SQUID B의 washer 크기가 SQUID A의 경우보다 크기 때문이다.

Step edge 접합의 특성을 더 자세히 알아보기 위하여 온도변화에 따른 임계전류의 변화를 측정하였다. Fig. 3.1.9는 대표적인 step edge 접합의 임계전류 온도 의존성을 나타낸다. 여기서 임계전류의 온도 의존성은

$$2I_c = A(1 - T/T_c)^x \quad (1)$$

로 표시할 수 있으며 Fig. 3.1.9에서처럼 측정값으로 곡선을 fitting할 경우 $A \simeq 10 \text{ mA}$, $x \simeq 2.24$ 가 된다. 이는 SNS(Superconductor-Normal metal-Superconductor)접합^[5]과 유사한 값(SNS 접합의 경우 $x=2$)을 나타낸다.

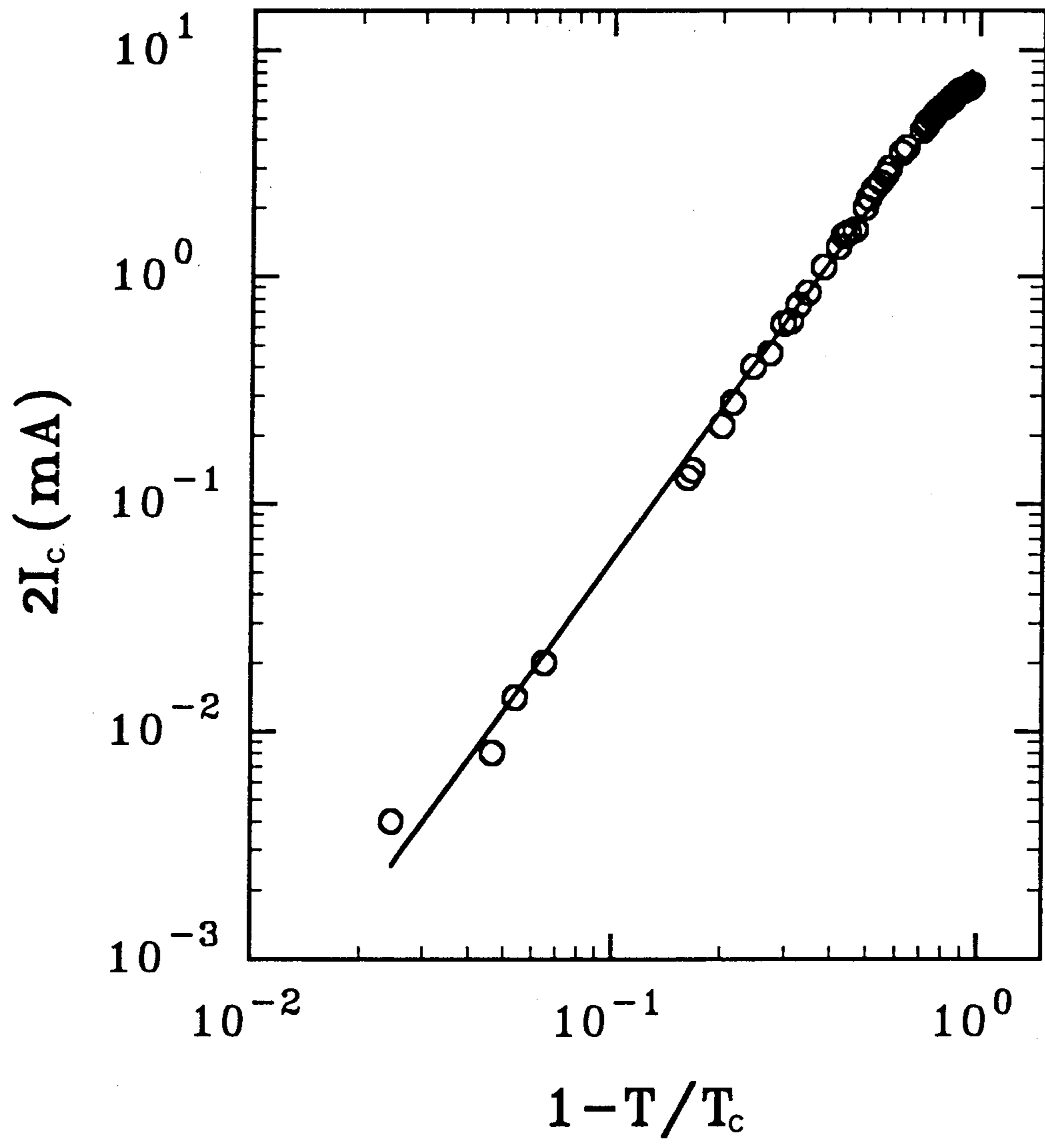


Fig. 3.1.9. Temperature dependence of critical current of step edge junction SQUID.

제 2 절 YBCO/CaRuO₃ 이중박막을 이용한 Step edge junction SQUID

지금까지 발표된 거의 모든 고온초전도 SNS step-edge junction SQUID는 normal metal로서 전기전도성이 뛰어나고 산화에 강한 Au 또는 Ag를 사용해왔다.^{[6], [7]} 그러나 이들 noble metal은 고온초전도박막에 대한 접착력이 약해서 접합의 안전성이 떨어지는 요인이 되고 있다. 반면, CaRuO₃는 orthorhombic perovskite 구조를 갖고 있고 YBCO 박막이 epitaxial하게 잘 자라는 산화물이면서도 전기전도성이 뛰어나 전기전도도가 YBCO와 거의 같은 크기로 큰 장점을 가지고 있고 또한 그 특성이 산소의 양에 별로 무관한 것으로 알려져 있다.^[8] 뿐만 아니라, CaRuO₃ 박막은 void나 알갱이가 거의 발견되지 않는 균일한 morphology를 갖고 있어서 YBCO 박막내의 산소 출입을 제한하는 특성이 있는 것으로 밝혀졌는데, 이는 CaRuO₃를 산소보호막으로도 사용할 수 있는 가능성을 제시해주고 있다.

YBCO나 CaRuO₃ 박막 모두 stoichiometric한 타겟을 사용한 laser 증착법으로 같은 조건에서 증착하였다. 증착시 기판을 부착한 heater block 온도는 780 °C, 산소 압력이 200 mtorr, 레이저 출력 2 J/cm²-pulse, 초당 5펄스를 사용하였다. 증착이 끝난 다음, 1/2기압 산소를 채우고 약 450 °C로 서서히 냉각시킨 후, 1기압의 산소를 채워 1시간 동안 산소열처리를 하였다.

광학현미경으로 관찰한 CaRuO₃ 박막은 약간 회색빛을 띠는 금속성 광택이 나고 void나 알갱이가 거의 발견되지 않은 균일한 morphology를 가졌다. X-선 회절 측정결과 SrTiO₃ 기판위에 epitaxial하게 잘 자랄 뿐만 아니라 제 1 장 2절에서 이미 보인 바와 같이 YBCO와의 이중박막에서도

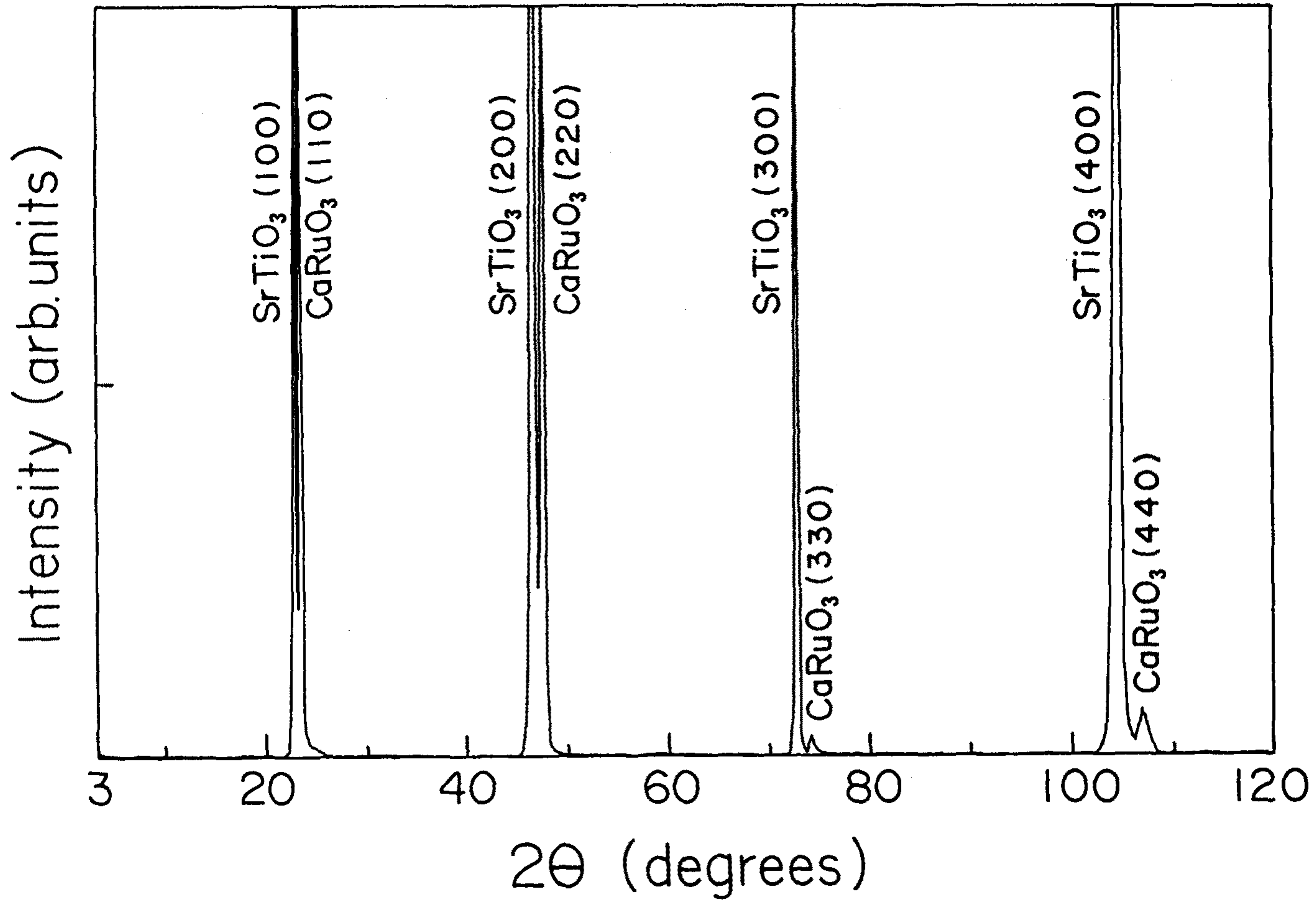


Fig. 3.2.1. X-ray diffraction spectra of a CaRuO_3 film deposited on SrTiO_3 substrate. CaRuO_3 (110) plane is parallel to the substrate plane.

epitaxial하게 잘 자람이 관측되었다. Fig. 3.2.1은 SrTiO₃ 기판위에 증착된 단일층 CaRuO₃ 박막의 X-선 회절측정결과이다. Orthorhombic 구조를 가진 CaRuO₃ 박막의 (110)면이 SrTiO₃ 기판의 면에 평행하게 epitaxial하게 자란 것을 알 수 있다.

Fig. 3.2.2는 SrTiO₃ 기판위에 증착된 단일층 CaRuO₃ 박막의 비저항 측정 결과이다. 박막의 두께는 1,500 Å이며 비저항측정을 위하여 박막을 standard photolithography와 Ar⁺ milling을 써서 폭 100 μm, 길이 1 mm로 패터닝하였다. 비저항은 온도가 내려감에 따라 저항이 감소하지만 비례하지는 않고 있다. 상온에서는 약 320 μΩ-cm, 10 K에서는 105 μΩ-cm인데, 이는 YBCO 박막의 비저항값과 거의 같다. CaRuO₃ 박막의 이러한 epitaxial 성장 및 초전도 특성은 고온초전도체 다층막을 이용한 소자제작에 아주 유리하다.

CaRuO₃ 박막위에 증착된 YBCO 박막은 c축이 수직인 epitaxial 성장을 할 뿐만 아니라 저항-온도곡선이 거의 비례하는 금속성을 보이고 임계온도가 87 K 이상이었다. 반면, YBCO가 먼저 증착된 경우에는 온도-저항특성은 비슷하나 임계온도가 50 K까지 떨어졌다. 이는 위에 덮힌 CaRuO₃ 박막때문에 산소가 결핍되어 나타난 현상으로 생각되었는데, 장시간의 산소 열처리 후 80 K 이상으로 임계온도가 상승한 사실이 이를 뒷받침 해주고 있다.

Fig. 3.2.3은 CaRuO₃을 normal metal로 사용한 SNS type step-edge 접합 제작과정을 나타내고 있다. 우선 SrTiO₃ 기판위에 step 제작을 위한 포토리지스트마스크를 만들고 Ar 이온 밀링방법으로 식각하여 높이 약 1,000 Å의 step을 제작한다. Step이 제작된 기판위에 초전도 YBCO 박막과 CaRuO₃ 박막을 순차적으로 증착한다. 이때 중요한 사항은 YBCO 박막이

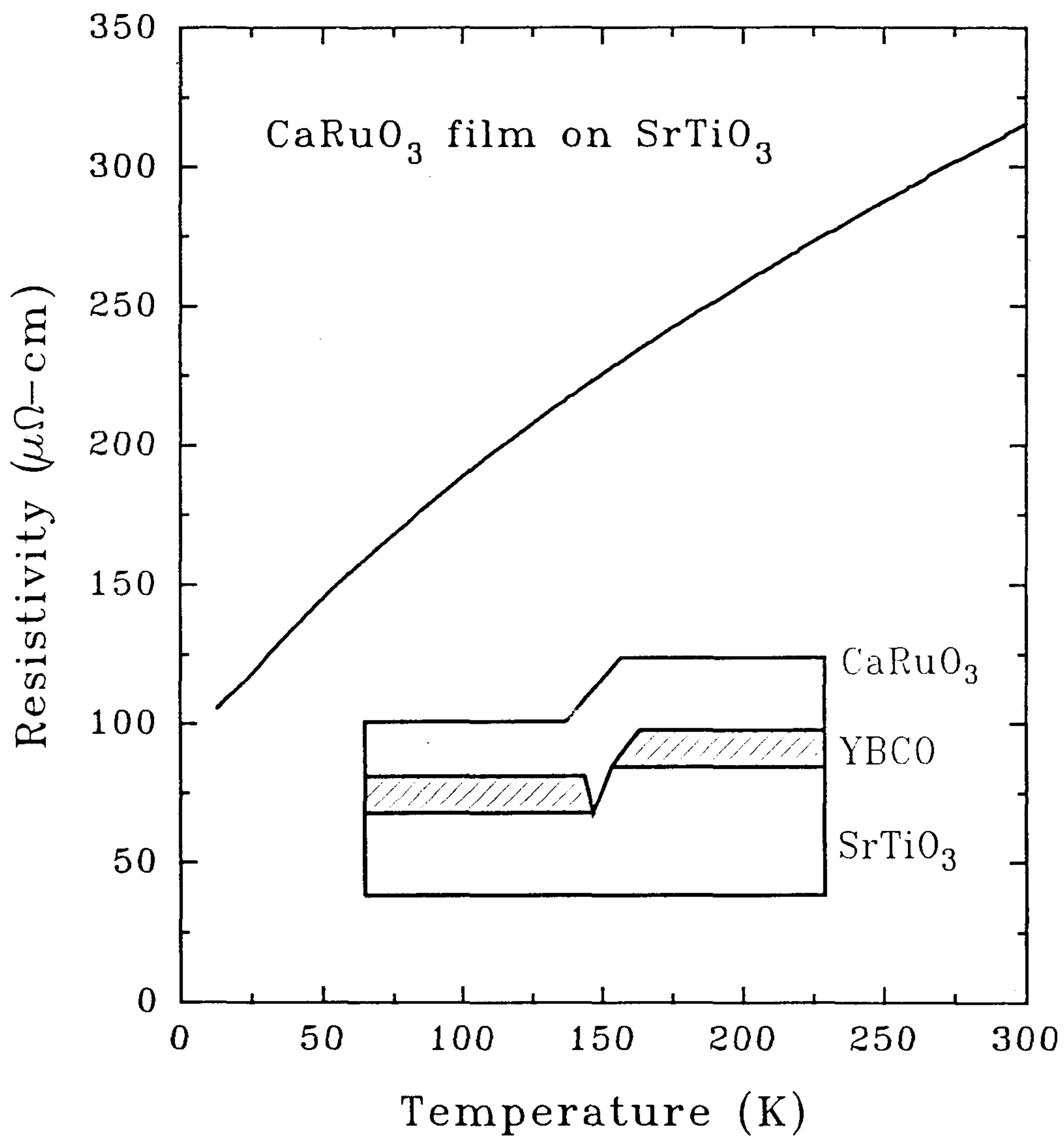


Fig. 3.2.2. Resistivity versus temperature of a CaRuO₃ film on a SrTiO₃ substrate.

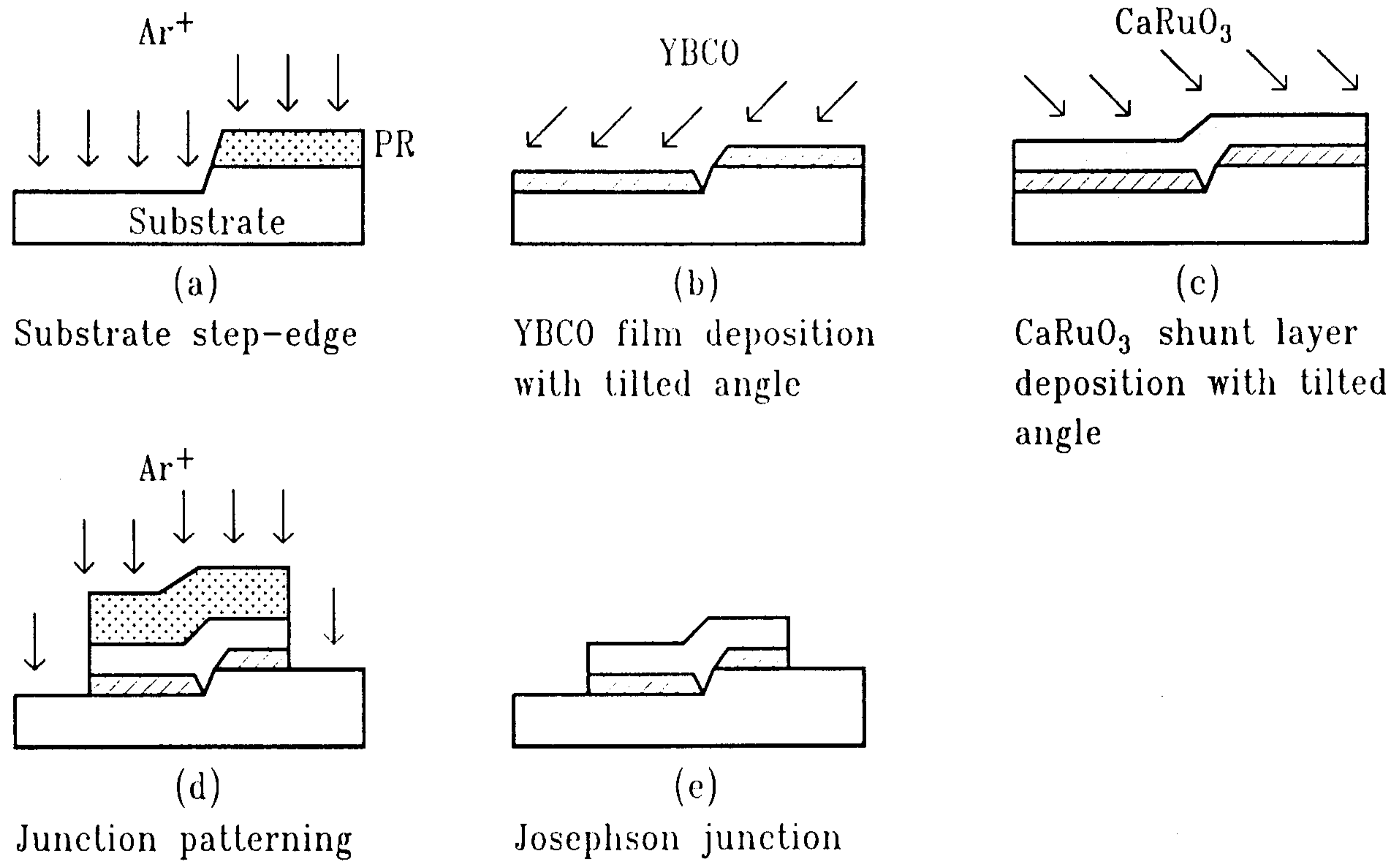


Fig. 3.2.3. Fabrication procedures of SNS step edge junction SQUID.

step의 아래와 윗층 사이에서 단절되거나 겨우 연결되도록 하는 것인데, YBCO 박막을 레이저 증착시 Fig. 3.2.3(b)와 같이 기판을 기울여서 경사지게 증착되도록 하면 된다. Fig. 3.2.3(b)와 같이 step 양쪽의 YBCO 박막이 단절되도록 하기 위해서는 step의 경사각도가 충분히 커야하고 YBCO 박막의 두께가 대략 step 높이보다는 크지 않아야 함도 알 수 있다. YBCO 위에 CaRuO_3 박막은 in-situ로 증착하는데 YBCO 증착시와는 반대방향으로 기판을 기울여 step 부분에서 확실히 연결되도록 한다. YBCO와 CaRuO_3 박막의 두께는 각각 800 \AA , $1,200 \text{ \AA}$ 이었다. Photolithography로 리지스트 패턴을 만든 후 Ar ion milling으로 식각하여 접합을 제작하였다. 최종적으로 제작된 device를 $450 \text{ }^\circ\text{C}$, 1기압 산소분위기에서 48시간 산소열처리하여 완성시켰다.

자기장이 가해지지 않은 상태에서 여러 온도에서 측정된 SQUID의 전류-전압 특성곡선이 Fig. 3.2.4에 나타나 있다. SQUID pad의 도선연결에는 silver paint를 사용하였고, 측정은 외부자기장 영향을 최소화하기 위해 μ -metal shield 내부에 SQUID를 넣어 행하였다. 그림에 나타난 SQUID는 washer의 크기가 $320 \mu\text{m} \times 330 \mu\text{m}$, hole size가 $40 \mu\text{m} \times 40 \mu\text{m}$, 그리고 접합의 폭이 $5 \mu\text{m}$ 이었다. 이 SQUID의 사이즈는 self-inductance가 60 pH에 해당한다.

YBCO 박막 자체의 임계온도는 82 K이고 접합의 임계온도는 52 K이었다. 측정된 구간의 온도영역에서는 전류-전압 특성이 resistively-shunted-junction(RSJ)모델에 잘 맞는다. Normal 상태 저항은 임계온도 부근에서 3Ω 이며 온도감소에 따라 약간 감소하는데, 이는 normal metal인 CaRuO_3 박막의 금속성 전기전도도 특성과의 일치한다. 임계전류밀도로부터 계산된

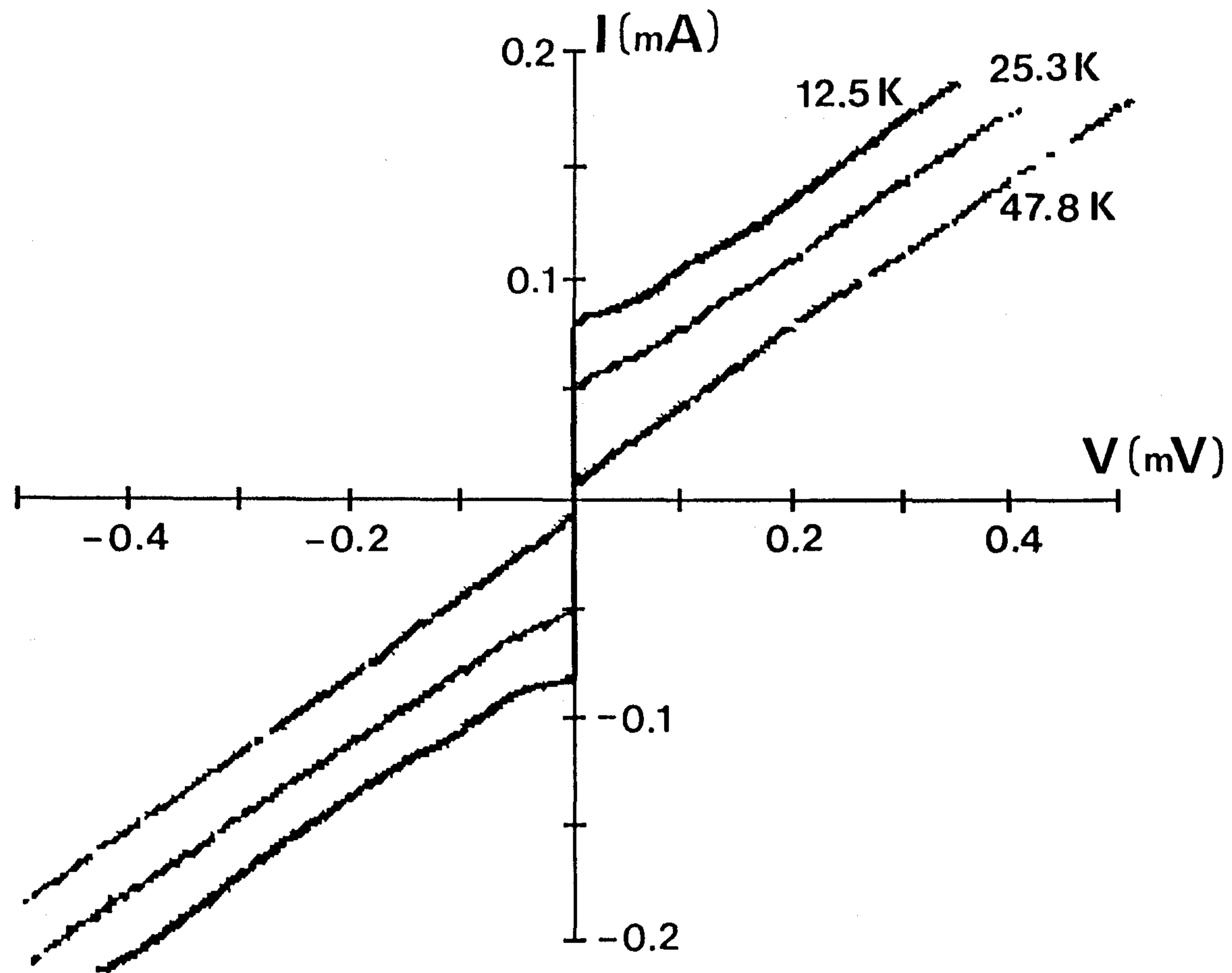


Fig. 3.2.4. Current-voltage characteristics of SNS step edge junction SQUID with CaRuO_3 as the normal metal at zero field.

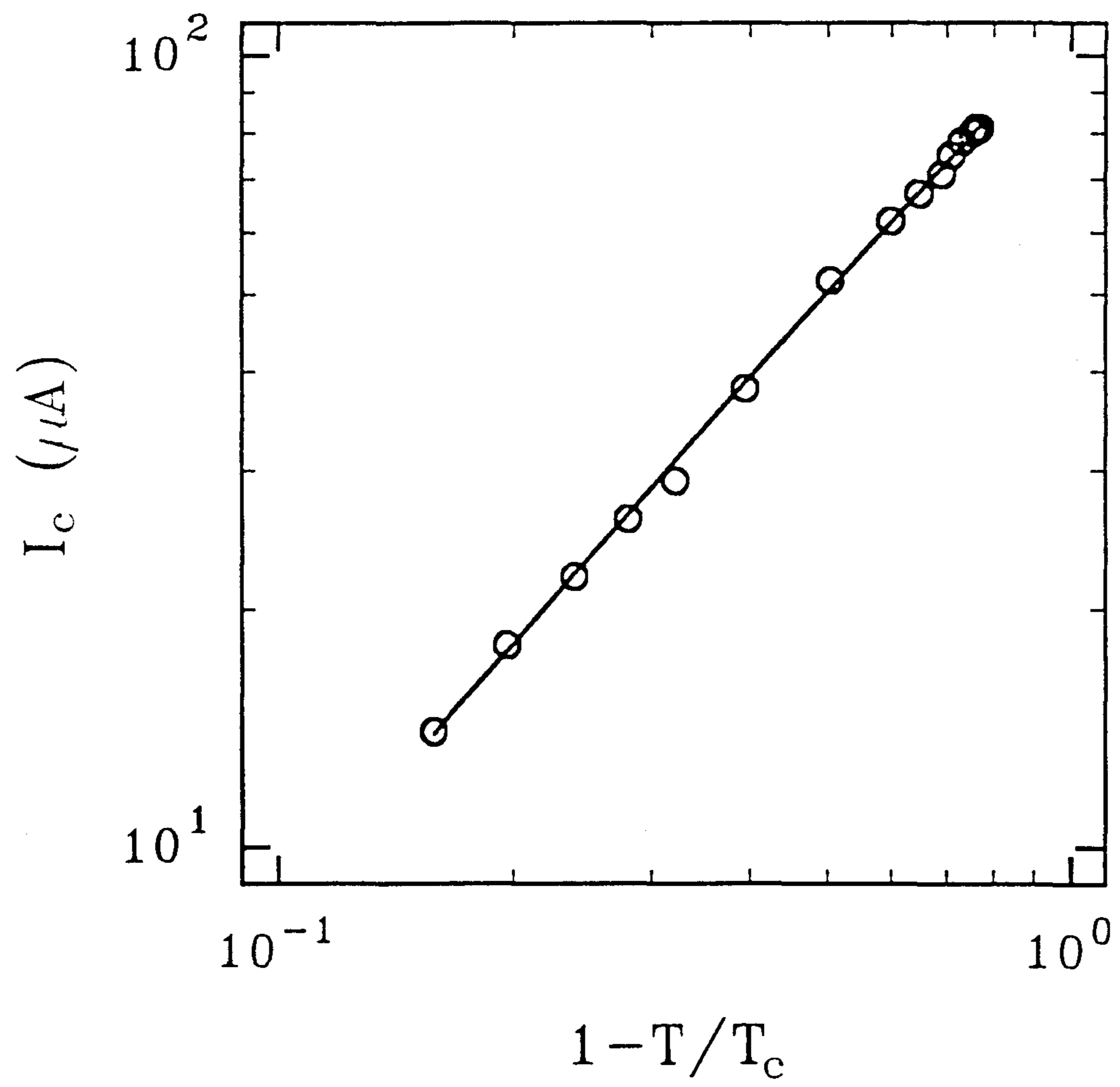


Fig. 3.2.5. Critical current versus $1 - T/T_c$ on log scale.
 $I_c \propto (1 - T/T_c)^{1.1}$.

Josephson penetration depth가 12.5 K에서 약 $3 \mu\text{m}$ 로서 접합의 폭 $5 \mu\text{m}$ 의 반보다 크다. 따라서 접합 양쪽의 superconducting order parameter의 위상이 각기 단일값을 가지게 되며 전류-전압 특성 곡선의 RSJ 성질과도 일치한다.

접합의 터널링 특성이 barrier가 절연체이나 금속이냐에 따라 다르게 나타나는데, 그 특성을 쉽게 알아보는 방법으로 흔히 접합 임계전류의 온도의존성을 조사한다. Fig. 3.2.5에서는 자기장을 가하지 않은 상태에서 측정된 SQUID의 임계전류를 $1-T/T_c$ 에 대한 함수로 log scale에서 나타내고 있다. 그림의 데이터는 $I_c(T) \cong I_c(0) \cdot (1-T/T_c)^{1.1}$ 에 가장 잘 맞는다. 여기에서 $I_c(0) = 100 \mu\text{A}$, $T_c = 52 \text{ K}$ 이다. Log scale에서의 이러한 기울기 1은 본 접합의 경우에는 일반적인 SNS 접합과는 특성이 다르다.

이미 잘 알려진 바와 같이, superconductor-normal metal-superconductor(SNS) 접합에서는 $I_c(T) \propto (1-T/T_c)^2$ 의 특성을 갖고, superconductor-insulator-superconductor(SIS) 접합에서는 $I_c(T) \propto (1-T/T_c)^1$ 의 특성을 갖고 있다.^[5] 그리고 Deutscher 등^[9]에 의하면 고온초전체의 경우에는 superconductor-insulator-superconductor 구조를 가진 접합의 경우에도 SNS 접합과 같은 특성을 보인다고 이론적으로 주장한 바가 있다. 그 이유는 coherence length가 극히 짧은 고온초전도체 접합에서는 barrier에 인접한 초전도체 부분에서의 order parameter가 심하게 suppression되어 이 부분이 normal metal과 같은 역할을 하기 때문인 것으로 설명하고 있다.

실제로 이와 같은 SNS 특성이 step-edge 접합^[10]이나 절연체인 $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ 를 barrier 물질로 사용한 ramp edge 접합^[11] 등을 포함한 여러가지 접합 형태에서 나타나는 것이 발견되었다. 한편으로는 SIS 특성인 1차원적인 전

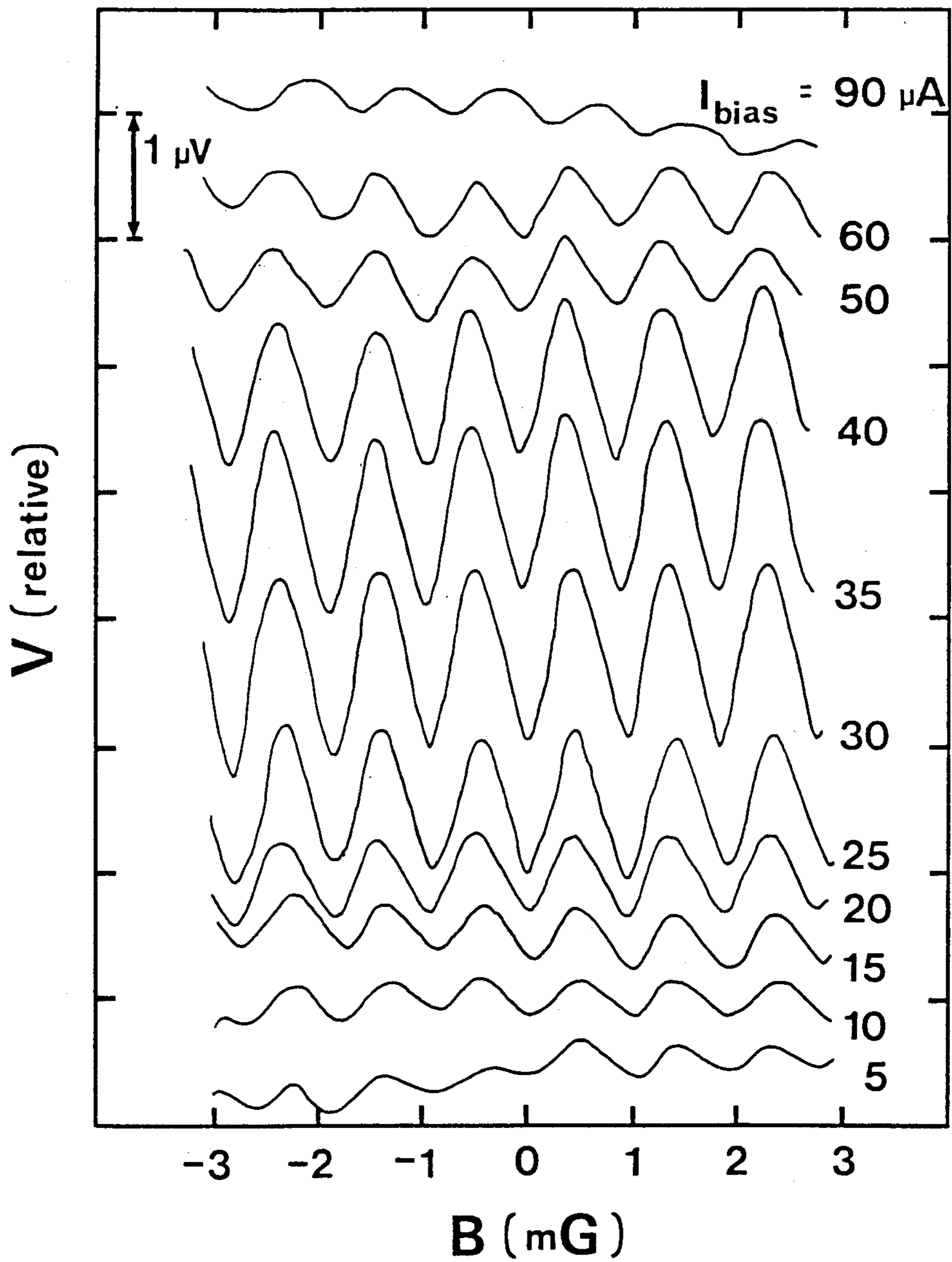


Fig. 3.2.6. SQUID voltage modulation in response to external field at several bias currents. $T=36.6$ K.

류-온도의 비례관계가 관측된 경우도 많이 있다. 본 접합의 경우에는 normal metal로 사용한 CaRuO_3 가 전기전도도가 높아 당연히 SNS 특성이 나타나야 하는데도 불구하고 SIS 특성에 가깝다. YBCO와 CaRuO_3 의 경계면에서 재료의 mismatch로 인한 stress 때문에 일어난 것으로 추측이 되며, 이에 대한 보다 체계적인 연구가 필요하다.

외부 자기장에 의한 SQUID 전압의 변조신호를 임계온도 이하의 여러 온도에서 측정하였다. 변조 진폭은 4.2 K에서 약 $5 \mu\text{V}$, 10 K에서 $3 \mu\text{V}$, 40 K에서 약 $1 \mu\text{V}$ 이었고 52 K까지 관측되었다. Fig. 3.2.6은 36.6 K 온도에서의 SQUID 전류-전압 특성곡선을 나타내고 있으며, Fig. 3.2.7은 같은 온도에서 여러 바이어스 전류에 대하여 측정한 SQUID 변조신호를 나타내고 있다. Fig. 3.2.6에서 임계전류는 약 $28 \mu\text{A}$ 이며, Fig. 3.2.7에서 변조진폭이 임계전류 부근인 $30 \mu\text{A}$ 에서 최대값을 가지는 것을 알 수 있다. 그림에

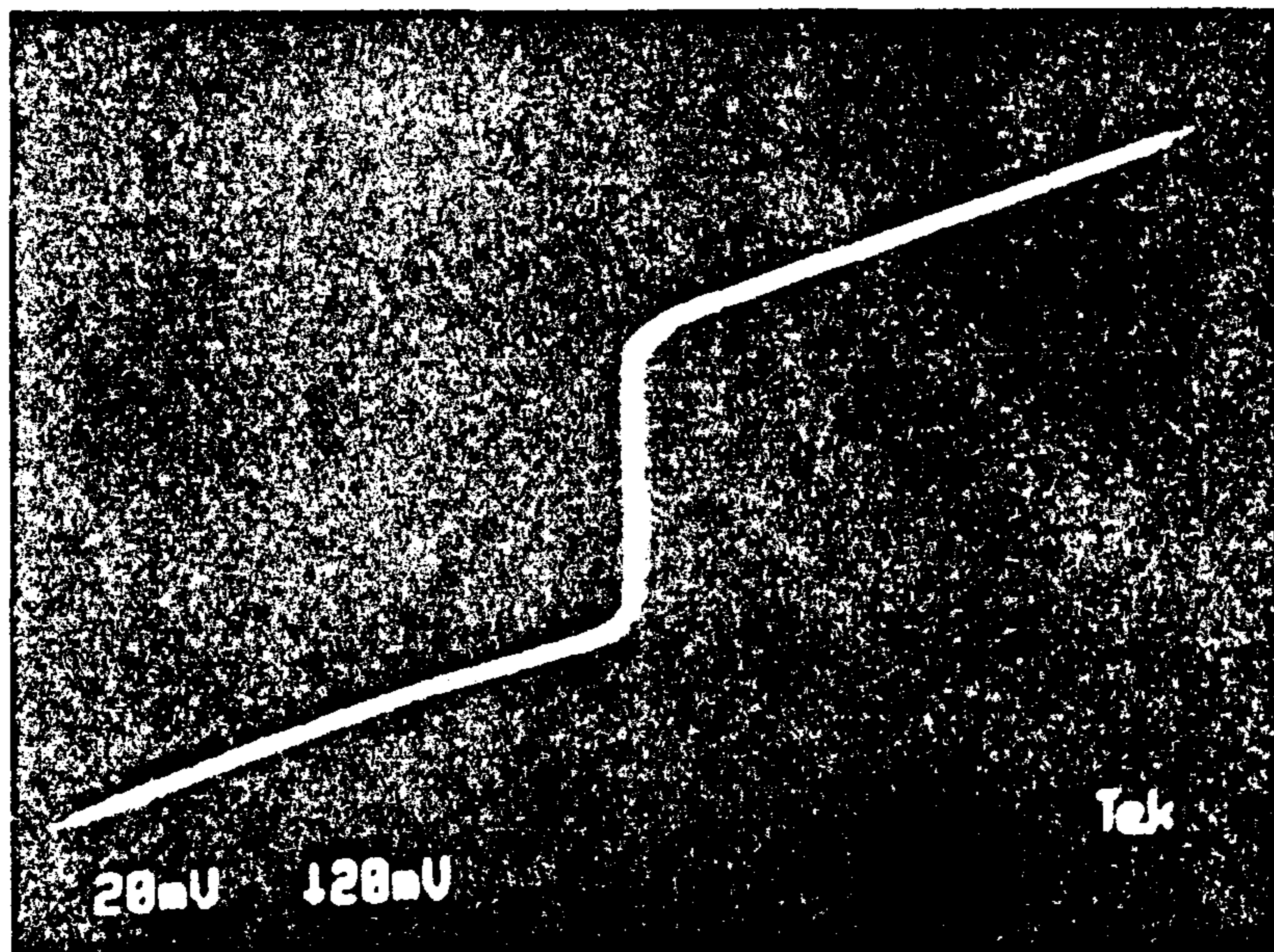


Fig. 3.2.7. Current-voltage curve of the SNS step edge junction SQUID at 36.6 K

서 SQUID의 일반적인 변조특성, 즉 바이어스 전류의 증가에 따라 변조진폭이 증가하여 임계전류 근방에서 최대값을 갖고 다시 차츰 감소하여 아주 높은 바이어스에 마침내 신호가 나타나지 않은 특성을 잘 나타내어주고 있다.

Fig. 3.2.7에서 임계전류보다 낮은 바이어스전류에서도 작은 변조신호가 관측되고 있는데, 심지어는 거의 제로 바이어스에서도 관측되고 있다. 이는 일반적으로 임계전류 이하에서 체로 저항인 SQUID에서는 관측되지 않는 결과이다. 실제로 임계전류 이하의 SQUID 전류-전압곡선을 확대하여 본 결과 수십 m Ω 의 저항을 관측하였으며, 접합을 통하여 flux가 Lorentz 힘에 의해 흘러서 나타나는 것으로 설명되고 따라서 작은 flux flow 전압이 자기장에 의하여 변조되어 나타난 것으로 보인다.

Fig. 3.2.8은 SQUID noise 측정을 위한 회로 개요도이다. 본 측정에서는 Nb SQUID 측정을 위하여 제작된 SQUID control 회로를 사용하였고, negative feedback을 사용한 flux-locked-loop(FLL) 모드를 사용하였으며 feedback 전류를 HP spectrum analyser로 측정하였다. Feedback coil은 가는 구리선을 감아서 만들어 사용하였다.

Fig. 3.2.9는 앞의 그림의 SQUID control 회로를 사용하여 4.2 K에서 측정 한 변조신호로서 최대진폭이 약 5 μ V이다. Fig. 3.2.10은 Fig. 3.2.8의 회로를 사용하여 4.2 K에서 측정한 noise 특성이다. 그림에서 100 Hz까지의 측정 주파수 구간에서 주파수가 높아짐에 따라 noise가 감소하나 1/f noise 특성을 나타내지는 않으며, 100 Hz에서의 flux noise는 $S_{\phi}^{1/2} = 6.9 \times 10^{-5} \phi_0 / \sqrt{\text{Hz}}$ 이다. 이 값을 다른 SQUID와 비교하기 쉬운 보다 일반적인 flux noise energy per bandwidth, 즉 $\epsilon(f) = S_{\phi} / 2L$ (L은 SQUID의 인덕턴스)로 환산하면

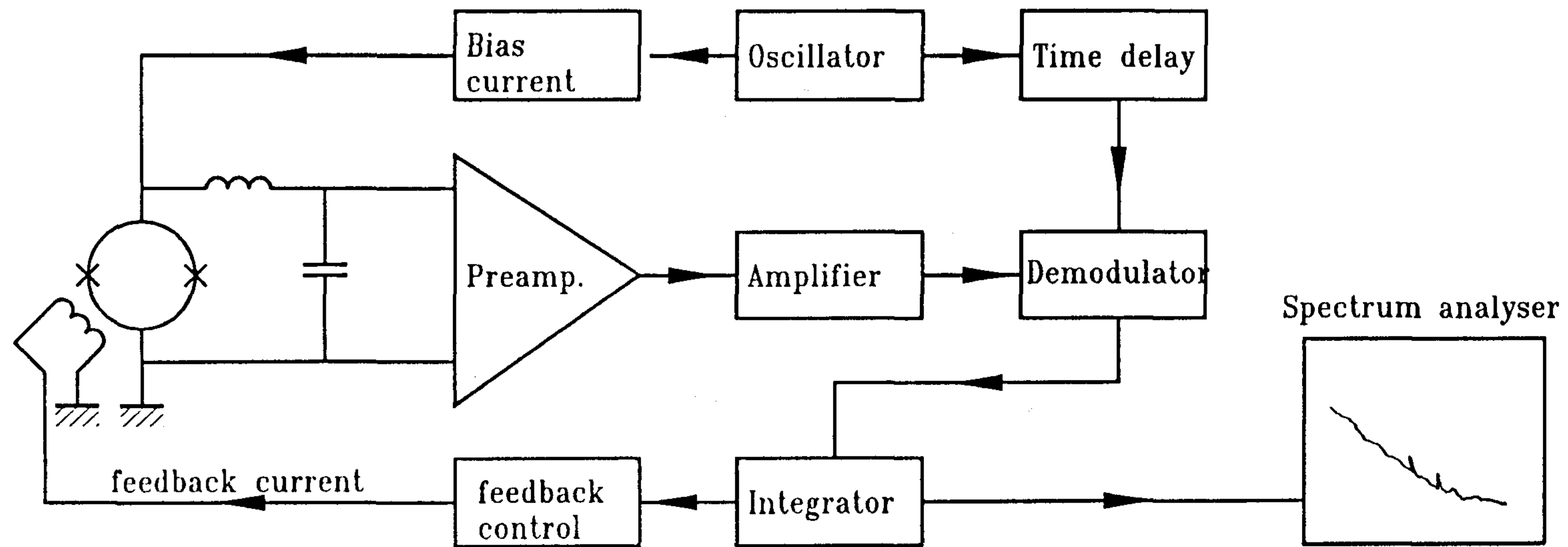


Fig. 3.2.8. Schematic of SQUID noise measurement circuit.

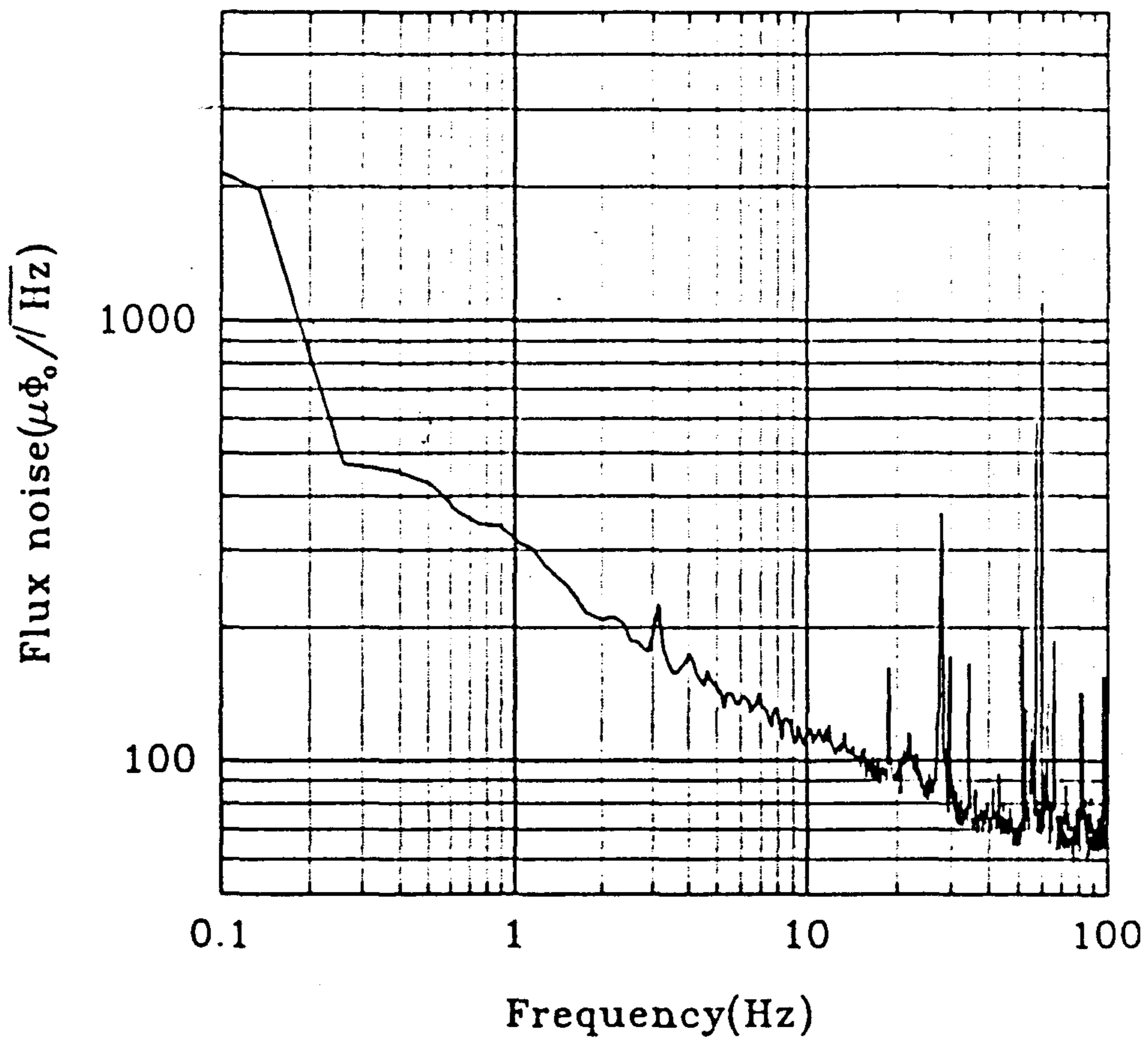


Fig. 3.2.9. Noise spectra of the SNS step edge junction dc SQUID measured in flux locked mode.

$\epsilon(100 \text{ Hz}) \approx 2 \times 10^{-28} \text{ J/Hz}$ 로서 지금까지 발표된 양질의 고온초전도 SQUID에 비하면 아직은 크다. 높은 수준의 noise는 앞서 언급한 접합에서의 flux flow 또는 임계전류 요동 등에 크게 기인하는 것으로 보인다.

Table 3.2.1에서는 CaRuO_3 를 normal metal로 사용한 SNS step edge junction SQUID의 여러가지 변수를 나타내고 있다. 표에서 알 수 있는 바와 같이 변수들이 비교적 이상적인 값에 가깝고 $I_c R_n$ 도 비교적 큰 값이나 임계온도를 높여야 하는 것이 숙제로 남아있다.

Table 3.2.1. Parameters of SNS step edge junction dc SQUID with CaRuO_3 as the normal conductor.

Geometry	
Washer size	$320 \mu\text{m} \times 330 \mu\text{m}$
Hole size	$40 \mu\text{m} \times 40 \mu\text{m}$
Junction width	$5 \mu\text{m}$
YBCO thickness	$1,500 \text{ \AA}$
Inductance	$L \cong 60 \text{ pH}$
Normal state resistance	$R_n \cong 3 \Omega$
Capacitance	$C < 0.1 \text{ pF}$
Critical current at 37 K	$2I_c = 25 \mu\text{A}$
Screening parameter	$\beta = 0.8$
Hysteresis parameter	$\beta_c < 0.04$
Focussing parameter	$A_{\text{eff}}/A = 8.6$
White noise at 4.2 K	$\epsilon < 2 \times 10^{-28} \text{ J/Hz}$

제 3 절 결 론

YBCO 단일층 step edge 접합 dc SQUID와 CaRuO₃ 박막을 normal metal 로 사용한 SNS 타입 step edge 접합 dc SQUID를 제작하고 그 특성을 조사하였다. 단일층 step edge 접합 SQUID의 경우 77 K에서 약 1 μ V 진폭의 SQUID 변조신호를 관측할 수 있었으며 SNS 접합 특성을 보였다.

YBCO/CaRuO₃ 이중박막을 이용한 step edge 접합 SQUID의 경우 접합의 임계온도는 52 K, 임계전류 온도의존성은 SIS 특성에 가깝게 나타났다. SQUID 변조진폭은 37 K에서 1.5 μ V, 4.2 K에서 약 5 μ V로 관측되었고, 4.2 K에서 측정된 flux noise는 $S_{\phi}=4.9 \times 10^{-11} \phi_0^2/\text{Hz}$ 이었다.

참 고 문 헌

- [1] C.B. Eom, J.Z. Sun, K. Yamamoto, A.F. Marshall, K.E. Luther and T. H. Geballe, *Appl. Phys. Lett.* 55, 595(1989).
- [2] K.P. Daly, W.D. Dozier, J.F. Burch, S.B. Coons, R. Hu, C.E. Platt and R.W. Simon, *Appl. Phys. Lett.* 58, 543(1991).
- [3] M.B. Ketchen, *IEEE Trans. Magn.* 17, 387(1981).
- [4] C.D. Tesche, *Cryogenics* 29, 1135(1989).
- [5] see, for example, A. Barone and G. Paterno, *Physics and Applications of the Josephson Effect*(John Wiley & Sons, New York, 1982), pp.161 ~169.
- [6] M.S. Dilorio, S. Yoshizumi, M. Maung, K.-Y. Yang, Z. Zhang, and N. Q. Fan, *Nature* 354, 513(1991).
- [7] N. Missert, T.E. Harvey, R.H. Ono, C.D. Reintsema, D.A. Rudman, and L.R. Vale, talk at ISEC'93, Boulder, Colorado, Aug. 12~14, 1993.
- [8] K. Char, M.S. Colclough, T.H. Geballe, and K.E. Meyers, *Appl. Phys. Lett.* 62, 196(1993).
- [9] G. Deutscher and K.A. Müller, *Phys. Rev. Lett.* 59, 1745(1987).
- [10] J. Gao, W.A.M. Arnink, G.J. Gerritsma, and H. Rogalla, *Physica C* 171, 126(1990).
- [11] C.W. Yuan, A.B. Berezin, and A.L. de Lozanne, *Appl. Phys. Lett.* 60, 2552(1992).

제 4 장 Edge junction SQUID 및 input coil 제작

제 1 절 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7/\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7/\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ ramp edge junction dc SQUID 제작

고온초전도체 SQUID는 저온초전도 Nb SQUID와는 달리 다층구조제작에 있어서 반드시 epitaxial해야하고 미시적원자구조에 민감한 초전도임계특성 등으로 인하여 그 제작조건이 훨씬 까다로와 재현성 및 안정성 등의 향상이 크게 대두된다. 또한 제작공정이 복잡하면 할수록 그에 따르는 특성이 감퇴되므로 많은 사람들이 제작공정을 최소화하는 방안을 강구하고 있다. 이를테면, 단일층 초전도박막을 이용한 SQUID로서 step-edge 접합 SQUID나 bi-crystal 기판을 사용한 grain boundary 접합 SQUID 등이 개발되기에 이르렀다. 그러나 device로서의 성능을 가지기 위해서는 multi-turn input coil을 사용해야 하므로 필연적으로 다층막기술이 개발되어야 한다.

Ramp edge junction SQUID는 다층막 구조를 이용한 대표적인 SQUID 형태로서 다른 형태의 SQUID에서는 하기 힘든 접합의 임계전류 임의조절을 barrier 물질의 종류나 두께를 조절함으로써 쉽게 바꿀 수 있는 커다란 장점이 있다. 아울러, 장기적으로는 이와 관련한 제작공정기술을 초전도 집적소자 기술개발에 적용할 수 있다.

본 연구에서는 이러한 점을 감안하여 input coil 뿐만 아니라 SQUID도 다층막을 이용한 ramp edge 접합 SQUID를 제작하였다. 우선, SQUID와 input coil을 따로 제작하여 결합하는 flip-chip coupling 방식을 채택하였고,

제작공정이 보다 발전된 다음 단계에서는 이들을 동일 기판 위에 제작하는 monolithic 장치를 만들고자 한다.

A. SQUID design

SQUID design은 용도에 따라 모양 및 사이즈가 정해지지만 각 변수들은 아래에 열거하는 일반적인 조건을 만족하여야 한다. SQUID의 최적 조건은 조셉슨 접합 및 SQUID loop 공히 각각 해당 변수가 그 조건을 충족시켜야만 한다.

SQUID에 필요한 조셉슨접합의 최적조건을 끌어내기 위해 resistively-shunted junction(RSJ) 모델을 근거로 살펴보기로 한다. Fig. 4.1.1에서 나타난 바와 같이 조셉슨 접합은 일반적으로 세가지 요소로 이루어져 있다. 즉, 조셉슨 터널링, 저항 및 capacitance가 병렬로 연결되어 있는 형태로서, 각 부분의 변수의 크기에 따라 그 성질이 크게 다르게 나타나게 된다.

첫째, 접합의 전류-전압 곡선이 hysteretic하지 않아야 한다. 즉, 전류 증가때와 감소때의 궤적이 동일곡선상에 있어야 동일 외부자기장에 대한 반응이 동일하게 나타난다. 이러한 특성을 갖기 위해서는 접합저항과 capacitance가 다음 관계를 만족시켜야 한다.

$$\beta_c = \frac{2\pi I_c R^2 C}{\phi_0} \leq \frac{1}{2} \quad (4)$$

둘째로, 접합의 임계전류가 thermal noise current보다 훨씬 커야 한다. 즉,

$$r = \frac{\hbar I_c}{ek_B T} \geq 10 \quad (5)$$

이어야 한다. 고온초전도 접합에서는 저온초전도 접합에 비해 작동온도가 약 20배 높기 때문에 이 조건을 만족하는 임계전류값의 하한선이 보다 큰 제약을 받는다. 작동온도가 77 K이면, 식 (5)를 만족하는 임계전류값은 약 $10 \mu\text{A}$ 이상이어야 한다.

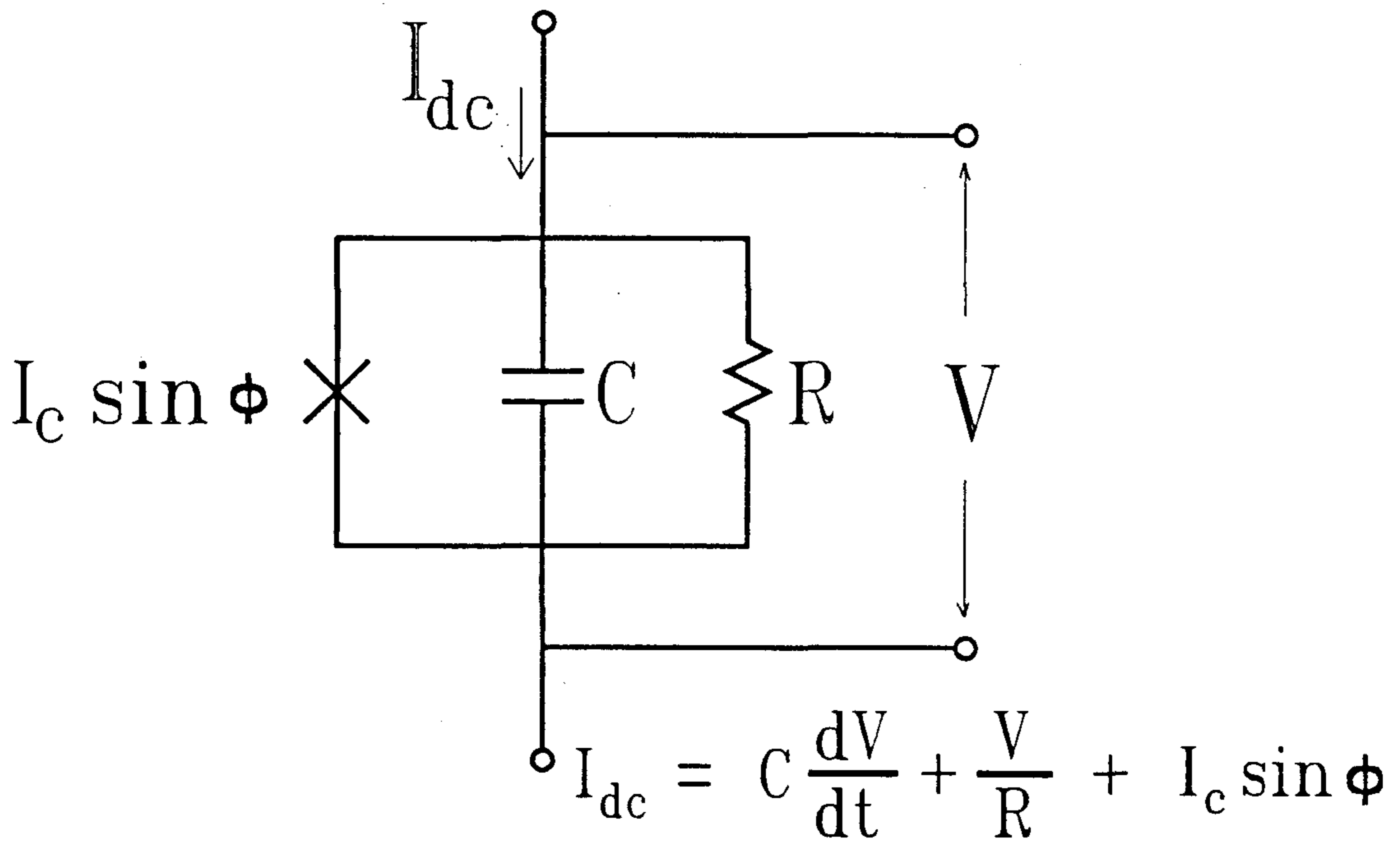


Fig. 4.1.1. Resistively-shunted-junction(RSJ) model of Josephson junction.

셋째로, 접합의 폭, w 가 Josephson penetration depth ω_j 의 2배보다 커야만 한다.

$$\omega < 2 \times \lambda_j = 2 \left[\frac{\hbar}{2e\mu_o J_c(T)(2\lambda_L + d)} \right]^{1/2} \quad (6)$$

(λ_L 은 London penetration depth).

식 (6)을 만족하지 않는 경우에는 접합내에 Josephson vortex가 발생하여 접합양단간에 위상차가 단일하지 않고, 또, vortex flow 효과에 의해서 SQUID 변조신호는 그 진폭이 크게 준다.

SQUID loop에 대한 조건으로는 우선, loop에 가해진 자속이 $\phi_0/2$ 일때 diamagnetic screening current의 크기가 접합의 임계전류와 같을 때에 변조 진폭이 최대가 된다. 즉,

$$\beta = \frac{2LI_c}{\phi_0} \cong 1 \quad (7)$$

이어야 한다. 그리고, 열에너지에 의한 loop의 flux noise가 $\phi_0/2$ 보다 작아야 한다.

$$(k_B T)^{1/2} < \frac{\phi_0}{4} \quad (8)$$

앞의 조건 즉, 식(4)~(8)을 만족하는 일반적으로 사용하는 대표적인 SQUID parameter는 다음과 같다.

$$I_c \simeq 10 - 100 \mu A$$

$$R_n \simeq 0.1 - 10 \Omega$$

$$C \leq 1 \text{ pF}$$

$$L \simeq 100 \text{ pH}$$

접합의 폭이 $3 \sim 10 \mu m$, 임계전류밀도가 약 $10^3 \sim 10^4 \text{ A/cm}^2$ 일때 이러한 조건을 대략 만족시키게 된다.

이러한 guideline에 따라 설계한 SQUID의 설계도가 Fig. 4.1.2에서 Fig. 4.1.4에 나타나 있다. 접합의 폭은 $5 \mu m$, washer의 사이즈가 $320 \mu m \times 330 \mu m$, hole의

크기가 $40\ \mu\text{m} \times 40\ \mu\text{m}$ 이다. Fig. 4.1.2는 magnetometer용 SQUID 설계도이며, Fig. 4.1.3과 Fig. 4.1.4는 gradiometer용 SQUID인데, 그중 Fig. 4.1.4는 uniform field에 대해서는 무반응한 '8'자 모양의 gradiometer형 SQUID이다.

B. Fabrication

Ramp edge 접합 SQUID의 제작공정은 Fig. 4.1.5에 나와 있다. 우선 SrTiO_3 기판위에 YBCO를 증착하고 in-situ로 그 위에 절연체로서 PBCO 박막을 레이저증착법으로 입힌다. 각각의 박막의 두께는 약 $2,000\ \text{\AA}$ 이다. 절연막으로는 SrTiO_3 박막을 사용하기도 하였다. 이 이중박막위에 모서리를 만들기 위한 포토리지스트 패턴을 만든다. 이때 사용한 리지스트는 Hoechst사의 1512로서 두께는 약 $1\ \mu\text{m}$ 이며, 현상후 postbaking은 리지스트 모서리의 라운딩을 피하기 위해 하지 않았다. PR 패턴후 샘플을 이온밀링 장치에 넣고 이온빔으로 식각하여 모서리를 이중막 모서리를 제작하였다.

모서리를 경사지게하기 위해 그림과 같이 아르곤 이온빔을 약 $45\sim 60^\circ$ 가량의 입사각도로 때려서 식각하였다. 이때 비록 느리긴하지만 PR의 식각 등에 의하여 실제 모서리 경사각은 더 완만하게 된다. 모서리가 지나치게 급한 경사각을 가질 때 그 위에 입혀지는 YBCO 박막이 epitaxial하지 않게 자라게 되어 접합이 잘 형성되지 않는다. PR을 아세톤으로 제거한 다음, 박막 및 기판 특히 모서리 부분을 cleaning해야 하는데, 샘플을 다시 밀링장치내에 넣고 식각때와 같은 각도에서 일단 대략 $100\ \text{\AA}$ 정도 식각한 후, low-voltage, low-current 이온빔으로 약 5분간 cleaning하였다.

Cleaning이 끝난 샘플은 공기 노출시간을 최소화하여 레이저증착장치에

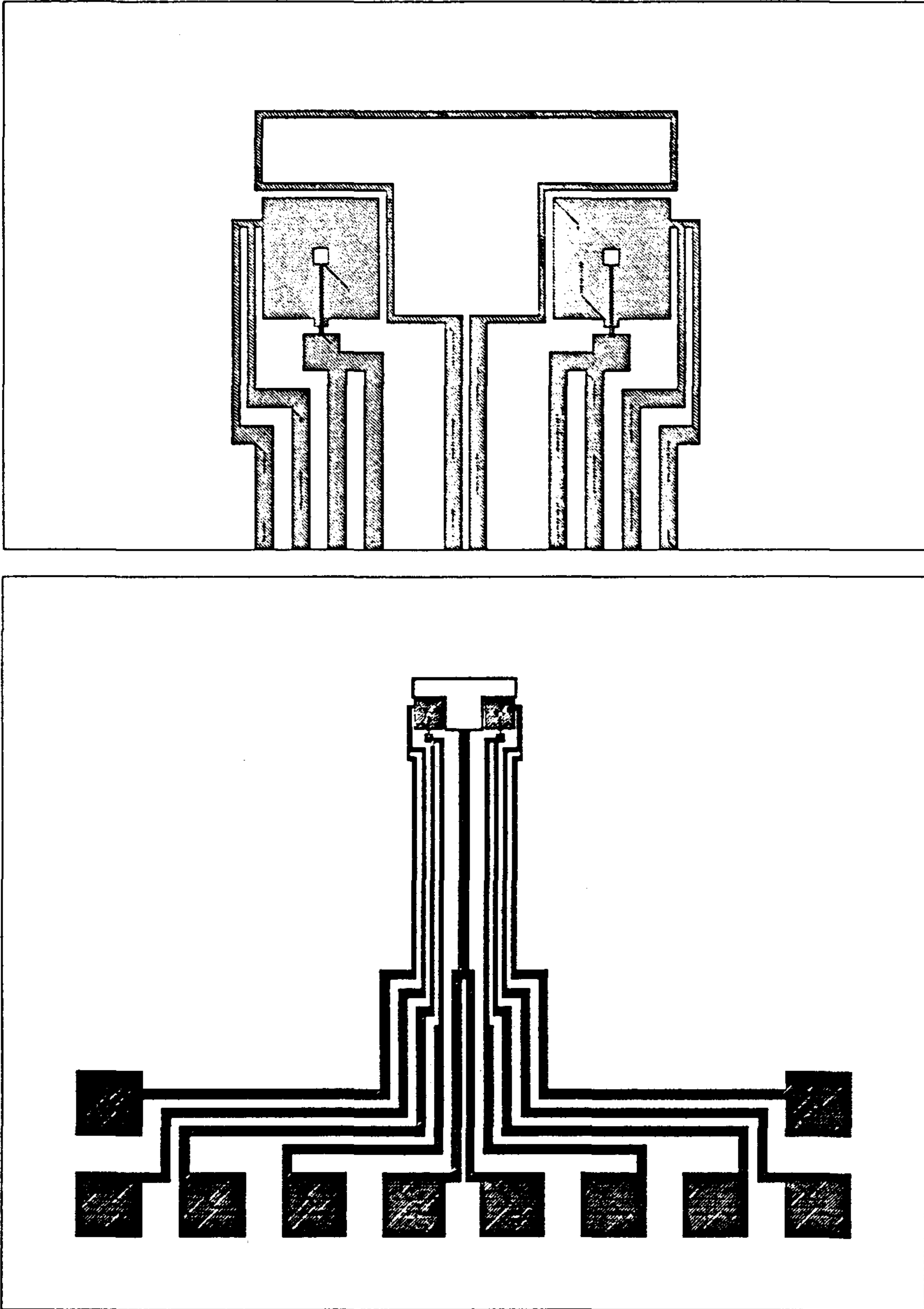


Fig. 4.1.2. Design of ramp edge junction dc SQUID for a magnetometer. Two symmetric SQUIDs share a common modulation coil.

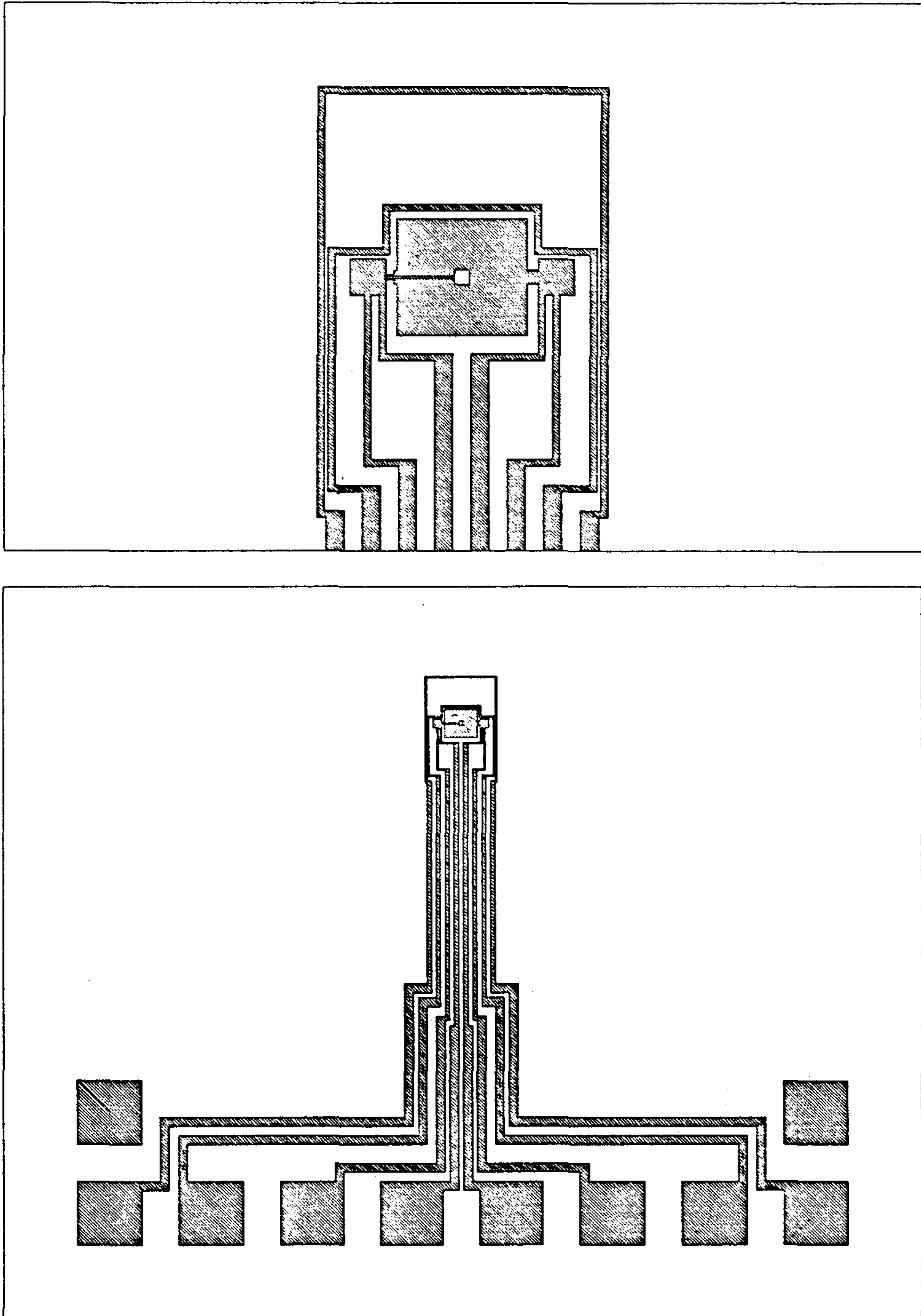


Fig. 4.1.3. Design of ramp edge junction SQUID for a single SQUID gradiometer.

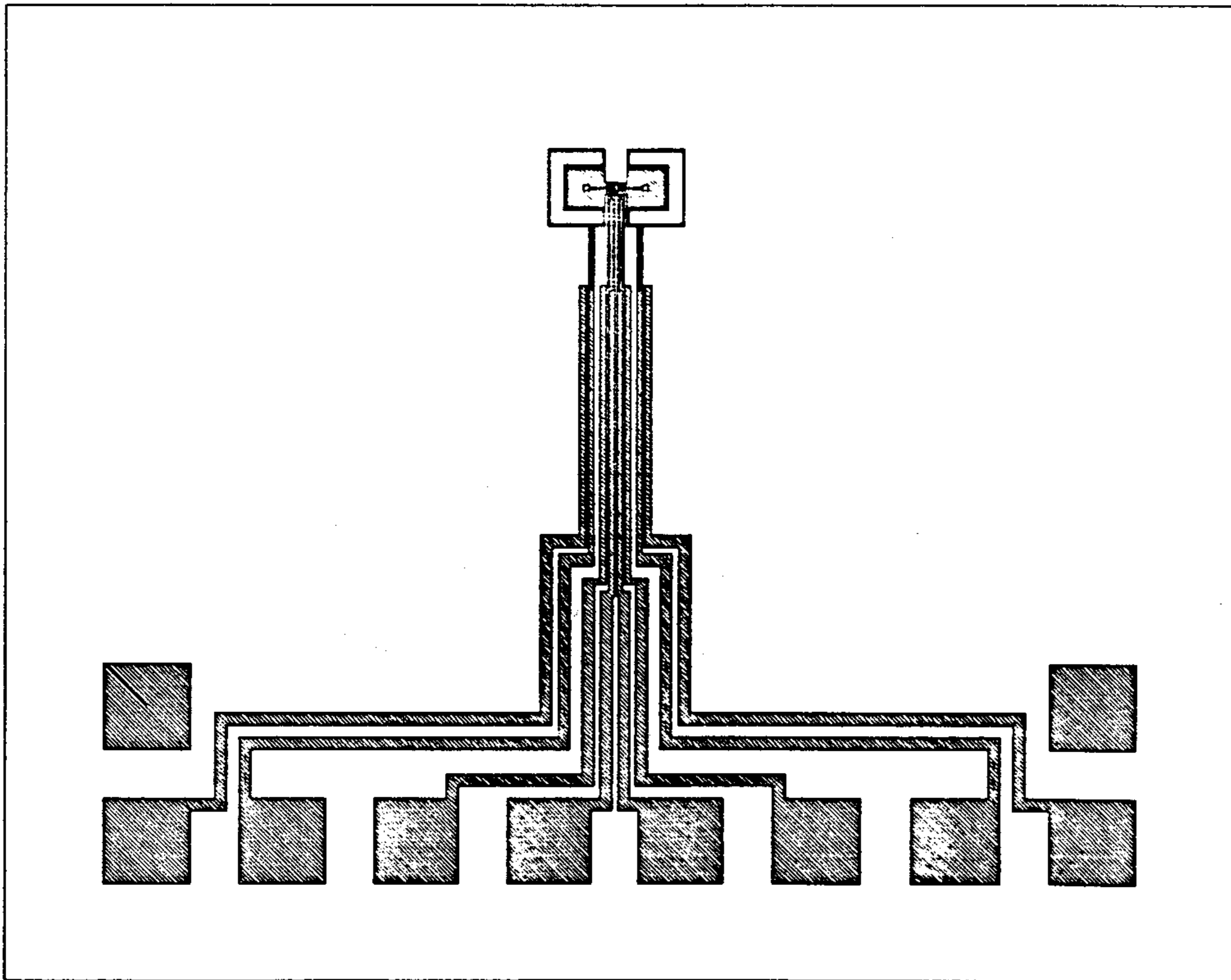
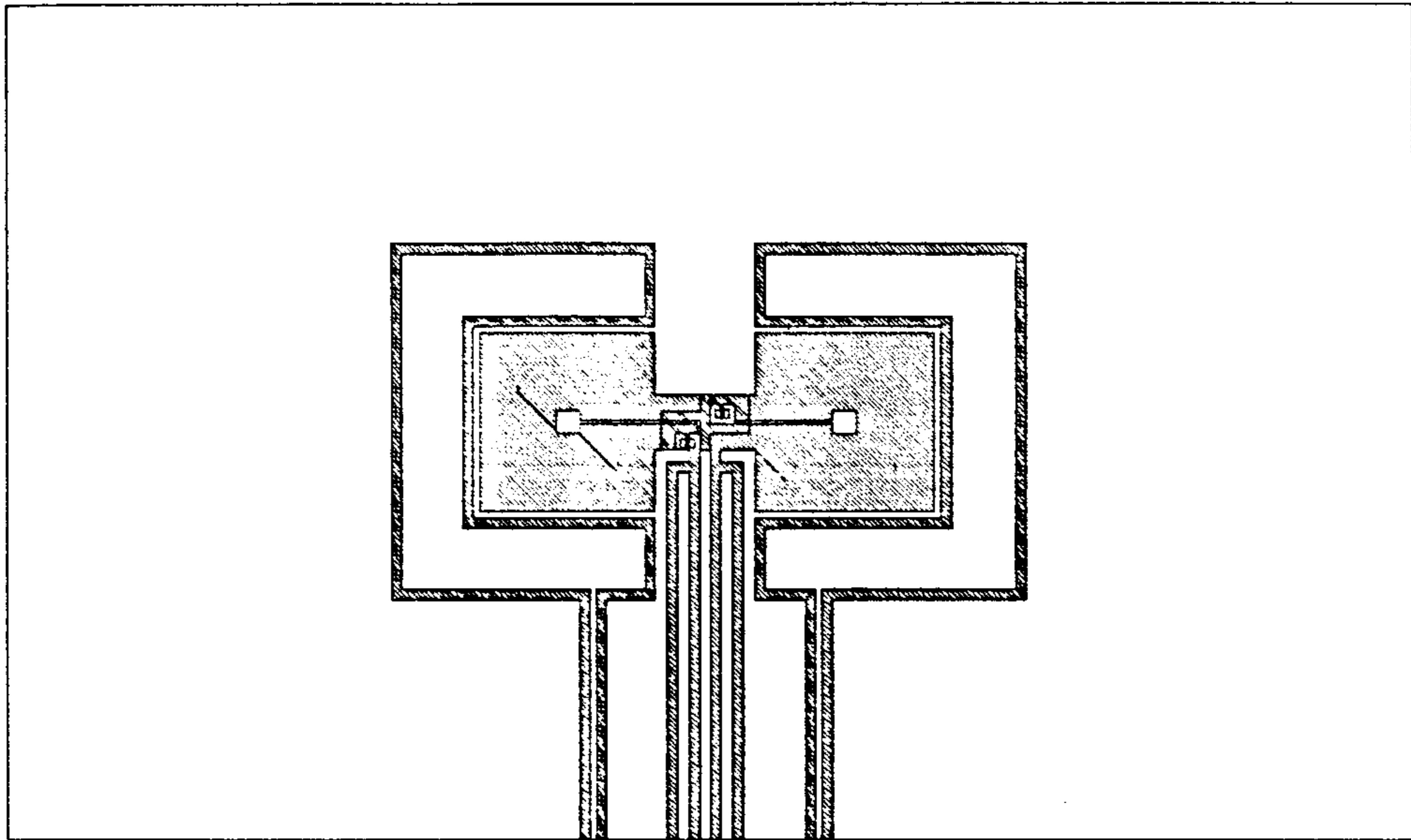


Fig. 4.1.4. Design of gradiometer type figure '8' SQUID for a gradiometer.

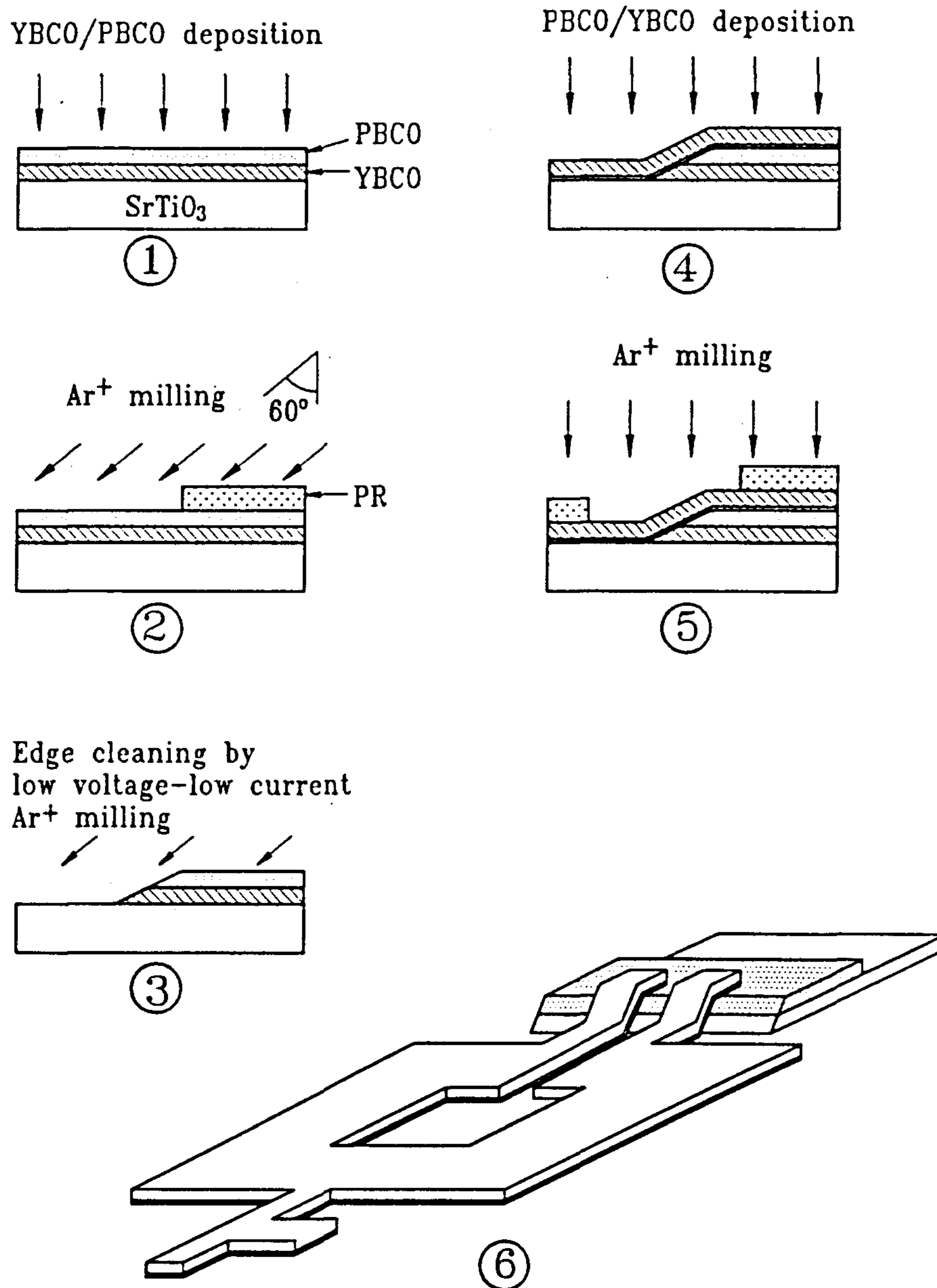


Fig. 4.1.5. Fabrication procedures of ramp edge junction SQUID.

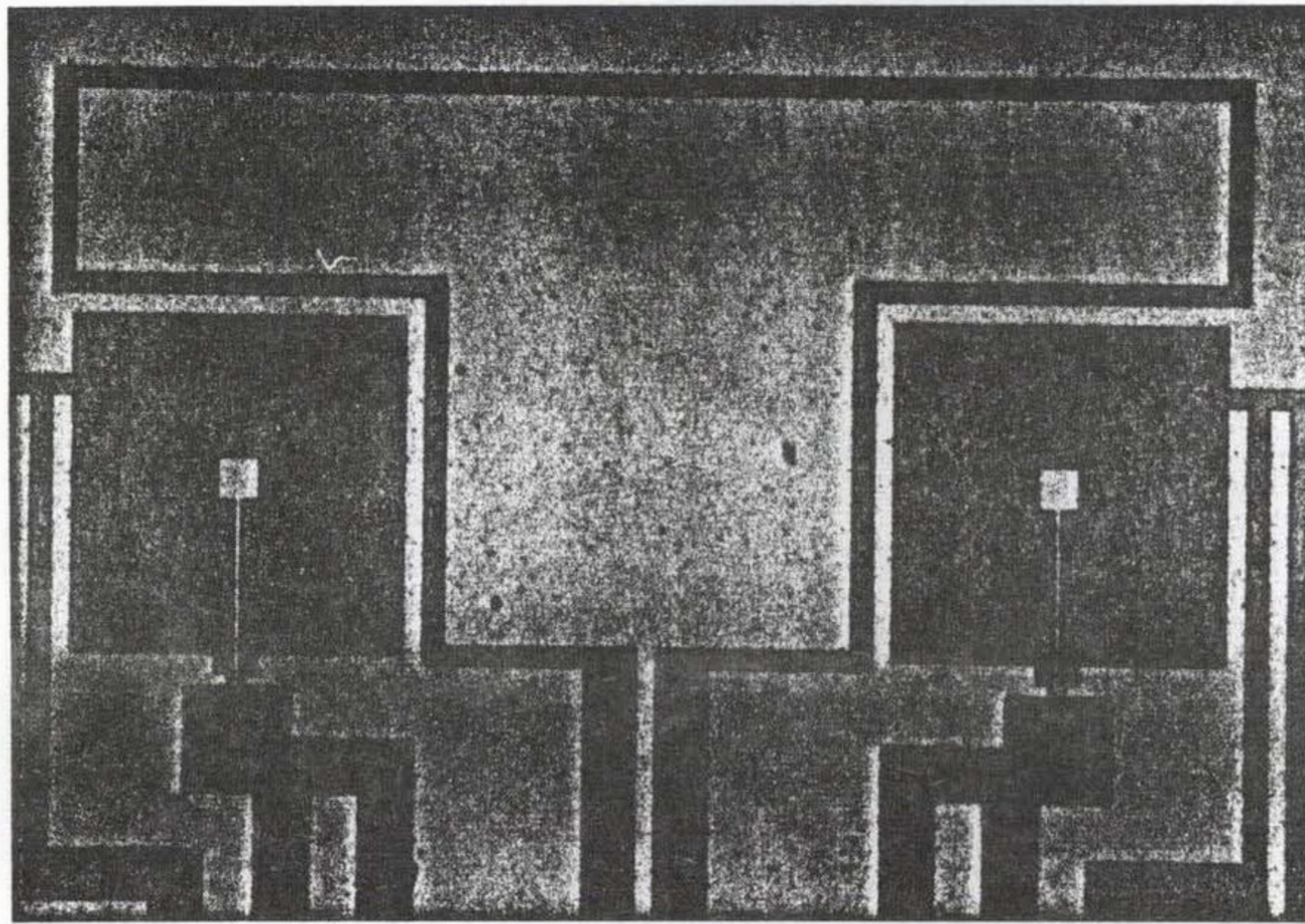
부착하고 PBCO barrier 및 YBCO counter electrode 박막을 증착하였다. Barrier로 사용한 PBCO 박막은 두께는 약 100 Å 이하로 하였고 YBCO 박막은 약 2,000 Å이었다. 마지막으로 PR 패터닝을 한 후, 아르곤 이온식각 방법으로 SQUID를 완성하였다.

Fig. 4.1.6은 제작된 SQUID washer와 접합부분을 광학현미경으로 확대하여 찍은 사진이다. 접합 부분 확대사진에서 알 수 있듯이 레이저증착 박막에 일반적인 작은 알갱이들이 군데군데 발견되고 있으나 거의 모든 경우에 그림과 같이 모서리접합 부분에는 발견되지않아 실제 device 제작에는 문제가 거의 되지 않고 있다. Fig. 4.1.6에서는 SrTiO₃ 박막을 절연막으로 사용하였는데, 그림에서는 SrTiO₃ 절연박막이 이온빔에 의하여 불균일하게 식각되어 표면이 거칠게 나타나고 있다. 이러한 불균일 식각은 이온빔 식각시 기판을 회전시키면 된다.

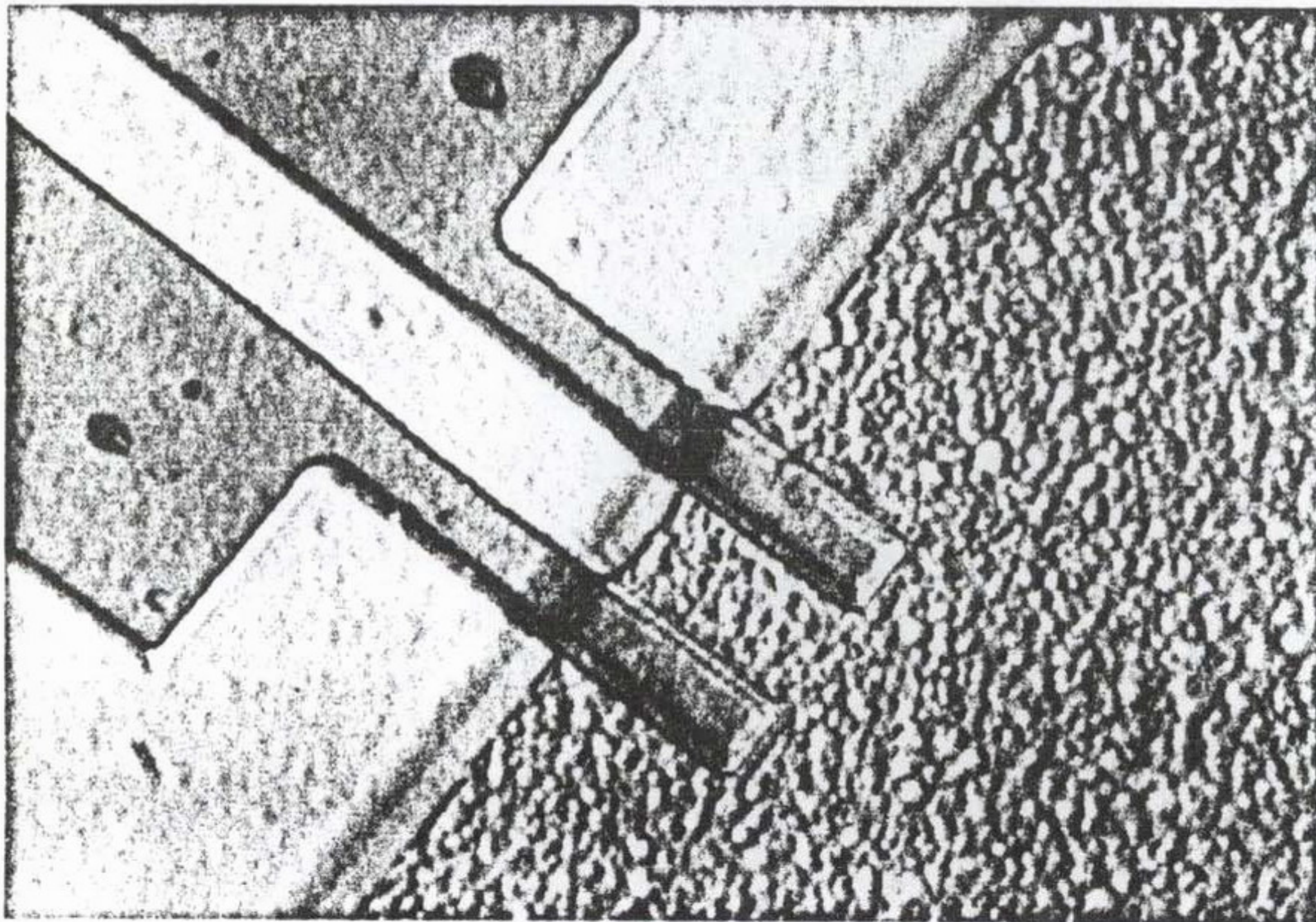
PBCO 박막을 두껍게 입혀 절연막으로 사용할 경우, Fig. 4.1.7의 사진에서와 같이 박막에 심한 crack이 발견되는 경우가 종종 발견되었다. 이는 PBCO와 YBCO 열팽창계수의 차이로 인하여 발생한 stress때문에 이온밀링 및 박막증착에 따르는 가열-냉각과정을 거치면서 생긴 것으로 보인다. 이 문제를 피하기 위해서 절연막은 SrTiO₃ 박막으로 모두 대체하였다.

C. Current-voltage characteristics

측정한 SQUID의 온도에 따른 전류-전압 특성곡선들이 Fig. 4.1.8에서 Fig. 4.1.10에 나타나 있다. 임계전류가 최대인 $\phi = n\phi_0$ 상태에서의 I - V 곡선을 살펴보면, 77 K에서 임계전류값이 약 50 μ A이고 임계온도 근방에서는



100 μm



5 μm

Fig. 4.1.6. Photograph of fabricated ramp edge junction dc SQUID.
Junction width is $3\ \mu\text{m}$.

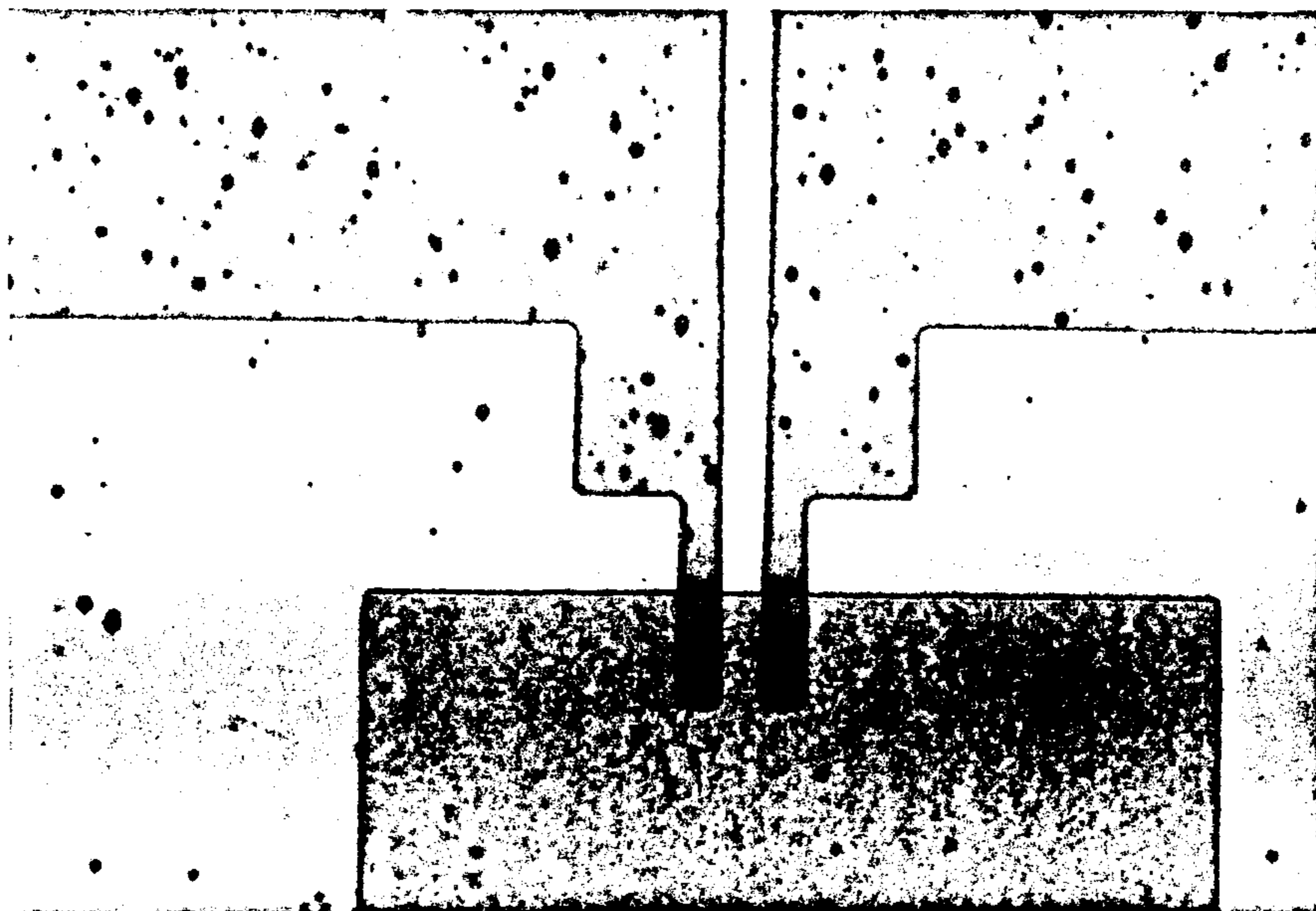
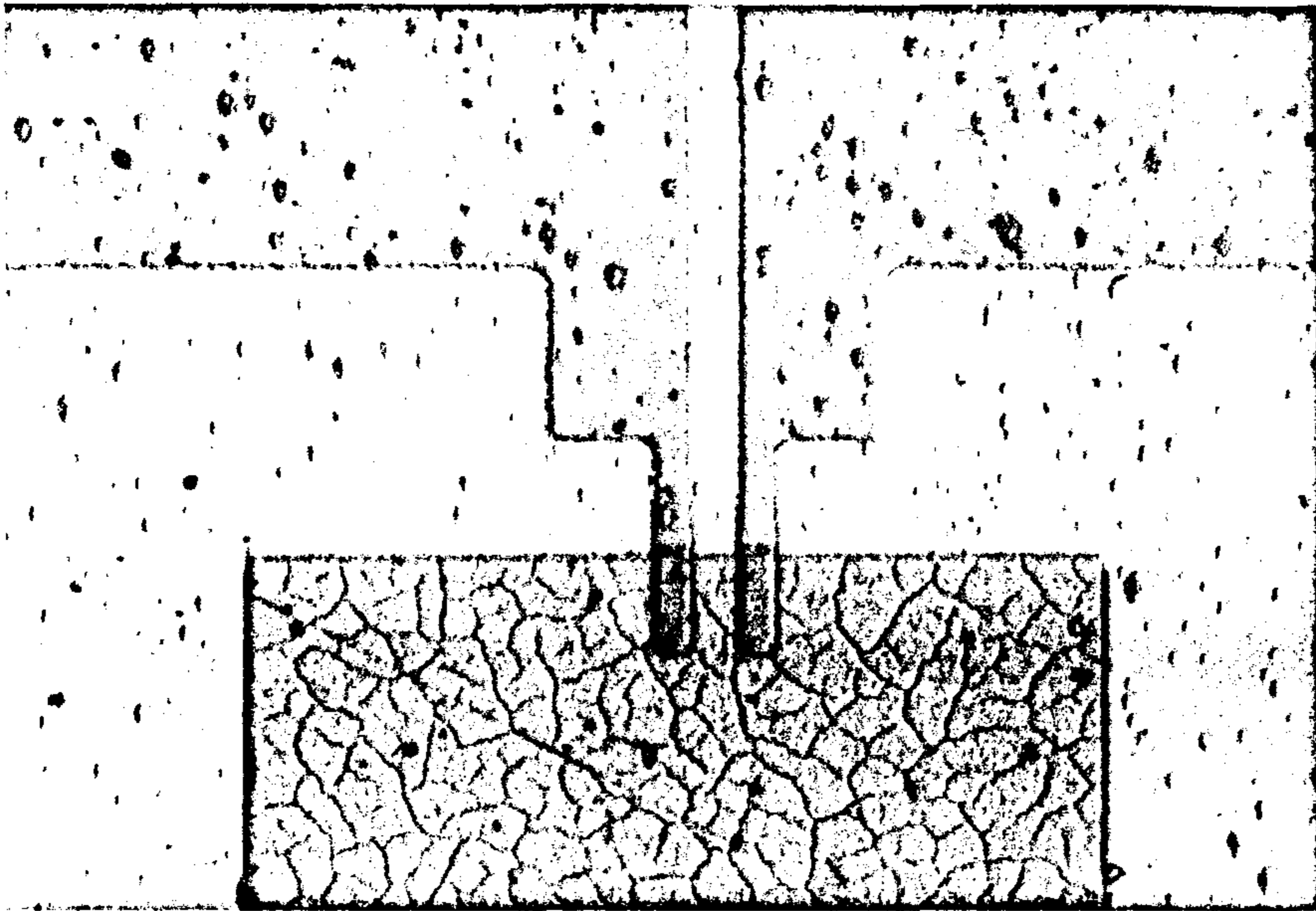


Fig. 4.1.7. Photographs of ramp edge junction SQUIDs with (a) PBCO and (b) SrTiO_3 as the insulator. Notice the microcracks of the PBCO film in (a).

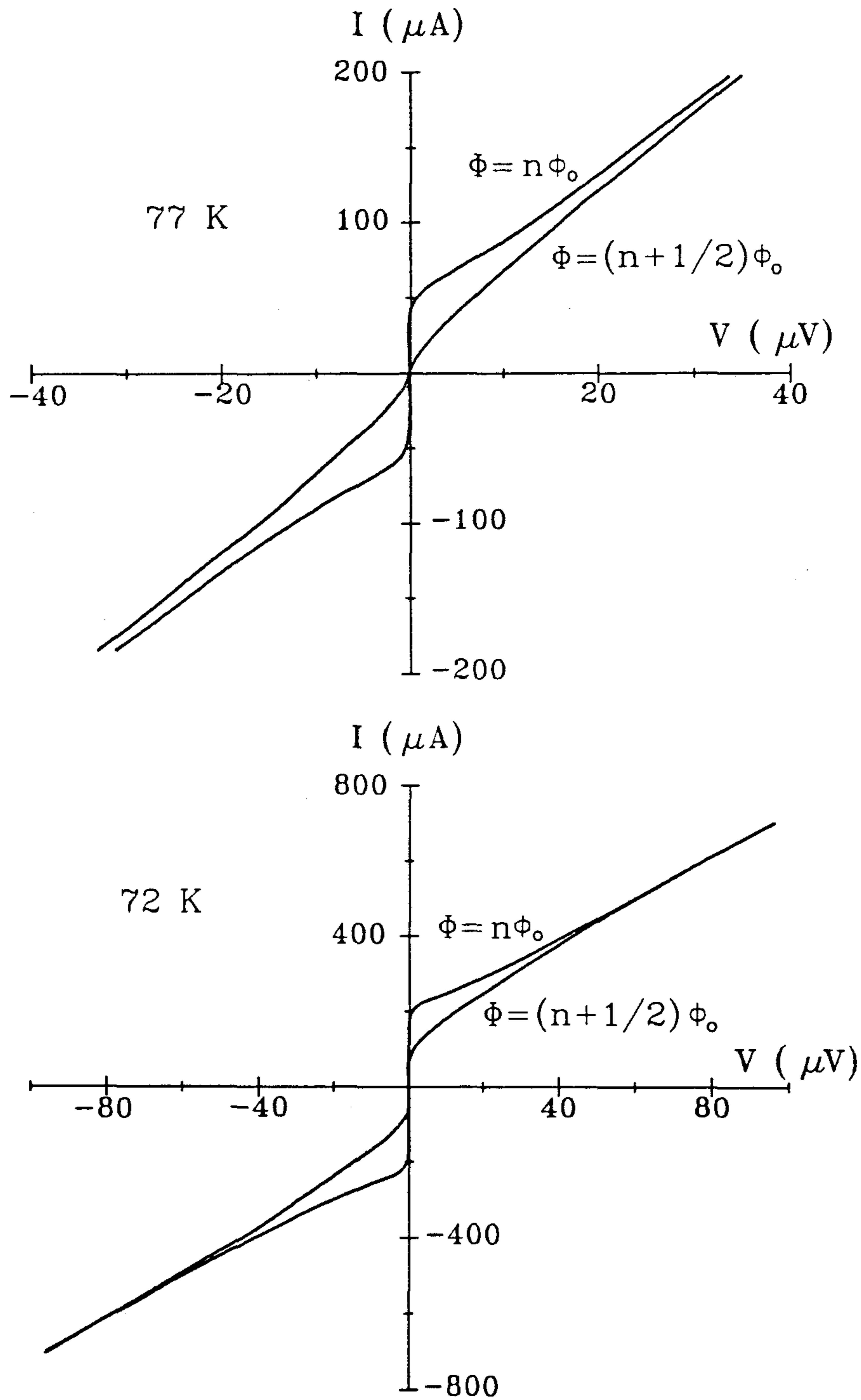


Fig. 4.1.8. Current-voltage curves of the ramp edge junction SQUID measured at zero flux and $\phi_0/2$ flux:

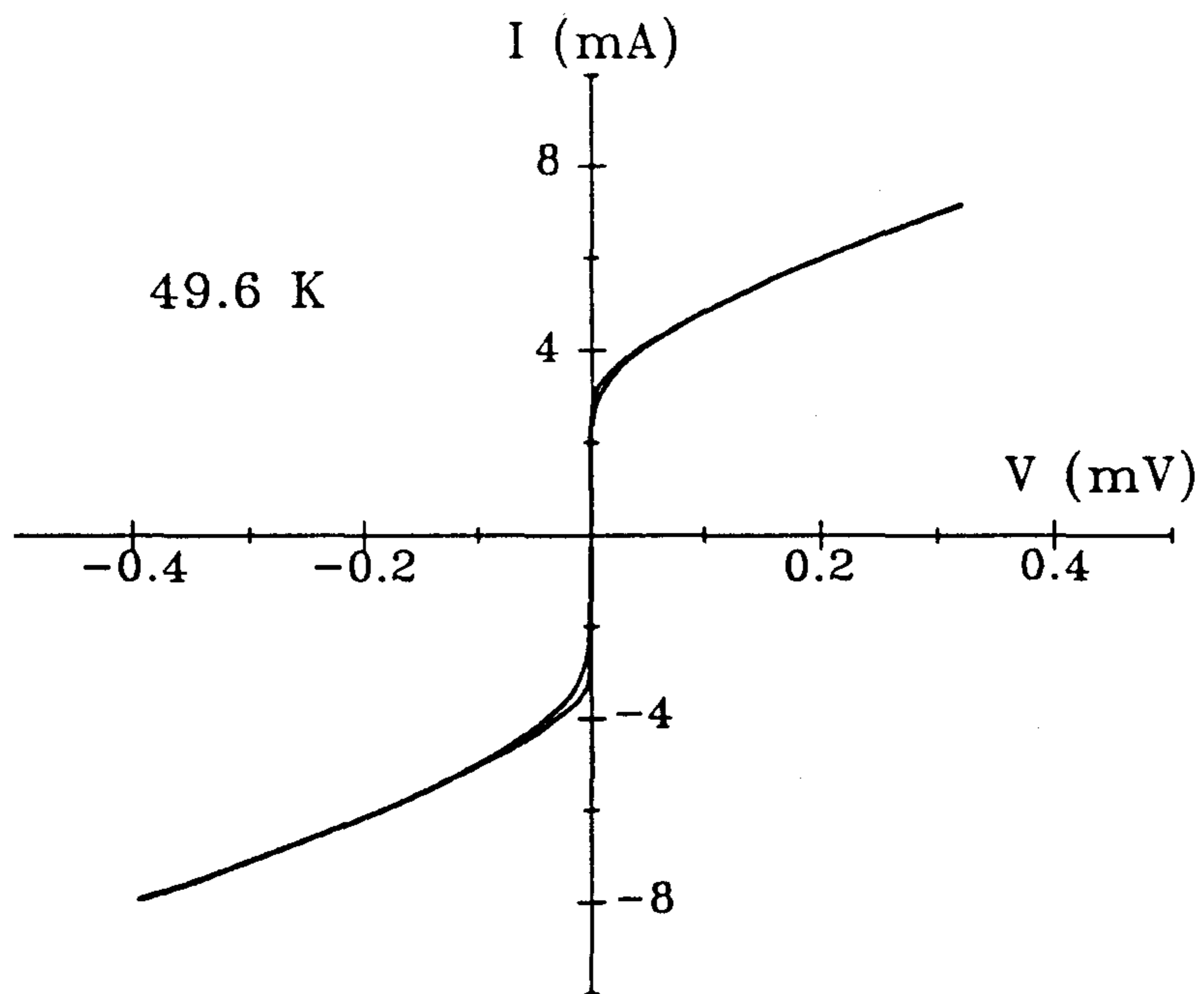
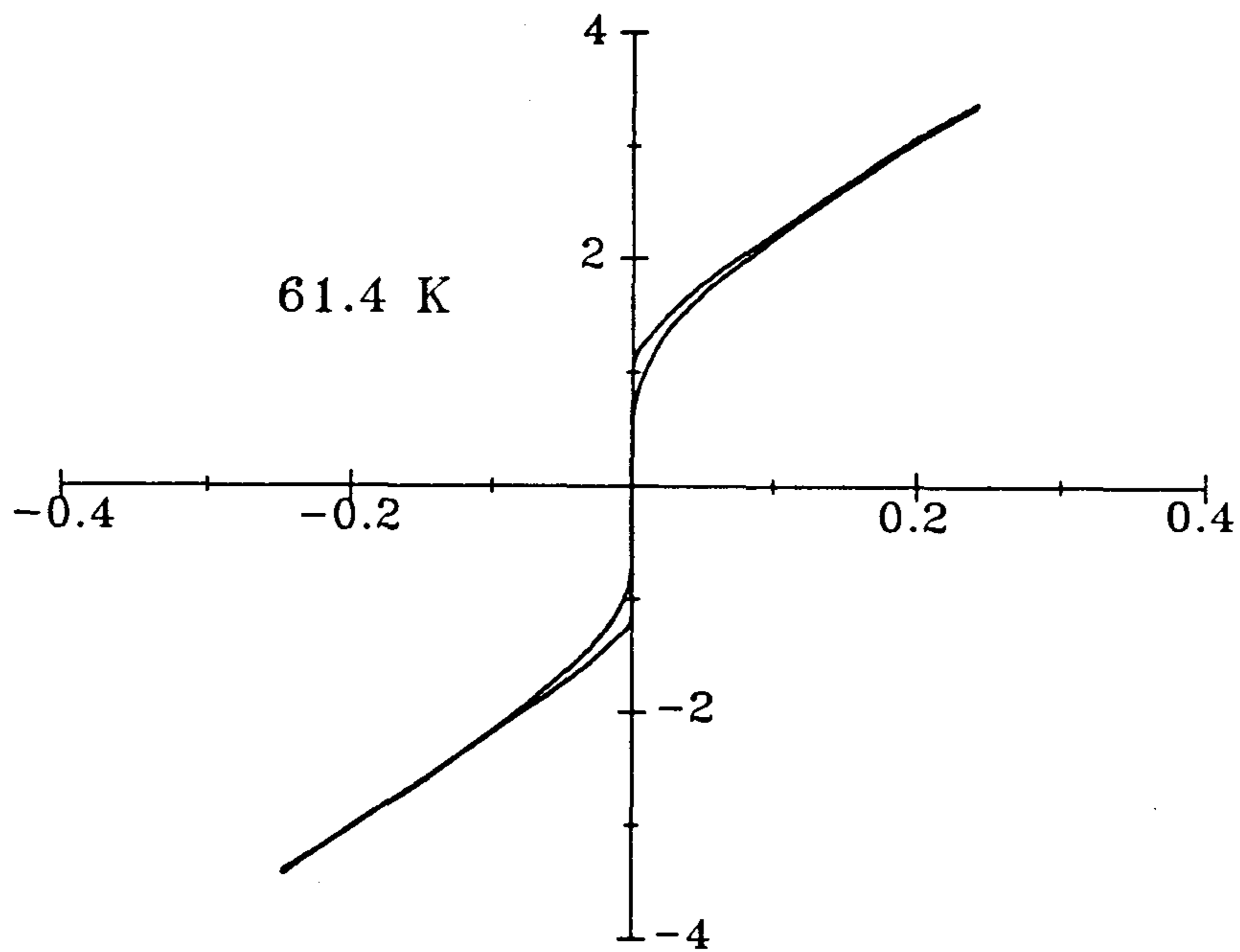


Fig. 4.1.9. Current-voltage curves of the ramp edge junction SQUID measured at zero flux and $\phi_0/2$ flux.

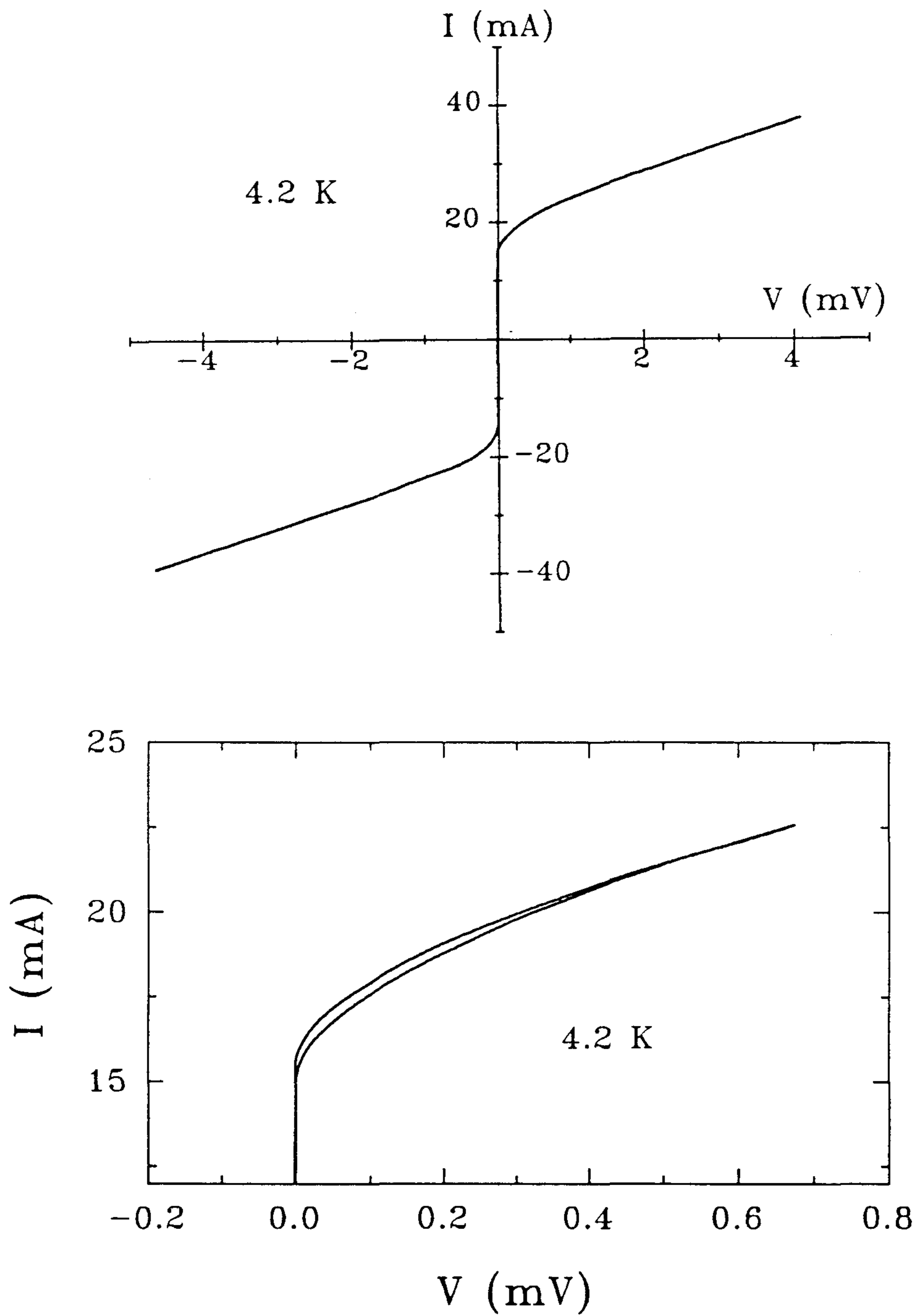


Fig. 4.1.10. Current-voltage curves of the ramp edge junction SQUID measured at zero flux and $\phi_0/2$ flux.

RSJ 모델과 잘 일치하지만 온도가 내려갈수록 RSJ 특성에서 벗어나는 경향을 보이고 있고, 특히, 높은 전압에서의 전류값이 모델에서 벗어나 큰 값을 갖는 것을 알 수 있다. 구체적으로는, 임계전류 부근에서 $I - V$ 곡선이 rounding되고 높은 전압에서 excess current가 관측되고 있다. 이러한 $I - V$ 특성곡선에 대해서 thermal fluctuations을 고려한 RSJ 모델을 근거로 보다 자세히 분석해보기로 한다.

Fig. 4.1.1에서 접합의 전류를 각 부분에 흐르는 전류의 합으로 나타내면^[1],

$$I_{dc} = C \frac{dV(t)}{dt} + \frac{V(t)}{R} + I_c \sin\phi(t) \quad (9)$$

과 같다. 이 식과 함께 ac Josephson effect를 나타내는 다음의 식이 접합의 특성을 결정짓는다.

$$\frac{d\phi}{dt} = 2e \frac{V(t)}{\hbar} \quad (10)$$

일반적으로 저온초전도 조셉슨접합이나 임계전류가 큰 small 조셉슨접합의 특성은 식(9)와 (10)으로 설명이 된다. 그러나 고온초전도 조셉슨접합의 경우 작동온도가 높아 열에너지에 의한 효과를 무시할 수가 없다. 이 경우 식(9)에 thermal noise current를 삽입하여 조사한다. 즉,

$$I_{dc} = C \frac{dV(t)}{dt} + \frac{V(t)}{R} + I_c \sin\phi(t) - I_N(t) \quad (11)$$

이다. 식(11)에서 $I_N(t)$ 은 thermal noise current를 나타낸다. Thermal noise current $I_N(t)$ 의 크기는 열에너지, 즉, 온도에 의해 결정되며 다음의 식을 만족한다.

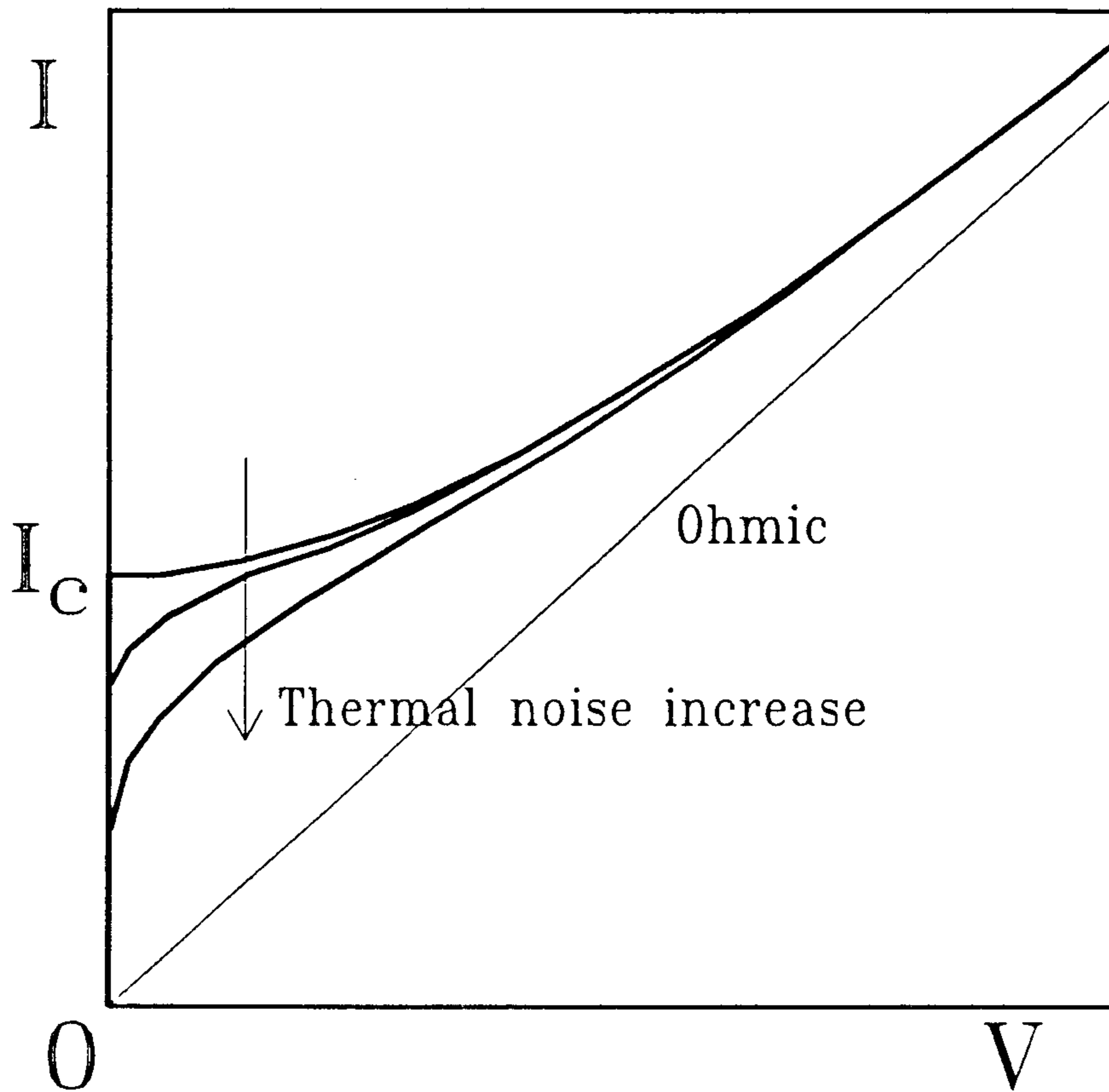
$$\begin{aligned} \langle I_N(t) \rangle &= 0, \\ \langle I_N(t+\tau)I_N(t) \rangle &= \frac{2k_B T}{R} \delta(\tau). \end{aligned} \quad (12)$$

(12)의 위 식은 'noise current는 0'을 나타내고, 아래식은 noise의 amplitude를 나타낸다.

식(11)~(13)을 analytic하게 정확히 푸는 것은 불가능하다. 그러나, 이 식들을 풀지 않고도 thermal noise current에 의한 효과를 정성적으로 대략 알수가 있다. 우선, 임계전류는 noise current에 의해 줄어드는 것은 쉽게 이해할 수 있는데 그 감소폭은 대략 noise current의 크기에 비례해서 줄어든다. 실제 감소폭은 noise current의 평균크기보다 큰데, 이는 noise의 진폭 분포가 넓게 퍼져 있고 또 순간적으로 진폭이 큰 noise current에 보다 큰 영향을 받기 때문이다. β_c 가 1보다 작은, 즉, hysteretic하지 않은 접합의 경우, 전압이 0이 아닌 상태에서는 기존의 ac 조셉슨 효과의 존재로 noise current의 효과는 급속히 감소할 것이라는 것도 어렵지 않게 이해할 수 있다. 이 결과를 대략적으로 I-V 곡선에 나타내보면 Fig. 4.1.11과 같다. Hysteretic한 접합의 경우에는 보다 복잡한 결과가 나타나는데, 실제 SQUID에서는 hysteretic하지 않은 접합을 사용하므로 여기에서는 다루지 않는다.

앞의 정성적인 논의를 β_c 또는 capacitance C가 작은 경우에 대해 보다 정량적으로 자세히 살펴보기로 한다. 식(10)~(12)를 풀면 다음과 같은 적분식으로 나타난다.^{[1][2]}

$$\eta = \frac{2}{r} \frac{1 - e^{-\pi\gamma\alpha}}{\int_0^{2\pi} e^{-\frac{\gamma}{2}\alpha\psi} I_0\left(r\sin\frac{\psi}{2}\right) d\psi} \quad (13)$$



As the thermal noise increases

- critical current decrease
- Rounding near the critical current
- Approach the Ohmic line at high voltage

Fig. 4.1.11. Effect of thermal fluctuations on the current-voltage curves of Josephson junctions.

$$\eta \equiv \frac{V}{RI_c}, \quad \alpha \equiv \frac{I}{I_c},$$

$$r \equiv \frac{\hbar I_c}{ek_B T}$$

윗 식에서 I_c 는 modified Bessel function이다.

식(13)의 결과를 Fig. 4.1.12에 여러가지 값의 r 에 대해서 그렸다. 식(13)에서도 알 수 있듯이 $r=0$ 일때, 즉, 열에너지가 무한대로 크거나 임계 전류가 0일때, $V=IR$, 즉 옴의 법칙결과를 얻게 되고, $r=\infty$, 즉 thermal noise current가 없을 때 $I < I_c$ 에 대해서는 $V=0$, $I > I_c$ 에 대해서는 $V=R(I^2 - I_c^2)^{1/2}$ 의 결과를 얻는다. 그림에서 나타난 바와 같이 고정 온도에서는 임계 전류가 작아짐에 따라 zero voltage 전류값이 감소하고 rounding이 심해진다. 대략 r 값이 10 이상일 때 자기장의 변화에 따른 변조를 분명히 관측할 수가 있다.

Fig. 4.1.13은 77 K와 72 K에서의 $I - V$ 곡선을 앞의 이론과 비교한 결과이다. 77 K에서는 이론과 관측결과가 크기 및 모양에 있어서 잘 일치하고 있다. 72 K에서는 임계 전류 부근에서는 비교적 잘 일치하고 있으나 높은 전압 영역에서는 측정값이 이론치보다 크고 두 곡선이 평행하게 증가하고 있음을 알 수 있다. 이러한 측정치와 이론치의 차이는 접합의 폭이 Josephson penetration의 두배보다 클 경우에 나타나는데, 이 excess current는 J. Clarke에 의하여 Al접합에 대해 체계적으로 조사된 바가 있다.^[3]

Clarke의 설명에 따르면, Fig. 4.1.14에서와 같이 접합의 폭이 Josephson penetration depth λ_J 보다 훨씬 클 경우에 접합의 가장자리에서 생긴 Josephson vortex가 Lorentz 힘에 의하여 접합의 중심쪽으로 가속이 되어

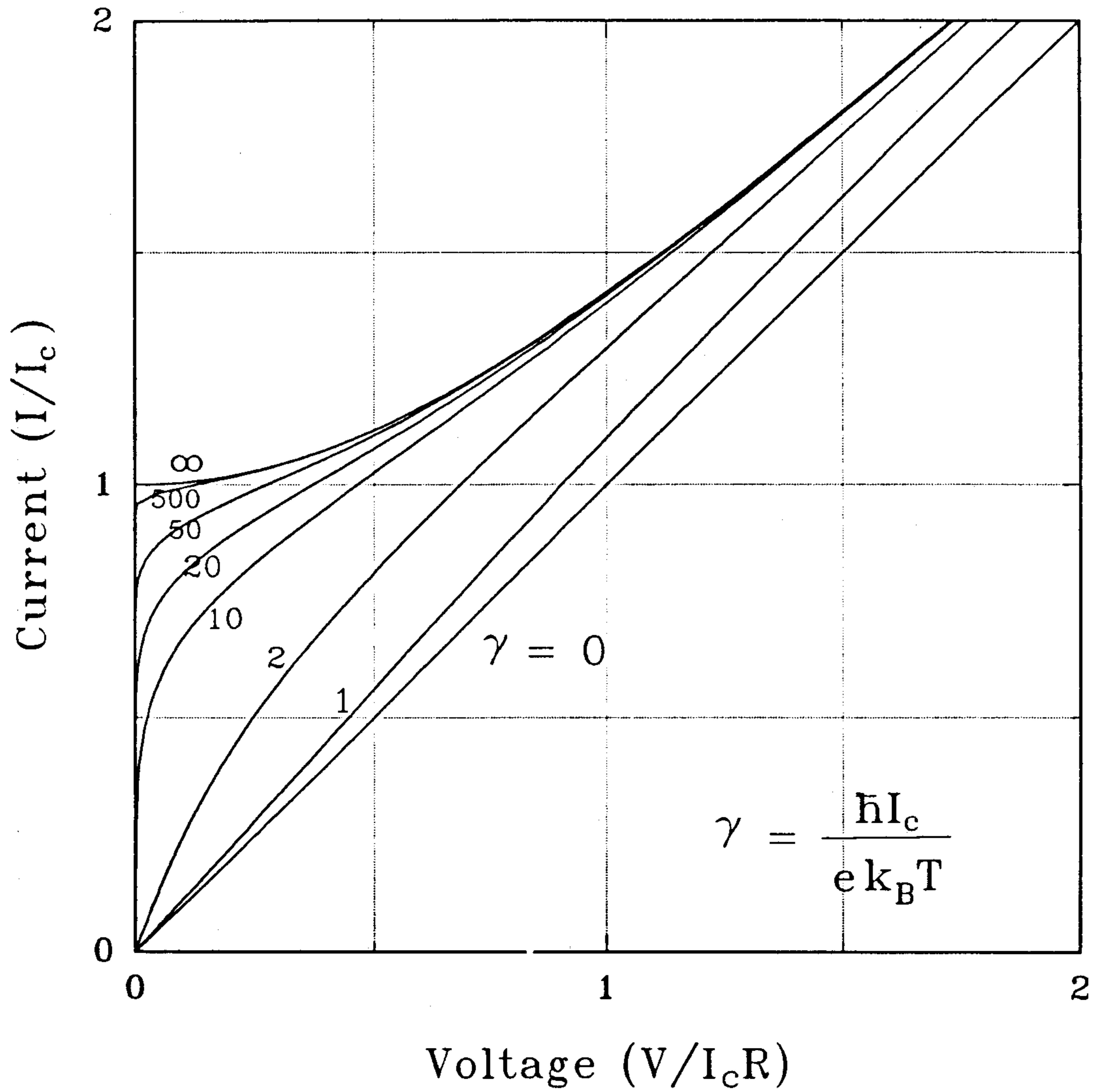


Fig. 4.1.12. Current-voltage curves at various strengths of thermal noise currents, $ek_B T/\hbar$.

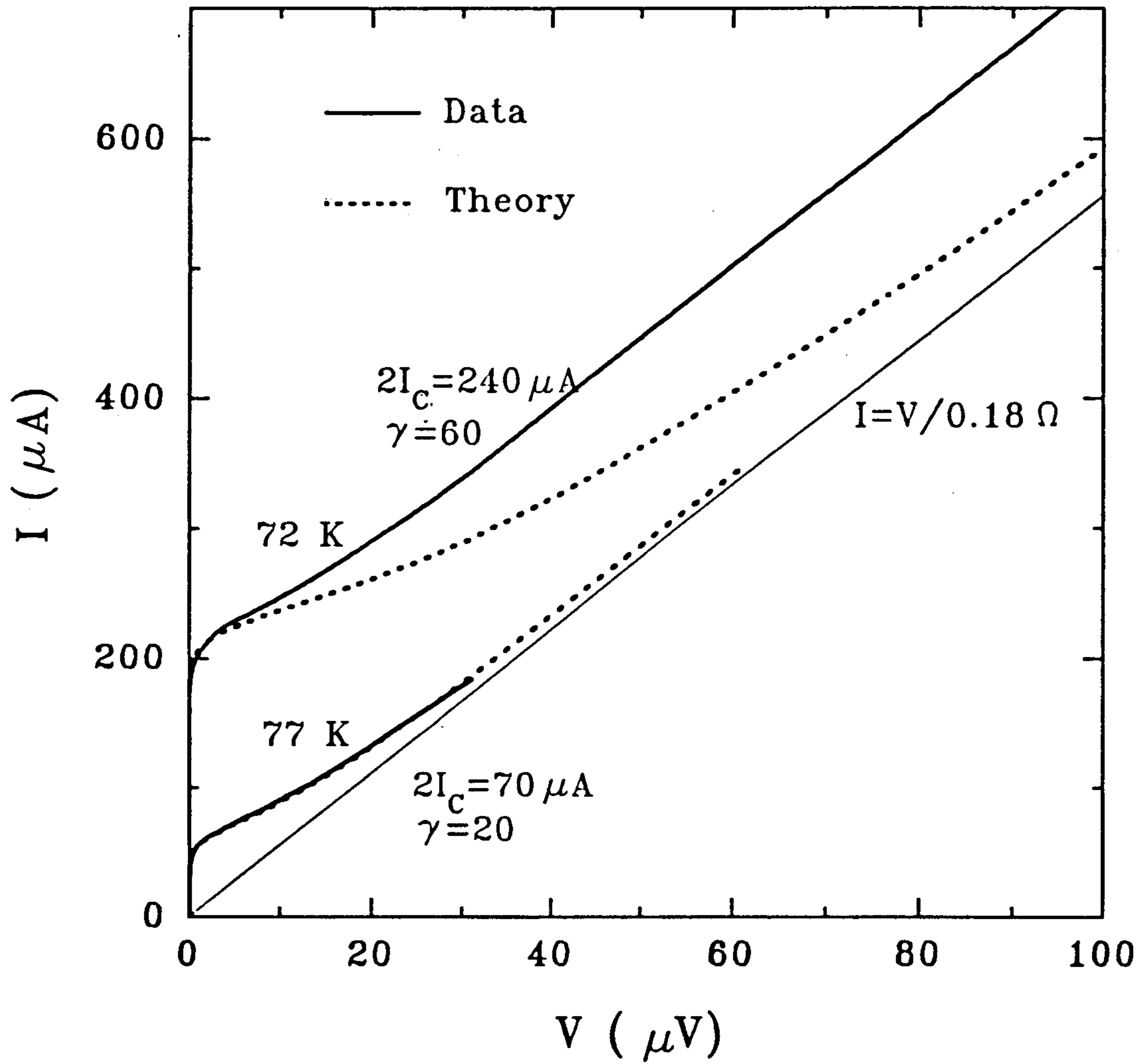


Fig. 4.1.13. Comparison of $I - V$ data with the theory based on the RSJ model with thermal fluctuations.

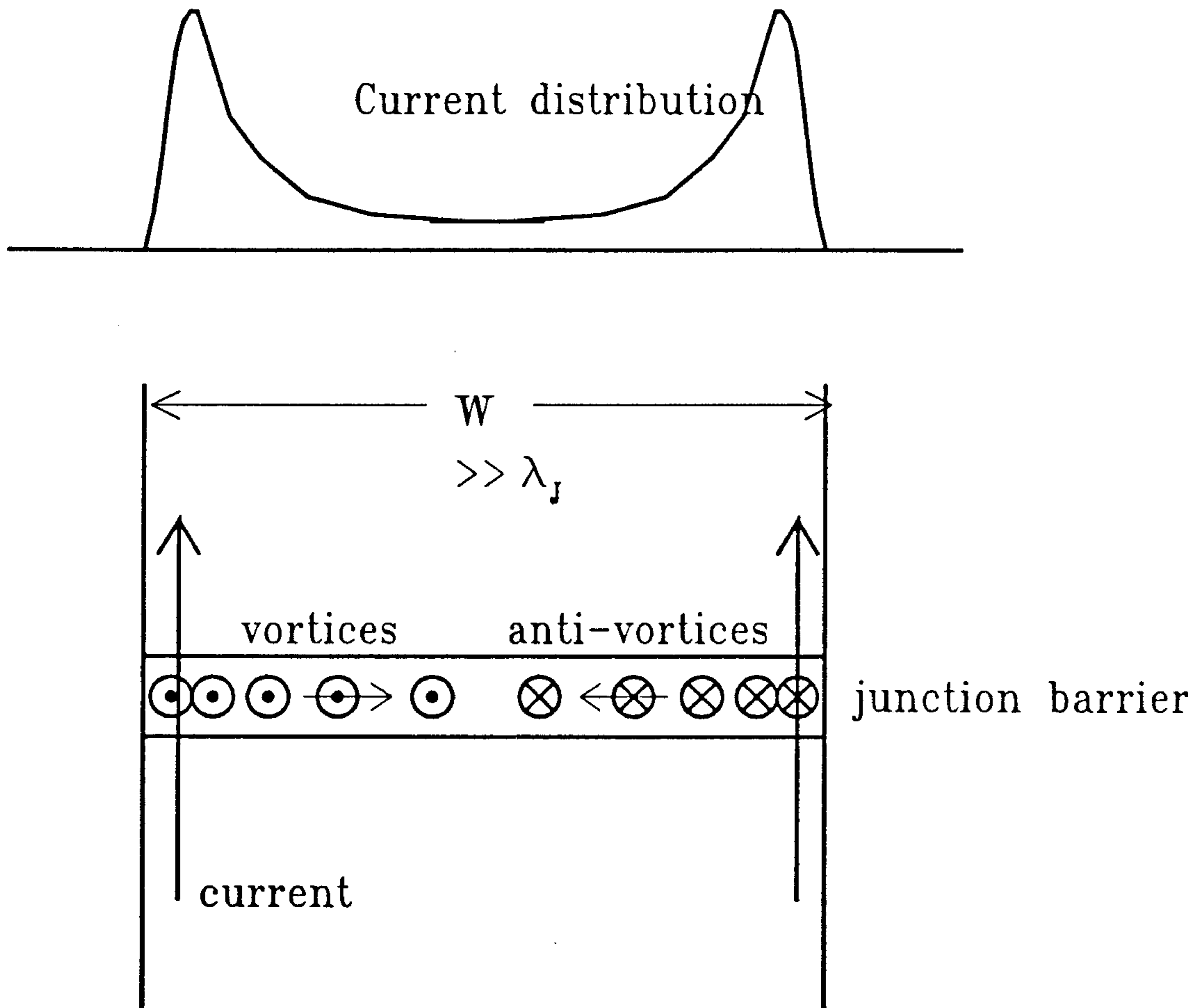


Fig. 4.1.14. Josephson vortices in a long Josephson junction. Note that the junction current is peaked near edges where vortices are generated.

양 끝에서 생긴 극이 반대인 vortex-antivortex가 결합하여 접합 중심에서 사라진다. 이때 vortex 분포는 양 끝쪽에 가까운 부분에서는 비교적 균일하고 중심부 쪽은 vortex 간 거리가 멀어 순간적으로 초전도성을 유지하게 되고 이 부분을 통하여 supercurrent가 흐를 수 있기 때문에 excess current가 생기게 된다. 실제 그 크기는 vortex 흐름의 복잡한 non-linear 특성을 고려하여야 계산할 수가 있다.^[3]

Fig. 4.1.13에서 72 K에서 임계전류로부터 계산한 $\lambda_1 \cong 3 \mu\text{m}$ 으로 접합의 폭 $w = 10 \mu\text{m}$ 의 두배보다 커서 이러한 excess current로 설명할 수가 있다. 그림에서 excess current는 $I_{\text{ex}} \cong 150 \mu\text{A}$ 로서 임계전류와 비슷한 크기로 아주 크게 나타나고 있으며 온도가 내려갈수록 그 값이 크게 관측되었다.

접합 barrier의 특성을 알아보기 위해서 임계전류를 온도에 따라 측정하여 그려보았다. Fig. 4.1.15에서 $I_c \propto (1 - T/T_c)^{1.9}$, $T_c = 80 \text{ K}$ 로서 barrier 물질로서 절연체인 PBCO를 증착한 박막을 사용하였음에도 SIS 특성 보다는 SNS 특성에 보다 가깝다. YBCO/PBCO/YBCO ramp edge 접합 SQUID에서 이러한 SNS 특성은 Gao 등^[4]의 관측 결과와도 일치한다.

이와 같은 SNS 특성은 다음의 두가지로 설명이 된다. 첫째, barrier인 PBCO 내에 Y이 doping되었을 가능성이 있는데, $\text{Pr}_{1-x}\text{Y}_x\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ 에 대한 여러 사람들의 연구에서 doping에 의한 carrier 증가 현상이 관찰된 바 있다. 또 다른 가능성은 PBCO막 내에 형성된 impurity나 defect에 의한 localized level이 생겨 전자가 이 localized level을 통해서 resonant tunneling을 할 가능성이 있다.

D. Voltage modulation

Ramp edge 접합 SQUID의 외부자기장에 의한 변조신호를 여러 바이어스 전류에 대해 측정한 결과를 Fig. 4.1.16에 나타내었다. 외부자기장은 가는 구리선을 지름 약 5 mm의 고리 모양으로 14회 감아 SQUID에 밀착시켜 발생시켰다. 아래 그림의 $T=77.6$ K에서는 바이어스 전류가 증가함에 따라 진폭은 다소 불규칙하나 주기적인 변조신호의 진폭이 증가하여 임계전류인 $50 \mu\text{A}$ 부근에서 최고에 이르렀다가 다시 감소하는 전형적인 SQUID 변조특성을 보이고 있다. 온도가 감소함에 따라 윗쪽 그림과 같이 진폭의 크기도 균일하게 나타났다.

Fig. 4.1.16의 SQUID는 hole size가 $25 \mu\text{m} \times 27 \mu\text{m}$ 이었다. Flux focussing 효과를 나타내는 focussing parameter, 즉 변조주기로부터 계산된 SQUID의 effective hole area의 기하학적인 면적에 대한 비가 약 1.5로 나타났다. 77 K에서는 자기장의 증가시와 감소시의 hysteresis가 약 10 %로 비교적 크게 나타났는데, 이는 SQUID washer 또는 주위의 박막에서 flux가 trap되어 나타나는 현상으로 보인다. 59 K에서는 hysteresis가 감소하여 약 1 % 이하로 나타났다. SQUID 변조신호는 80 K까지 관측되었다. Ramp edge 접합 SQUID의 parameter가 Table 4.1.1에 정리되어 있다.

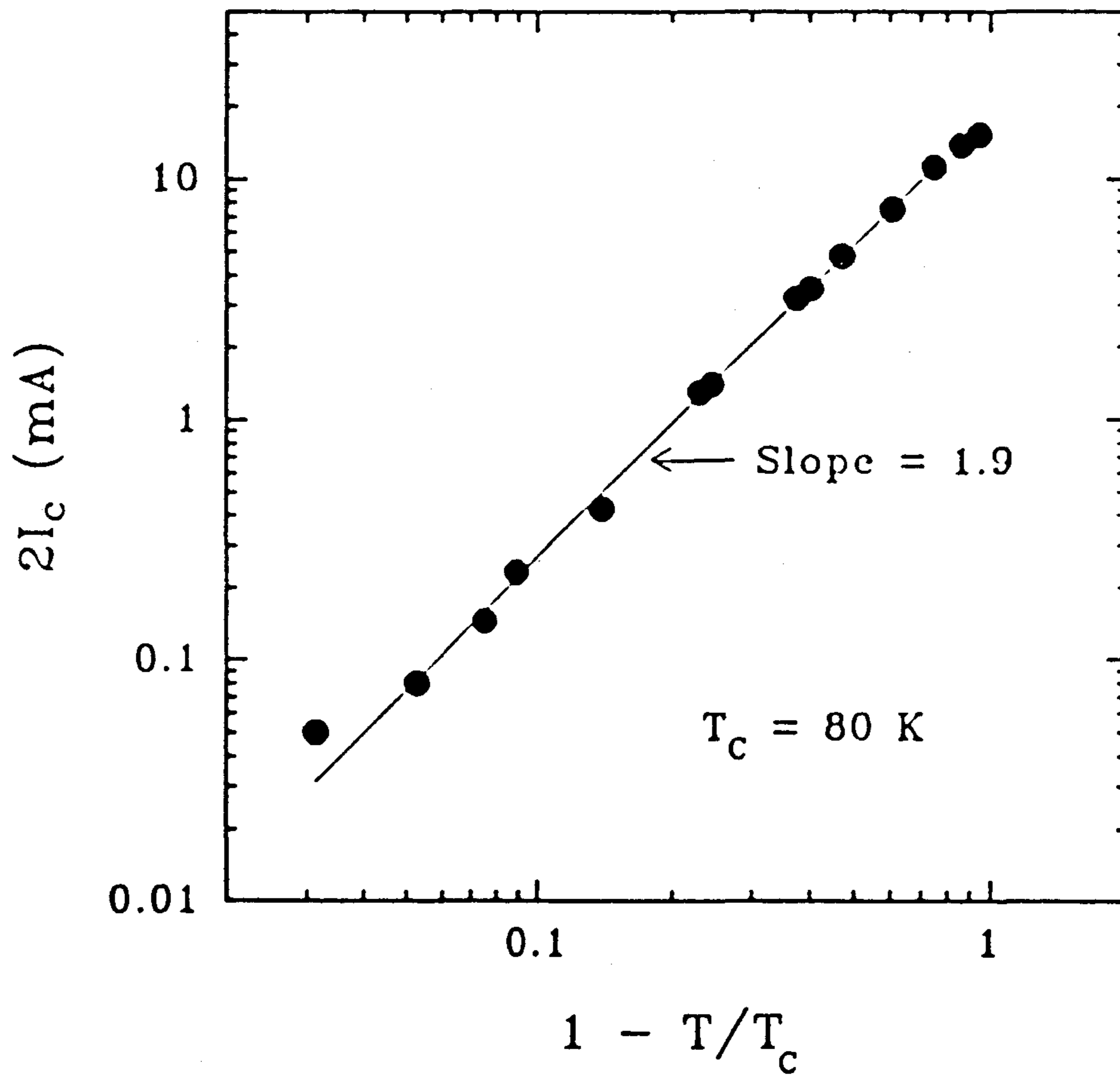


Fig. 4.1.15. Junction critical current versus $1 - T/T_c$ on log scale.
 $I_c \propto (1 - T/T_c)^{1.9}$.

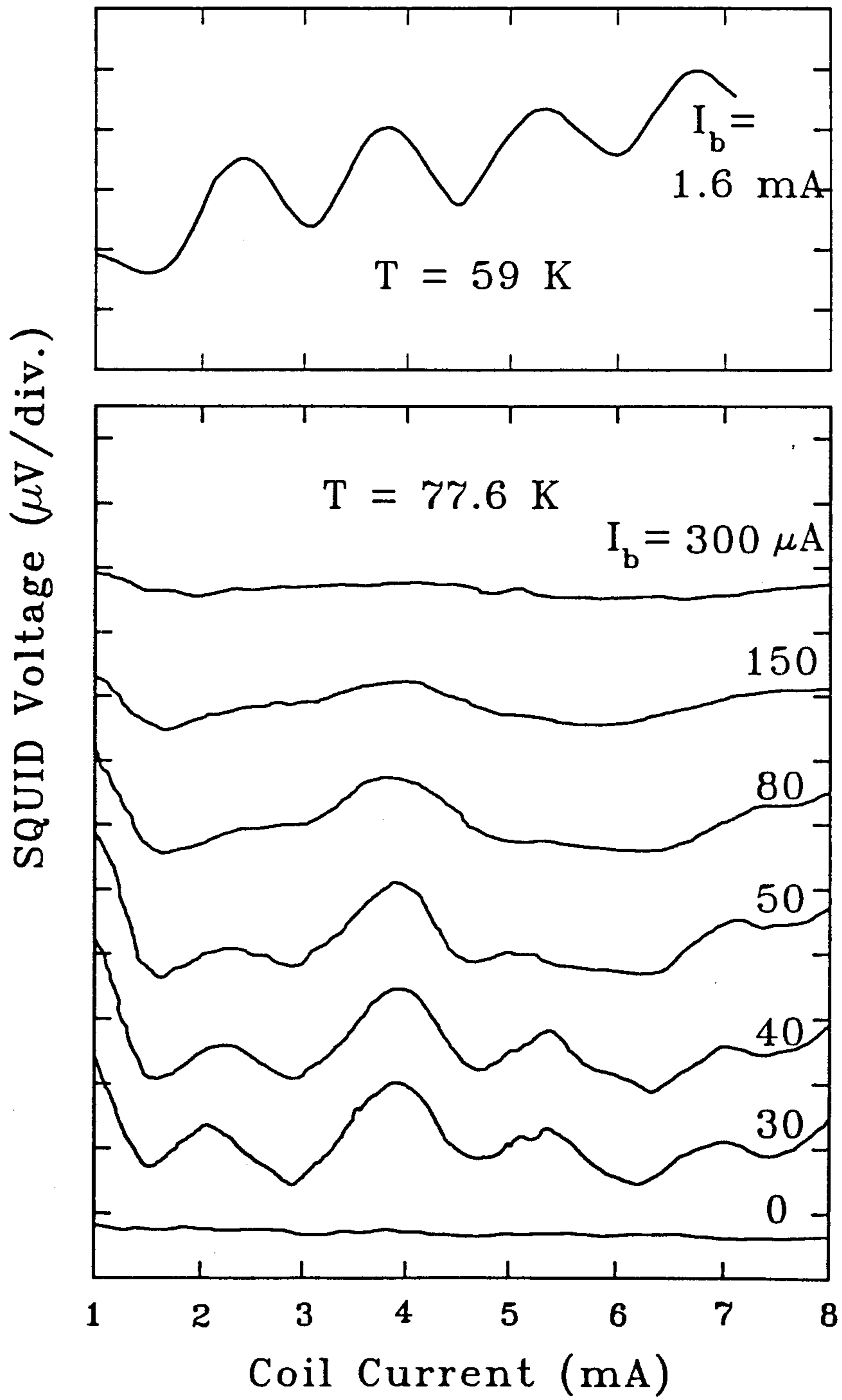


Fig. 4.1.16. $V-\phi$ characteristics of a ramp edge junction dc SQUID.

Table 4.1.1. Parameters of ramp edge junction dc SQUID.

Geometry	
Hole size	$25 \mu\text{m} \times 27 \mu\text{m}$
Barrier thickness	50 \AA
Junction width	$10 \mu\text{m}$
YBCO thickness	$1,300 \text{ \AA}$
At 77 K	
Inductance	$L \cong 40 \text{ pH}$
Normal state resistance	$R_n \cong 0.18 \Omega$
Capacitance	$C < 0.3 \text{ pF}$
Critical current at 37 K	$2I_c = 70 \mu\text{A}$
Screening parameter	$\beta = 1.4$
Hysteresis parameter	$\beta_c < 0.01$
Focussing parameter	$A_{\text{eff}}/A = 1.5$
Thermal noise parameter	$r \equiv \hbar I_c / k_B T = 22$

제 2 절 Flux transformer 제작

SQUID 자체는 인덕턴스가 작아서 sensitivity가 높지 않기 때문에 일반적으로 인덕턴스가 큰 별도의 loop로 자기장을 측정하여 이를 SQUID와 inductively coupling하여 sensitivity를 높인다. 이때 자기장을 감지하는 coil을 pick-up coil이라 하고, 이와 직렬로 연결된 SQUID에 입력하는 coil을 input coil이라 하며, 이 둘을 합친 폐쇄 coil이 flux transformer이다.

Pick-up coil은 외부자기장에 대한 감도를 높이기 위해 인덕턴스가 큰 loop를 사용하며 대개 1 turn이며, input coil의 임피던스 또는 인덕턴스가 pick-up coil과 같을 때에 가장 효율적으로 flux가 input coil로 전달된다. 그런데, SQUID의 크기가 pick-up coil에 비해 훨씬 작기 때문에 input coil은 multi-turn coil 형태로 되어야 하며, 따라서 multi-turn coil의 맨 안쪽선을 바깥으로 연결하기 위해서는 다층막기술이 필연적으로 수반된다.

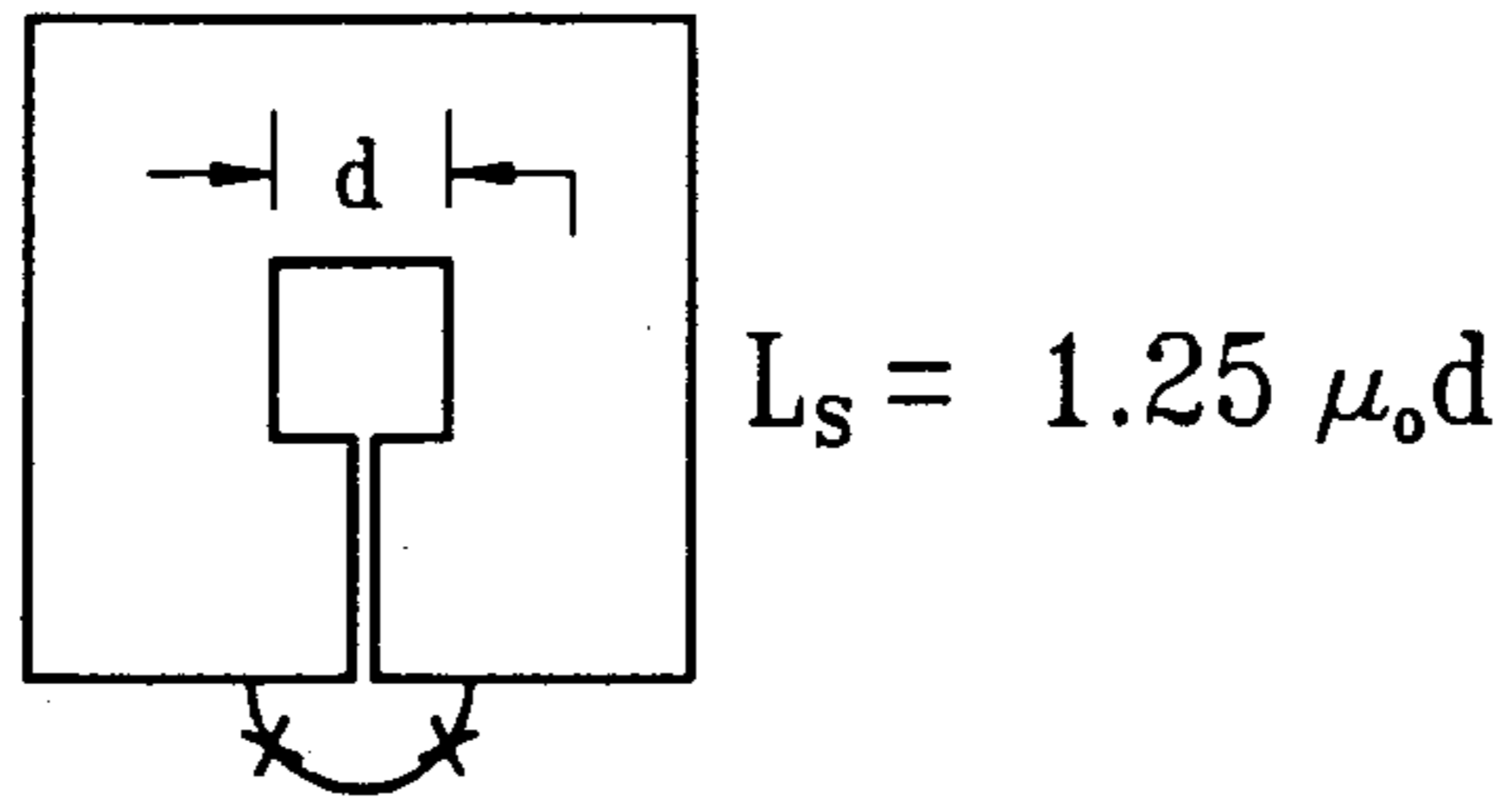
Washer 타입 SQUID의 inductance는 Fig. 4.2.1과 같이 washer 크기가 hole의 크기보다 훨씬 클 경우 hole의 한 변 d 에 비례하여^[5],

$$L_s \cong 1.25 \mu_0 d \quad (14)$$

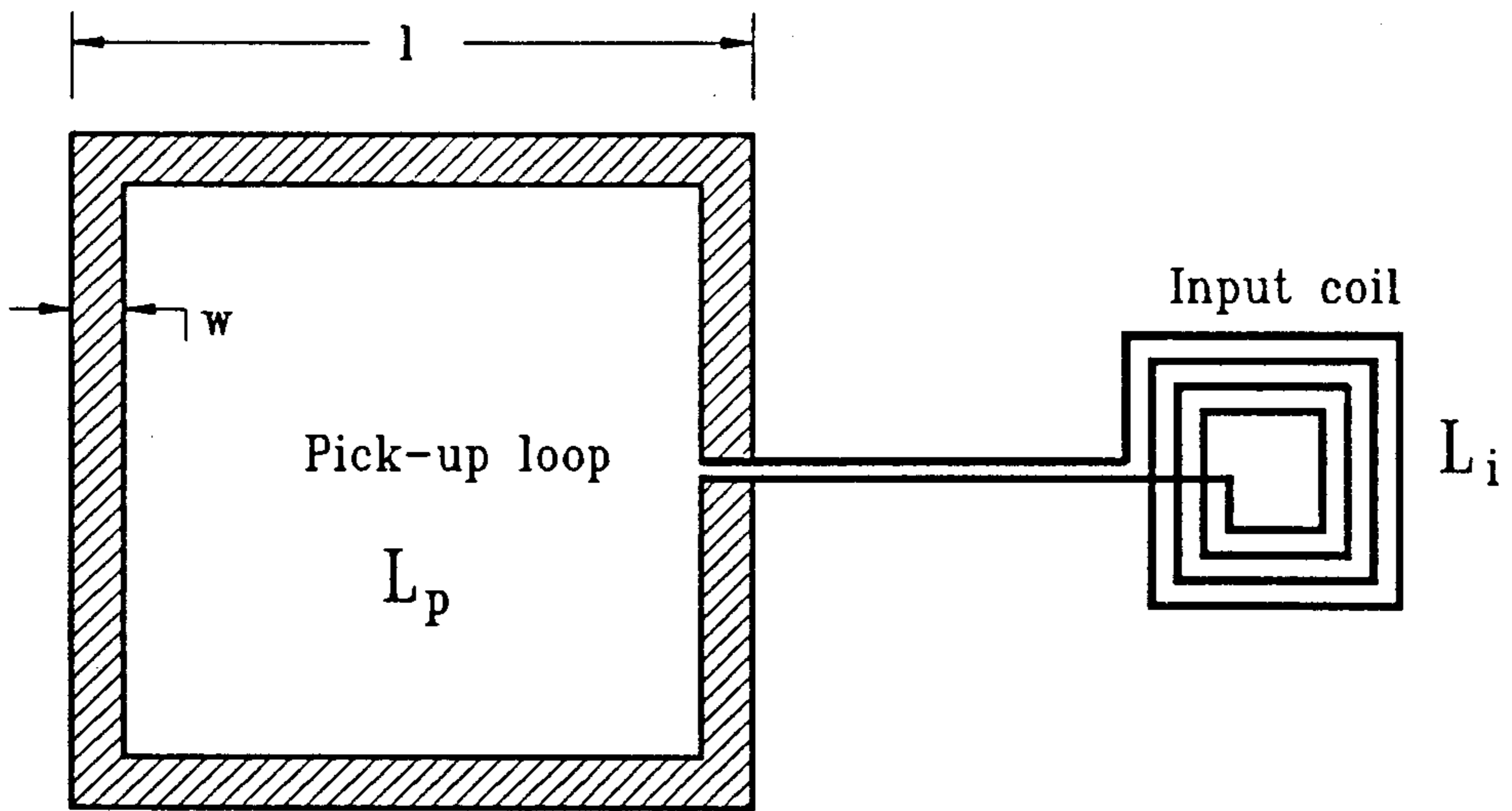
이다. 그림과 같이 선폭이 loop size에 비해 작은 pick-up coil의 경우에는 인덕턴스가 다음과 같다.^[6]

$$L_p = \frac{2}{\pi} \mu_0 l \left[\ln \left(\frac{l}{\omega} \right) + \frac{1}{2} \right] \quad (15)$$

SQUID washer 위에 결합되는 input coil에 pick-up coil에서 자기장에 의해 유도된 전류가 흐르면 각 회선 바로 아래부분의 SQUID washer에 screening



(Washer type SQUID)



(Flux transformer)

Fig. 4.2.1. Design consideration of flux transformer.

current가 흐르게 되는데, Meissner 효과에 의해 washer의 제일 안 쪽에 집결되어 hole의 경계부분을 따라 흐르게 된다. 이러한 SQUID washer의 focussing effect 때문에 input coil의 inductance는 SQUID inductance에 의해 결정되며 그 크기는 coupling coefficient가 1일 경우^[5],

$$L_i = n^2 L_s \quad (n : \text{turn 수}) \quad (16)$$

이다. Input coil과의 coupling에 의한 SQUID의 sensitivity 증가는 input coil의 turn 수 n 에 비례한다. 즉,

$$\frac{M}{L_s} = \frac{\sqrt{L_i L_s}}{L_s} = \sqrt{\frac{L_i}{L_s}} = n \quad (17)$$

이다. 식(17)에서 M 은 SQUID와 input coil의 mutual inductance를 나타낸다.

본 연구에서 설계한 SQUID washer hole의 $40 \mu\text{m}$ 이므로 식(14)에 의하여 inductance L_s 는 60 pH 이며, input coil을 10 turn으로 할 경우 input coil의 inductance는 6 nH 이다. 따라서 pick-coil의 inductance를 input coil과 같은 6 nH 로 설계하였다. Magnetometer 및 1st order gradiometer의 flux transformer 설계도가 Fig. 4.2.2에서 Fig. 4.2.4까지에 나와 있다. Fig. 4.2.2의 magnetometer의 pick-up coil 사이즈는 $3 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$, 폭이 0.4 mm 이다. Fig. 4.2.3의 single SQUID gradiometer의 경우 pick-up coil이 직렬로 연결되어 있으므로 각 pick-up coil의 inductance는 3 nH 로 설계하였으며, Fig. 4.2.4의 '8'자형 double SQUID gradiometer에서는 SQUID, input coil, pick-up coil 모두 병렬로 연결되어 있어 인덕턴스가 앞 그림의 2배에 해당한다.

Flux transformer의 제작과정이 Fig. 4.2.5에 나타나 있다. SrTiO_3 기판위

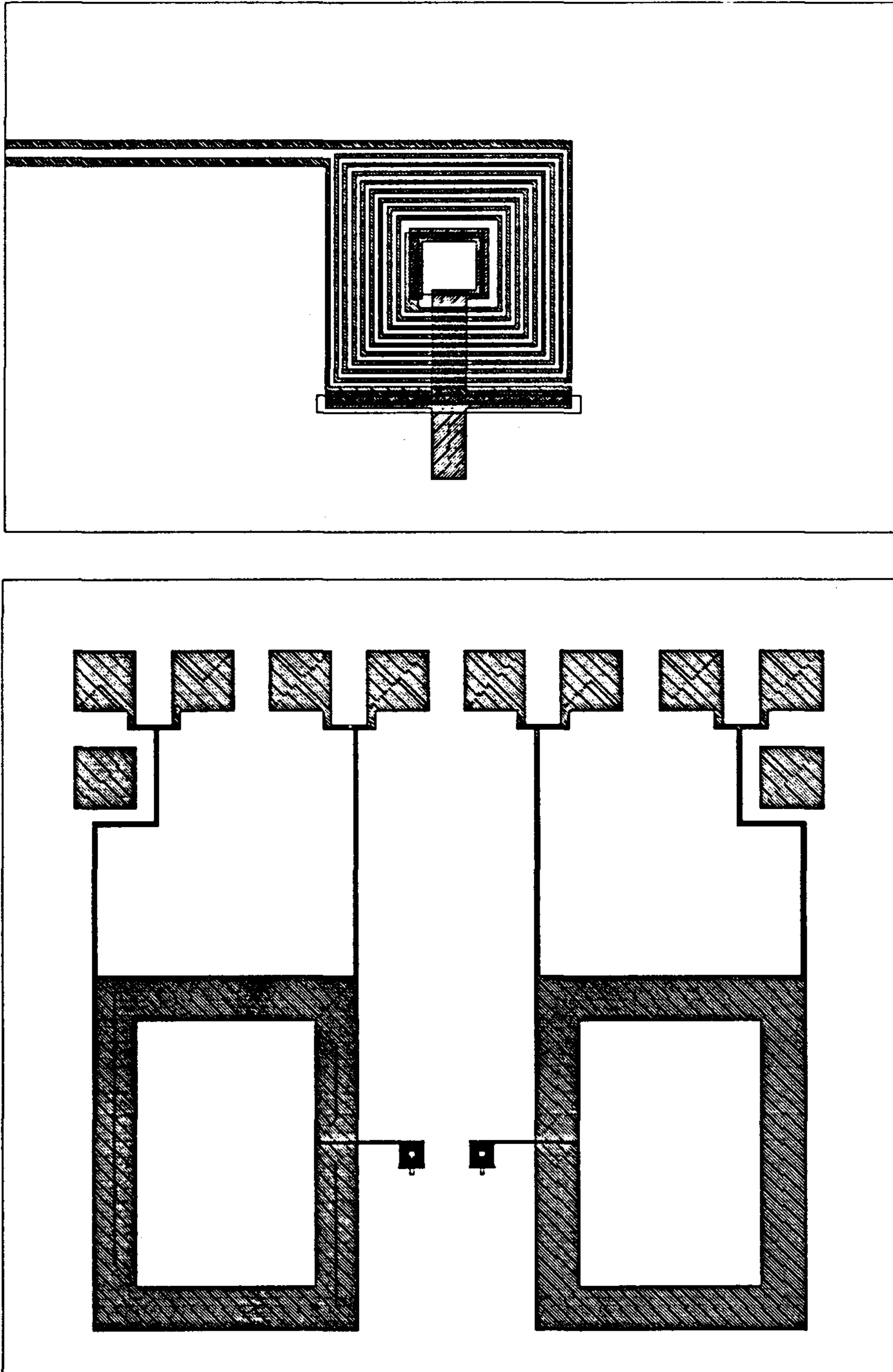


Fig. 4.2.2. Design of flux transformer for SQUID magnetometer. In the top figure, the coil line width is $5\ \mu\text{m}$.

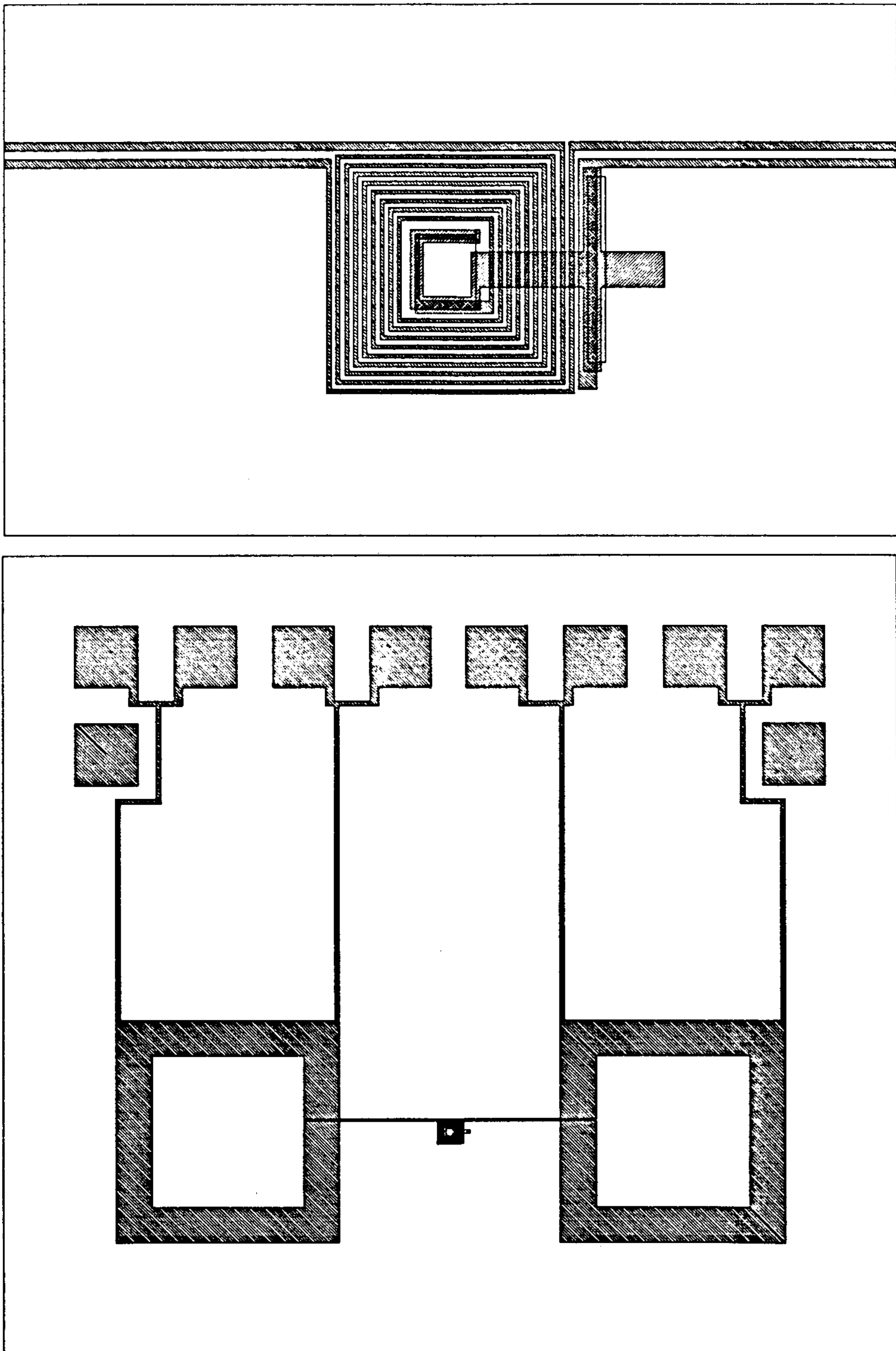


Fig. 4.2.3. Design of flux transformer for a single SQUID gradiometer. Input coil line width is $5\ \mu\text{m}$.

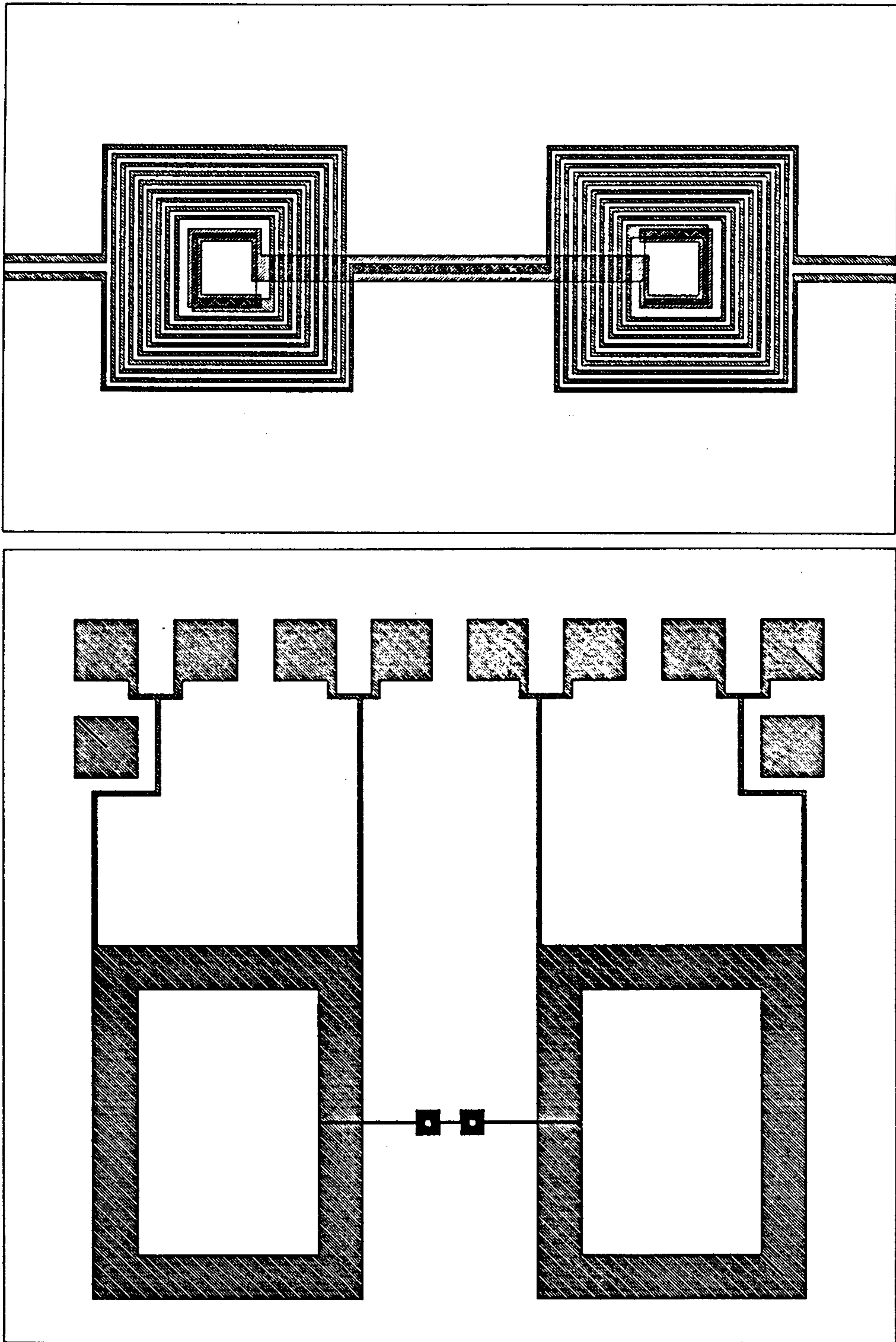


Fig. 4.2.4. Design of flux transformer for a double, SQUID gradiometer. Input coil line width is $5 \mu\text{m}$.

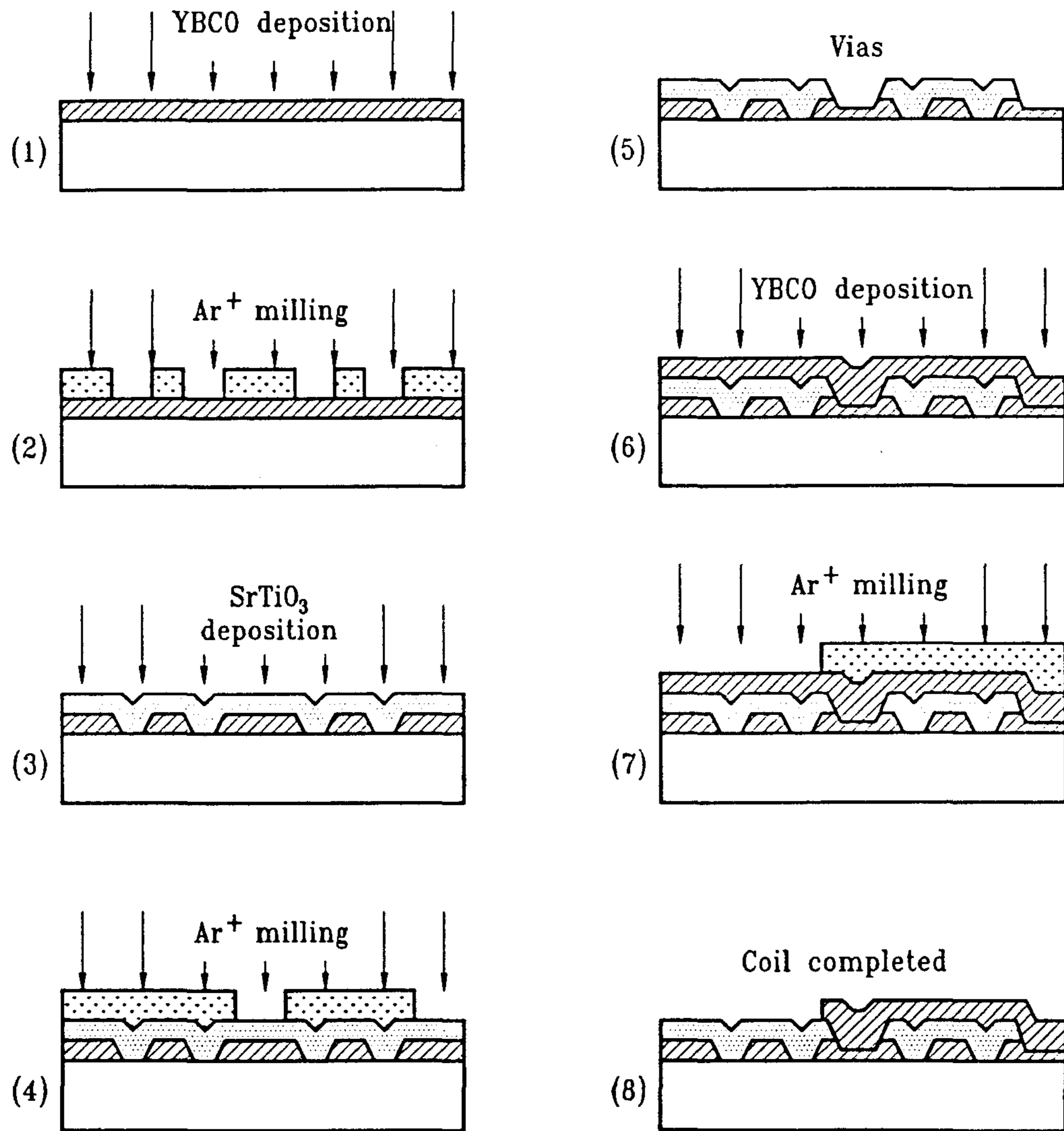


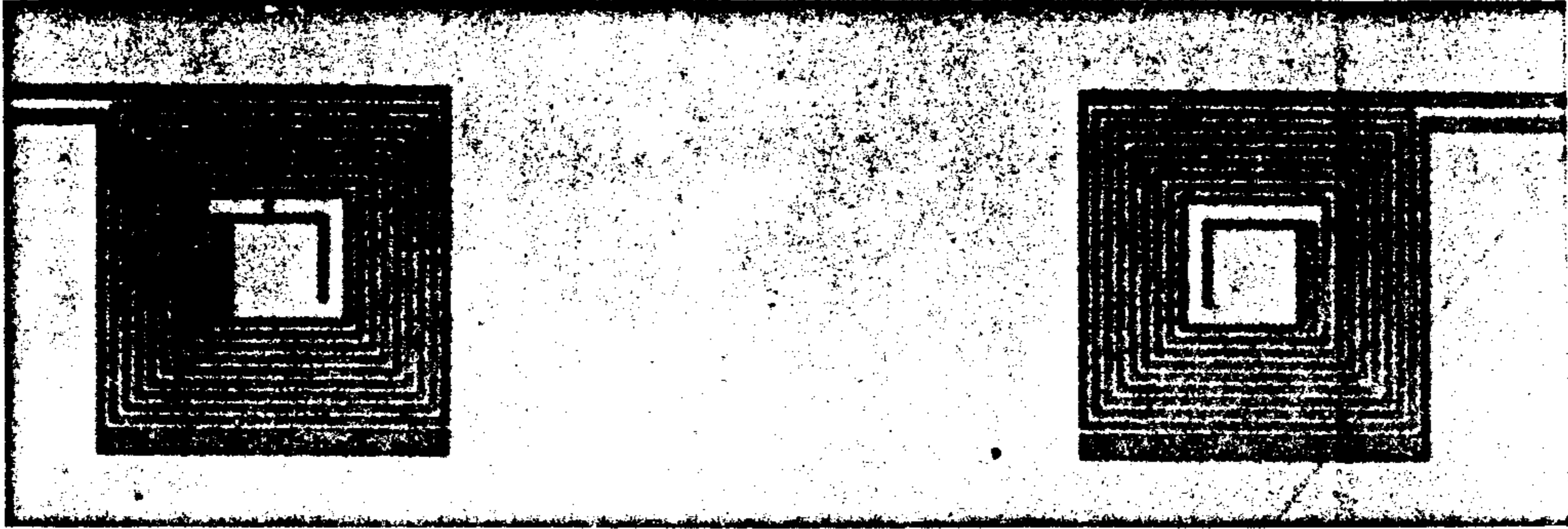
Fig. 4.2.5. Fabrication procedures of flux transformer.

에 YBCO film을 증착시키고 base coil을 패터닝한다. 절연막으로서 SrTiO₃ 박막을 증착시킨 다음, contact window를 만든다. 최종적으로 YBCO 박막을 증착시키고 coil의 중심부와 return line을 연결하는 connecting overbridge를 패터닝하여 완성한다. 각 박막의 두께는 약 2,000 Å이다. 박막증착은 레이저증착법을 사용하였고 박막 패터닝은 포토리소그래피를 이용한 포토리지스트 패터닝을 만들고 Ar 이온 식각법으로 하였다. Coil 제작 과정에서 가장 중요한 부분은 contact window를 통한 base YBCO 박막과 top YBCO 박막의 초전도 연결부분으로서 window 제작시 YBCO 박막도 반 이상 식각하여 ab 평면으로의 연결이 되도록 하는 작업이다.

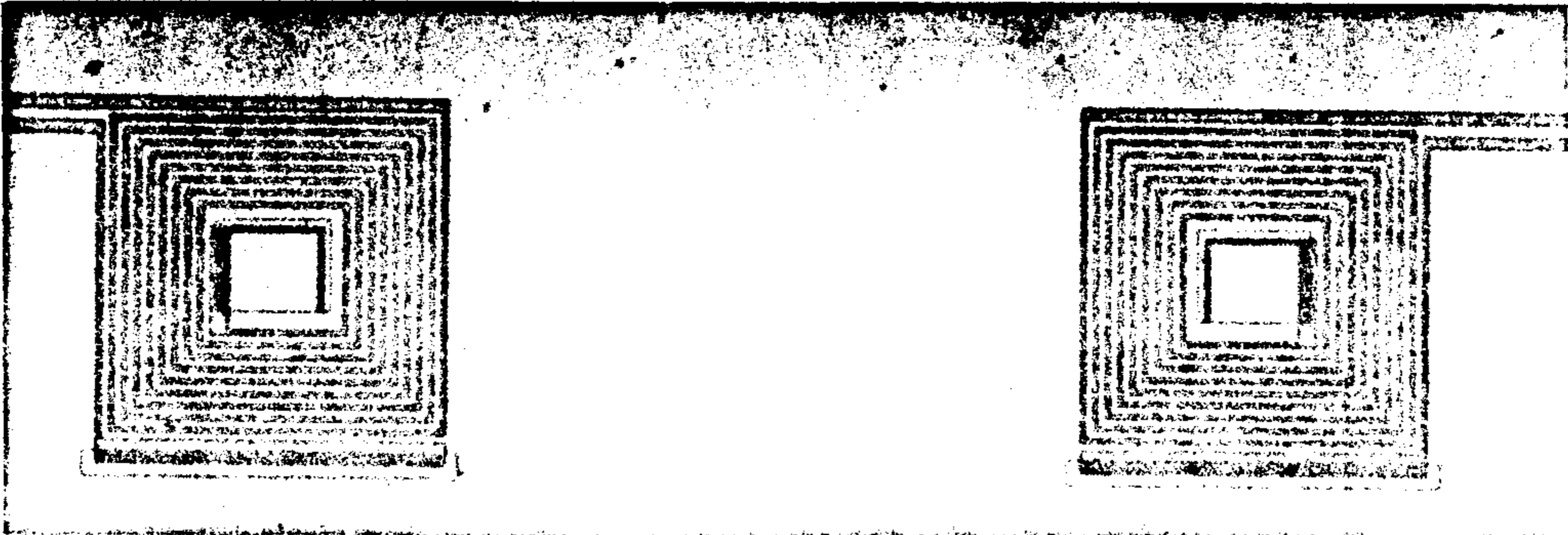
완성된 flux transformer 중 input coil 부분의 각 제작단계별 광학현미경 사진이 Fig. 4.2.6에 나와 있다. Input coil은 5 μm 선폭의 10 turn으로 제작되었다. 그림에서와 같이 레이저 박막증착에 종종 수분되는 미립자의 밀도 및 분포는 coil 제작에 거의 문제가 되지 않음을 알 수 있다. 제작된 input coil의 임계특성을 조사한 결과 아직 임계온도가 액체질소온도보다 낮게 관측되었는데, 이는 contact window를 통한 초전도 연결이 완전하지 못하기 때문이다.

Fig. 4.2.7에서는 input coil과 비슷한 길이를 가진 5 μm 선폭의 긴 meandering YBCO line인데 input coil의 base coil과 함께 제작하였다. 이 line의 임계특성이 Fig. 4.2.8에 나와 있다. 그림에서 긴 YBCO 미세선이 넓은 선폭의 짧은 strip line과 같은 저항-온도 기울기 및 임계온도 특성을 가지고 있다. 이 점을 바탕으로 볼 때에 앞서 지적한 바대로 contact window를 통한 connection이 아직 불완전하다. 현재 이를 위한 공정개선을 진행하고 있다.

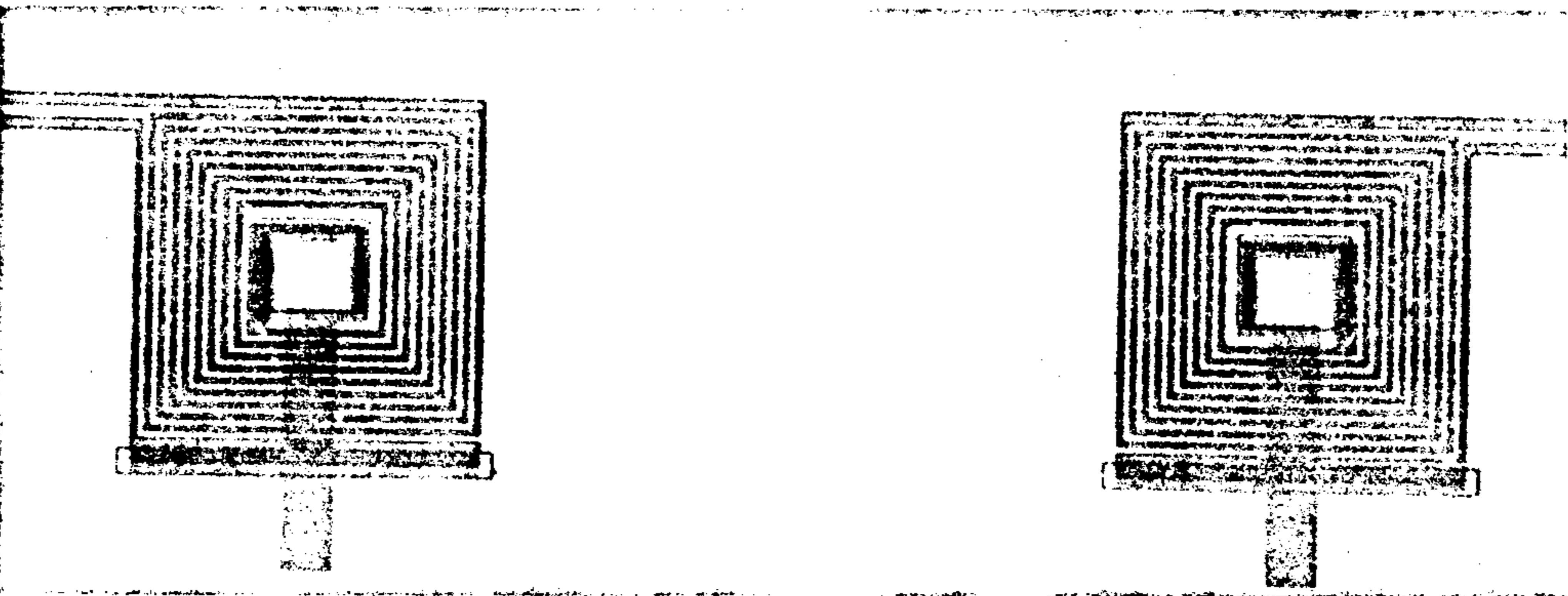
□ Input coil



(a) Base YBCO coil. 선폭 $5\ \mu\text{m}$, 10 turn.



(b) SrTiO_3 insulator 증착 후 photolithography + Ar^+ milling 에 의한 via (contact window) 제작.



(c) YBCO 증착 후 patterning 하여 connecting over bridge 형성.

Fig. 4.2.6. Photographs of input coils. Coil line width is $5\ \mu\text{m}$.

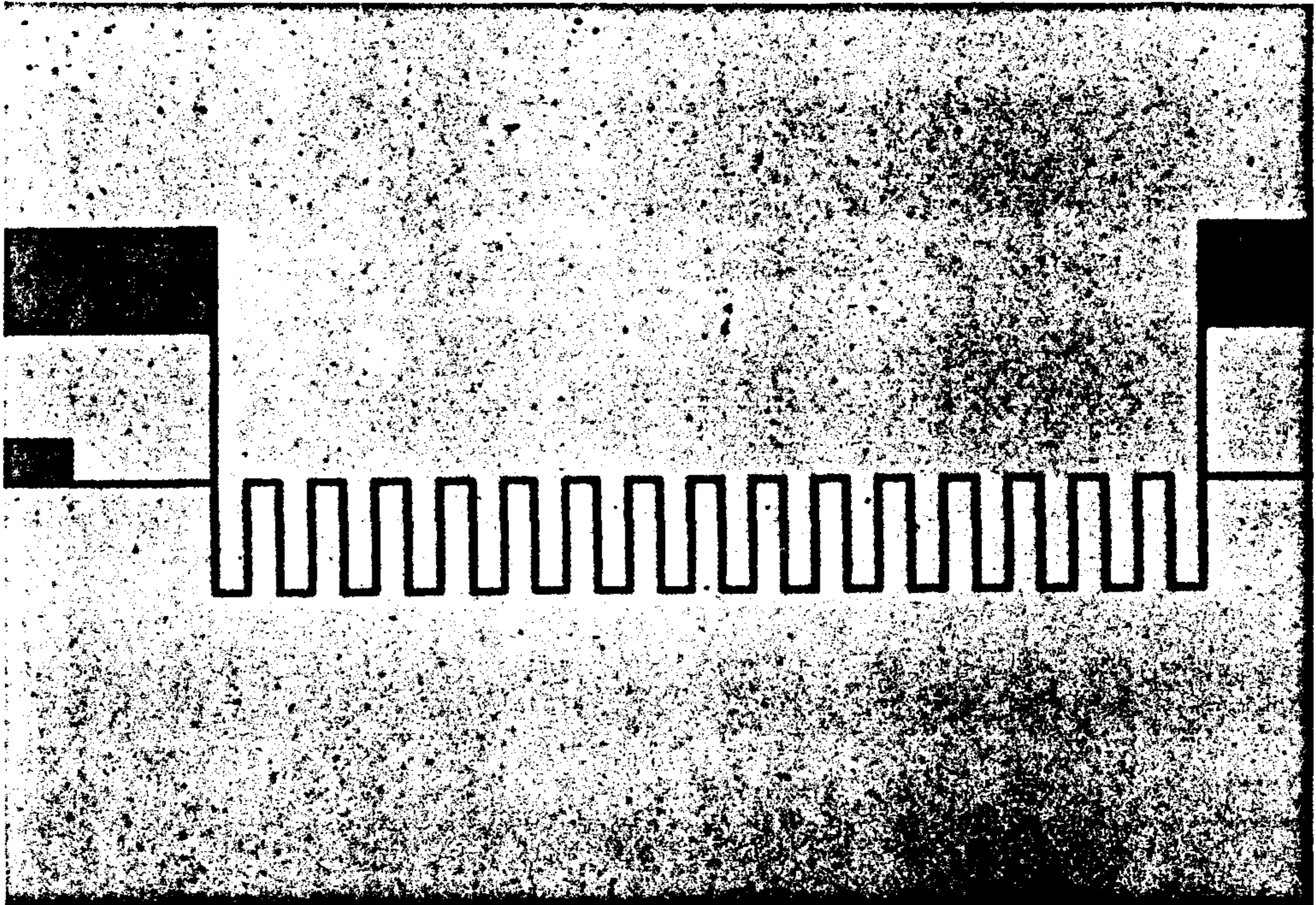


Fig. 4.2.7. Photograph of a long YBCO meandering line made with the base coil. Line width is 5 μm .

136S2
Meander
Jun-30-93

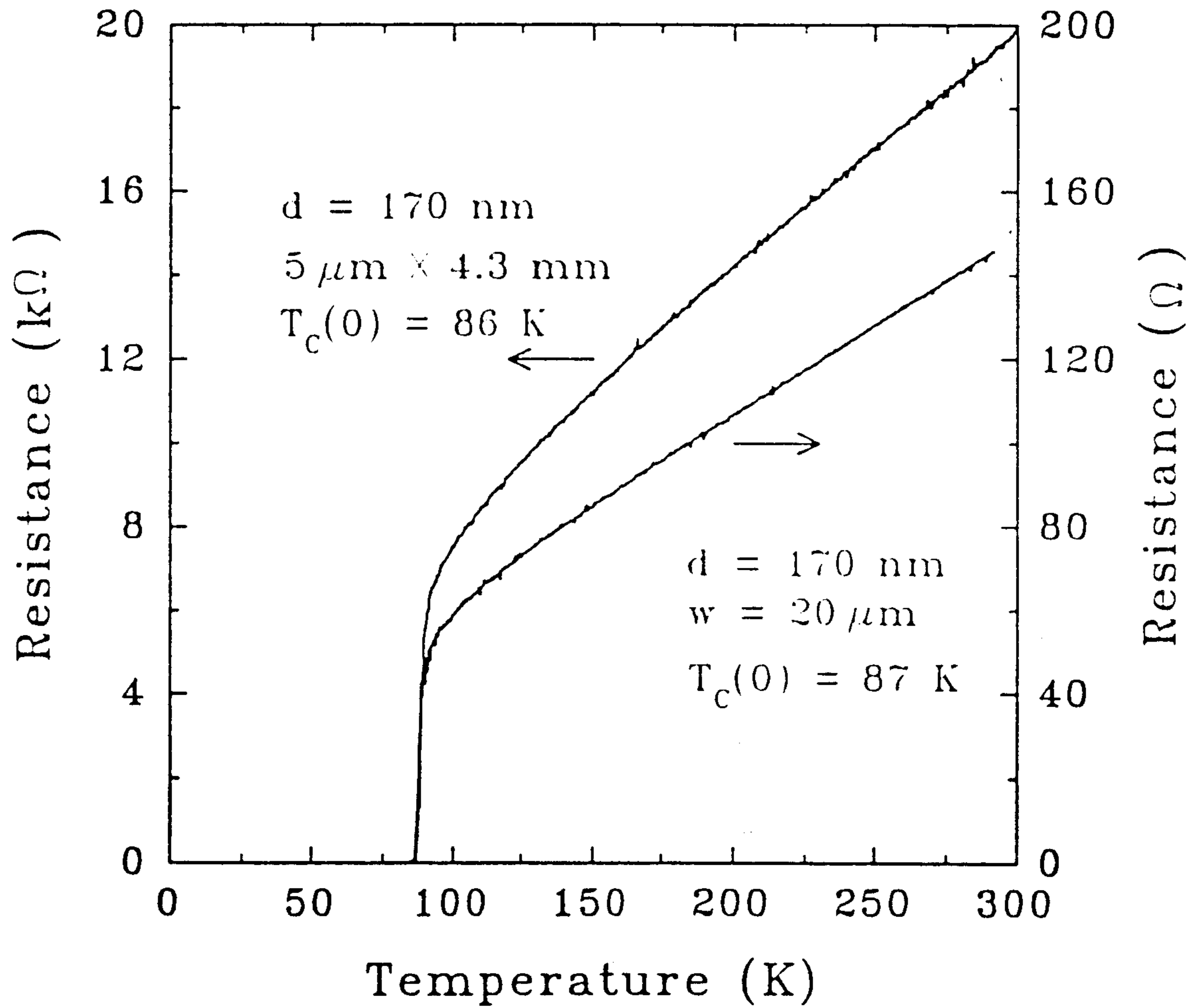


Fig. 4.2.8. Resistive transition properties of a long line with $5 \mu\text{m}$ line width and a short wide pattern.

제 3 절 결 론

YBCO 다층막구조를 이용한 ramp edge 접합 dc SQUID 및 이와 결합하여 사용할 flux transformer를 제작하여 그 특성을 조사하였다. SQUID와 input coil은 별도의 기판에 제작한 다음 접촉결합하여 사용하는 flip-chip coupling 형태로 설계하였다. 다층막구조 제작은 레이저 증착법을 사용하고 미세형상화작업은 포토리소그라피와 아르곤이온 밀링을 사용하여 완성하였다.

임계온도 부근에서의 접합의 전류-전압 곡선은 전형적인 RSJ 특성을 보였으며, 임계전류 부근에서의 rounding 현상은 thermal fluctuation에 의한 효과와 정량적으로 잘 일치하였다. 낮은 온도에서는 높은 전압에서 RSJ 모델에서 벗어나 excess current를 보이고 있는데 이는 Josephson penetration depth에 비해 접합의 폭이 2배 이상 클 때 나타나는 Josephson vortex의 비선형유동에 기인한 것으로 보인다.

임계전류의 온도의존특성은 $I_c \propto (1 - T/T_c)^{1.9}$ 으로서 SNS 특성을 보이고 있는데, barrier 물질인 PBCO에 Y doping으로 인한 carrier의 증가 또는 impurity level을 통한 resonant tunneling이 그 원인으로 보인다. 외부자기장의 변화에 대한 주기적인 SQUID 변조신호가 80 K까지 관측되었으며 77 K에서는 약 $1 \mu V$ 의 진폭을 보였다.

$5 \mu m$ 선폭의 10 turn input coil을 포함하고 있는 flux transformer는 레이저증착법에 의한 3층막 제작기술과 이온식각법에 의하여 제작되었으며 절연막으로는 $SrTiO_3$ 를 사용하였다. 제작된 input coil은 via를 통한 초전도연결이 불완전하여 임계온도가 아직 77 K보다 낮아 이를 개선하고 있다.

참 고 문 헌

- [1] see, for example, A. Barone and G. Paterno, *Physics and Applications of the Josephson Effect*(John Wiley & Sons, New York, 1982), pp.161~169.
- [2] V. Ambegaokar and B.I. Halperin, *Phys. Rev. Lett.* 22, 1364(1969).
- [3] J. Clarke, *Phys. Rev.* B4, 2963(1971).
- [4] J. Gao, W.A.M. Aarnink, G.J. Gerritsma, and H. Rogalla, *Physica C* 171, 126(1990).
- [5] J.M. Jaycox and M.B. Ketchen, *IEEE Trans. Mag.* 17, 400(1981).
- [6] M.B. Ketchen, *IEEE Trans. Mag.* 17, 387(1981).

제 5 장 고온초전도 박막의 수동소자에의 응용기술개발

제 1 절 서 론

고온초전도 박막을 이용한 마이크로파 수동소자는 손실이 적고, 수십 GHz 영역까지 dispersion이 작으며, 소자 크기를 줄일 수 있으며 소자 크기가 작아지므로 전달시간을 줄일 수 있다. 이와같은 장점들을 수동소자에 이용하고자 하는 많은 제안과 연구보고가 있었다. 현재 고온초전도를 이용한 마이크로파 소자는 filter, delay line, antenna 등이 주로 연구되고 있으며, 이들에 대한 연구 결과가 미국, 일본 등에서 발표되고 있다.^{[1]~[3]} 그밖에 고온초전도체를 이용할 수 있는 수동소자의 예를 Table 5.1.1에 보였다.

본 장에서는 YBaCuO 고온초전도 박막을 이용한 microstripline resonator 을 개발하기 위하여 다음과 같은 사항의 실험을 진행하였다.

- MOCVD법을 이용하여 넓은 면적에 균일한 박막을 증착한다.
- 박막의 균일성을 조사하기 위하여 증착 시편의 부분별 조성을 분석하고 증착 박막의 두께를 비교한다.
- Computer simulation을 이용하여 MgO 기판과 LaAlO₃ 기판에 알맞는 공진기를 설계 제작한다.
- 광식각법과 습식에칭을 이용하여 마이크로파용 공진기를 제작한다.
- 초전도박막의 미세구조와 마이크로파 특성과의 관계를 조사하여 고주

파 수동소자 제작에 적합한 증착조건을 규명한다.

이와 같은 사항을 고려하여 넓은 면적에 균일한 조성을 갖는 고온초전도 박막을 증착하고 마이크로파용 공진기를 제작하였다. 또한 박막의 미세구조와 수동소자의 동작특성간의 관계를 조사하여 마이크로파용 수동소자 제작에 적합한 증착조건을 규명하였다.

본 연구는 위탁연구를 통하여 한국과학기술원에서 수행하였다.

Table 5.1.1 Passive microwave applications of superconductors

Resonators	Frequency references
	Oscillators
	Cavity resonators
	Helical resonators
	Planar resonators
	Tunable resonators
	Coaxial resonators
Delay line	
Filters	
Antenna	Dipole
	Loop
	Array
Duplexer	
Mixer	
Switches	

제 2 절 박막증착 및 특성조사

Microstripline resonator에 응용하기 위해 박막은 MOCVD(Metal Organic Chemical Vapor Deposition)방법으로 증착하였다. 기판은 MgO와 LaAlO₃ 단결정(20×20×1 mm³)을 사용하여 증착온도 810~880 °C에서 30분간 증착하였으며 이때 MgO 기판위에 증착된 YBaCuO 박막은 84 K의 임계온도를 보였으며 초전도 전이점에서 약간의 tail을 관찰할 수 있었다. LaAlO₃ 기판위에 증착된 YBaCuO 박막은 임계온도 90 K를 보였으며 초전도 전이폭이 1 K 이하로 매우 우수한 초전도박막이 증착되었음을 알 수 있었다.

Fig. 5.2.1과 Fig. 5.2.2는 LaAlO₃ 기판과 MgO 기판위에 a축과 c축으로 성장된 YBaCuO 박막의 X-ray 회절 결과이다. 증착온도가 높을수록 c축 성장이 우세해 졌으며 이와 같은 결과는 sputtering, laser ablation에서 보고된 결과와 잘 일치한다.^{[4]~[6]}

MOCVD법에 의해 증착된 YBaCuO 박막의 균일성을 조사하기 위하여 20×20 mm² 시편의 각 부위별 두께와 조성을 조사하였다. 증착박막의 두께 측정을 위하여 stylus profilometer(α -step)을 이용하였으며, 조성관찰을 위하여는 EDS를 이용하였다.

Fig. 5.2.3은 α -step을 이용하여 증착박막의 두께를 측정한 결과 graph이다. 증착온도가 810 °C인 경우에는 3500~4000 Å의 두께 분포를 관찰할 수 있었으며, 증착온도가 870 °C인 경우에는 2900~3500 Å의 두께분포를 관찰할 수 있었다. 이와같이 증착온도가 높은경우 증착박막의 두께가 감소하는 이유는 source의 증발량이 같을때 증착온도가 높을수록 furnace wall에서 반응하는 source gas의 양이 많아져 증착구간에서 source gas의 농도

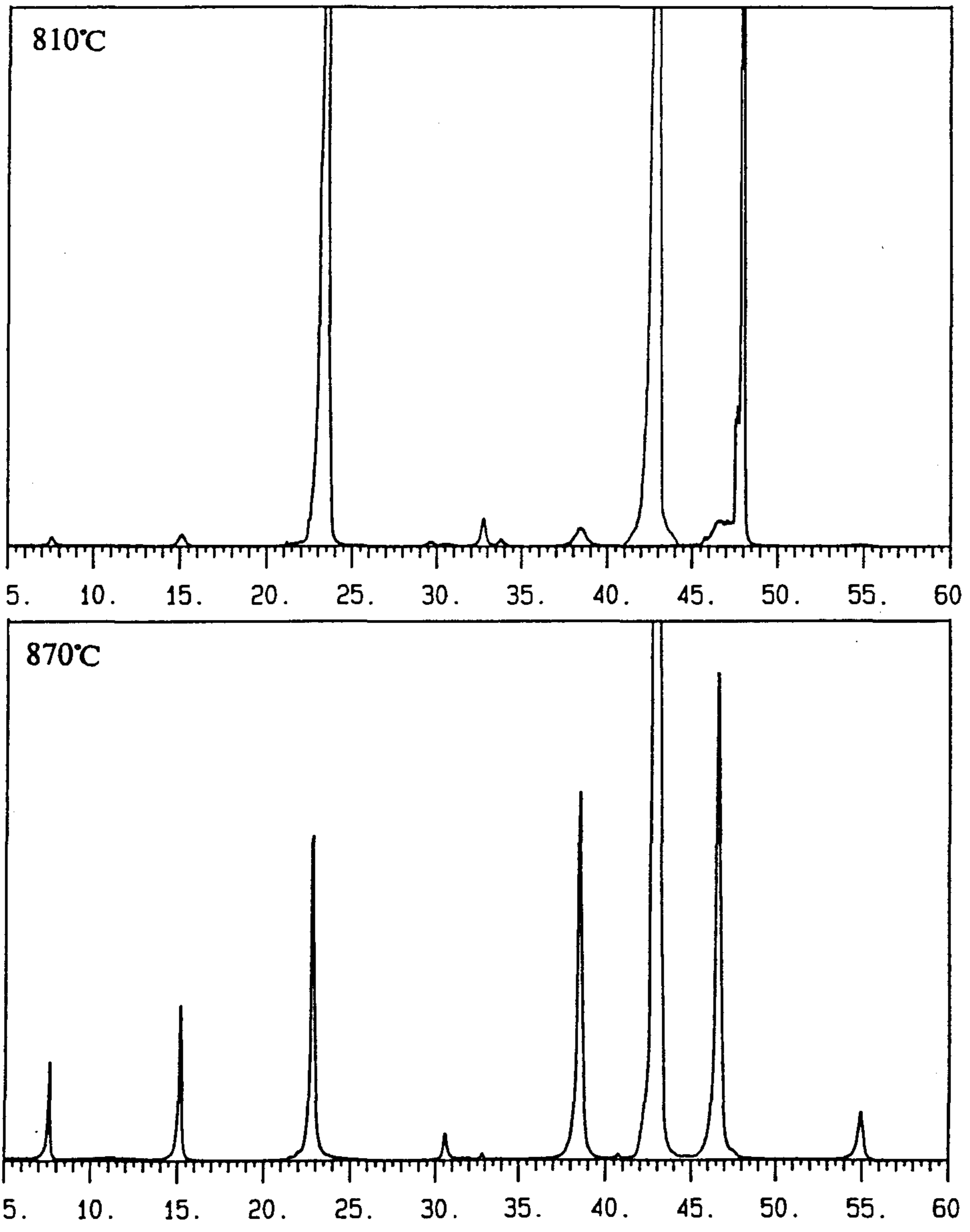


Fig. 5.2.1. X-ray diffraction pattern of YBaCuO film deposited at 810 °C and 870 °C on MgO.

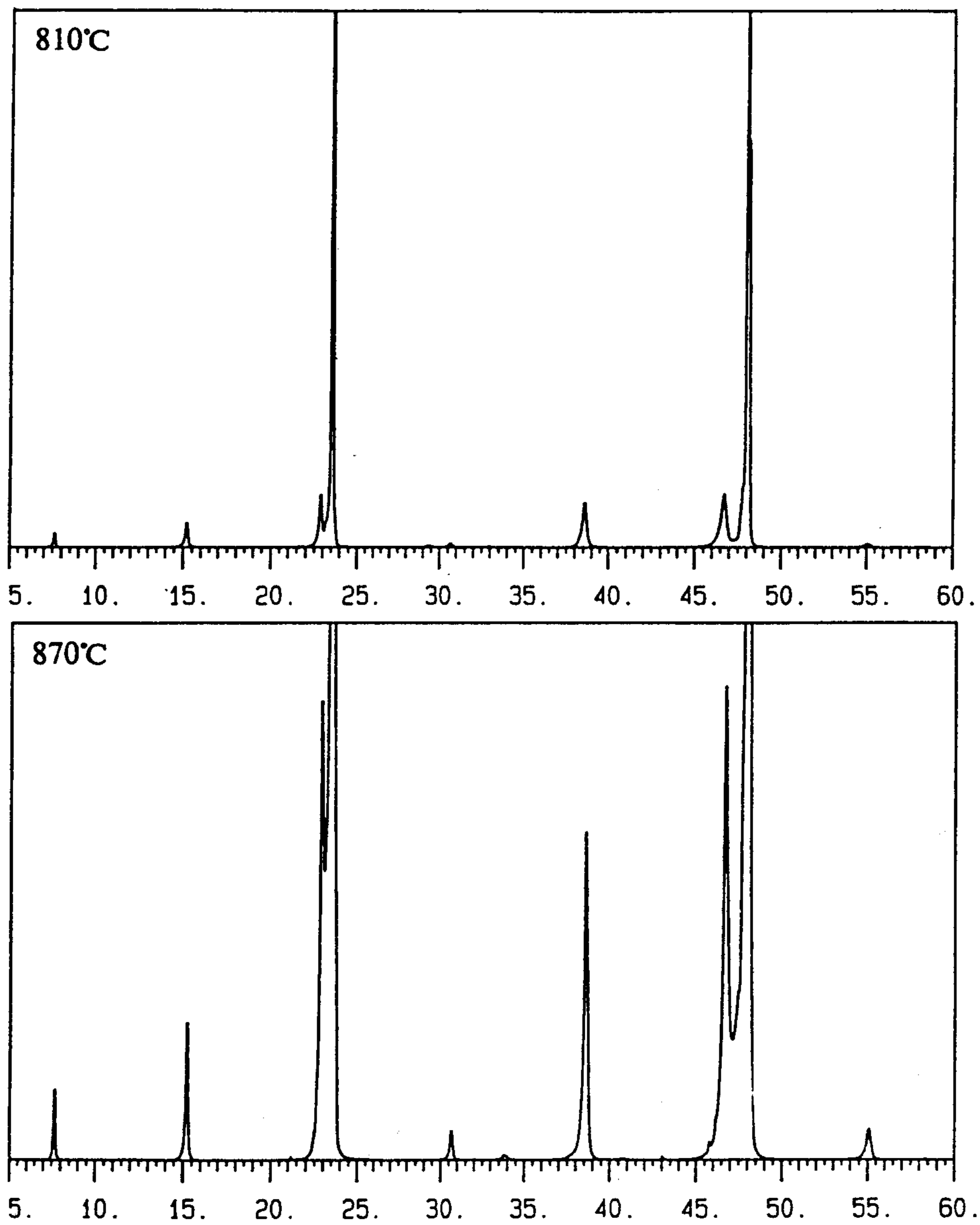


Fig. 5.2.2. X-ray diffraction pattern of YBaCuO film deposited at 810 °C and 870 °C on LaAlO₃.

08/06 14:45
ID#
VERT: 5KA
L -1.005KA
R 2.370KA
3.375KA
Avg 3.215KA
TIR 4.230KA
Ra 510. A
HORIZ 10000um
L 530.0um
R 950.0um
420.0um
Area=66.498
SCAN MENU 1
um s/um
2000 .2 1
400 1 5
30 5 25
SCAN t=40 s
DIR. —>
STYLUS 10mg
420 1570um LEVEL

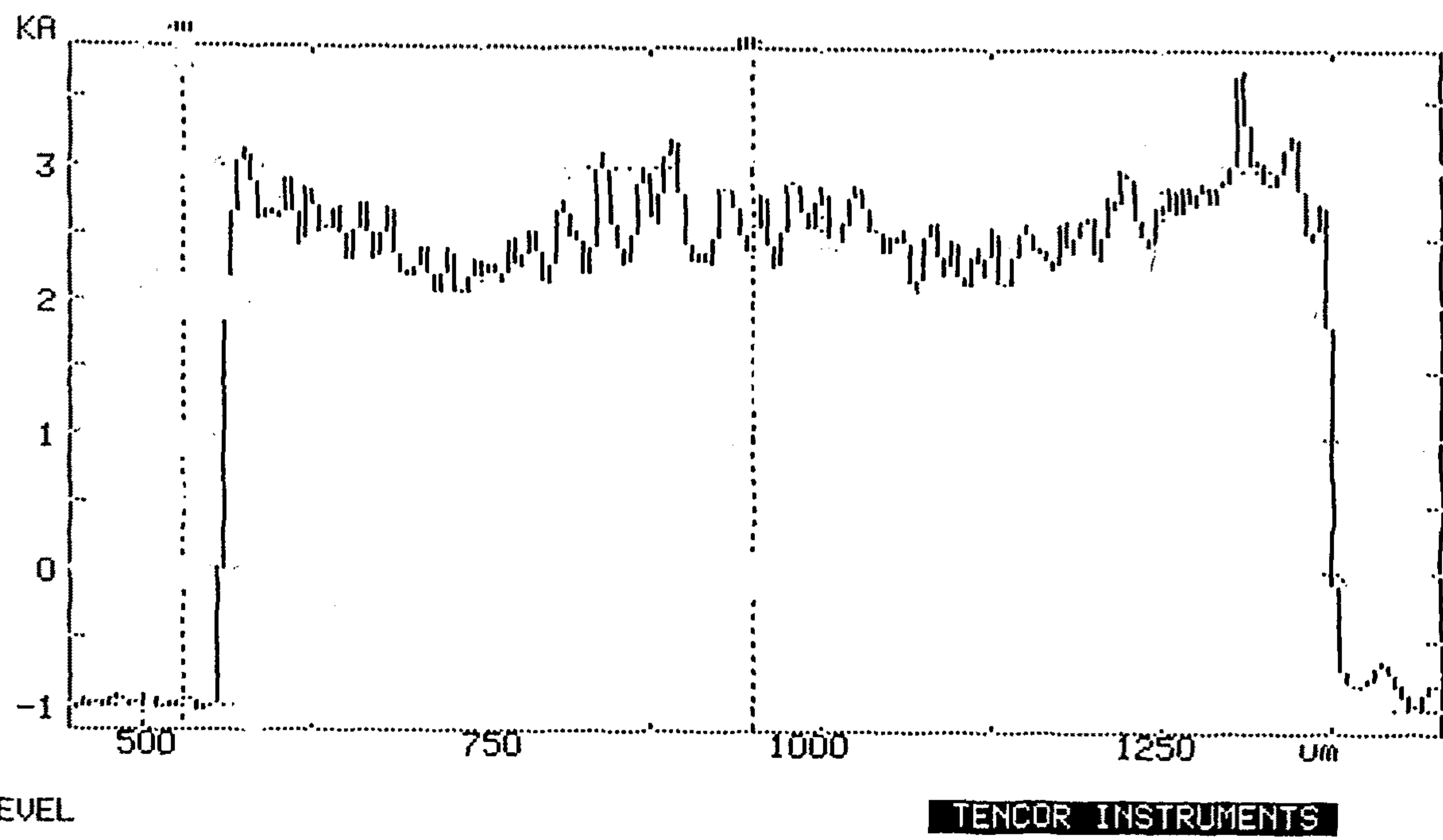


Fig. 5.2.3. Thickness measure plot of YBaCuO film with α -step.

가 낮아졌기 때문으로 생각된다.

증착박막의 조성균일성을 조사하기 위하여 $20 \times 20 \text{ mm}^2$ 넓이의 시편의 중앙부와 중앙에서 10 mm 지점, 20 mm 지점의 조성을 EDS를 이용하여 분석하였다. Table 5.2.1은 이들의 조성분석결과 얻은 Y, Ba, Cu의 atomic percent를 나타내었다. 이들 조성분석결과는 EDS를 이용한 결과이므로 상대적인 경향만을 알수 있지만 시편의 각 부위에서 조성의 변화가 5% 이내이므로 박막의 전체적인 조성이 균일하다 할 수 있다. 박막의 조성은 시편의 가장자리로 갈수록 Cu의 양이 감소함을 알 수 있는데 이는 온도가 높은 증착관의 벽에서 Cu의 소모가 우선적으로 일어나기 때문으로 생각된다.

Table 5.2.1. Composition of YBaCuO film(atomic percent from EDS).

	Y	Ba	Cu
중 앙 부 분	16	23	59
10 mm 지점	17	25	57
20 mm 지점	19	26	53

제 3 절 수동소자 설계 및 제작

본 실험에서 사용된 마이크로파 수동소자는 microstrip line open ended half wavelength resonator이다. 50Ω line 설계를 위하여 다음 식들을 이용하였다.^[7] 상대유전상수 ϵ_r 인 기판의 유효유전상수 ϵ_e 는 아래식과 같이 주어진다.

$$\epsilon_e = \frac{\epsilon_r + 1}{2} + \frac{\epsilon_r - 1}{2} \frac{1}{\sqrt{1 + 12d/w}} \quad (1)$$

이때 기판의 두께 d 와 microstrip line의 넓이 w 의 비는 다음과 같다.

$$w/d = 8e^A / (e^A - 2) \quad (2)$$

$$A = \frac{Z_0}{60} \left(\frac{\epsilon_r + 1}{2} \right)^{1/2} + \frac{\epsilon_r - 1}{\epsilon_r + 1} \left(0.23 + \frac{0.11}{\epsilon_r} \right) \quad (3)$$

본 실험에 사용된 기판은 $20 \times 20 \times 1 \text{ mm}^3$ 의 MgO(100), LaAlO₃(100)이다. 이들 기판의 상대유전상수값은 MgO 8.2, LaAlO₃ 24.2으로 계산하였으며, 이는 Liang의 실험결과를 이용한 것이다. 위의 식들로 부터 얻어진 유효유전상수 값들로부터 유효파장의 길이는 다음식과 같이 구하였다.

$$\lambda_g = \lambda_0 / (\epsilon_e)^{1/2} \quad (4)$$

위의 식들로 부터 설계된 공진기의 최적 설계조건과 최적 coupling capacitance gap을 구하기 위하여 Compact Software Inc.의 simulation program인 Microwave Harmonica를 이용하여 최적 조건을 구하였다. 이 program으로부터 얻어진 공진기의 S_{21} parameter의 simulation 결과를 Fig.

5.3.1에 나타내었다.

이상의 예측으로 부터 얻어진 최적조건을 이용하여 microstrip line resonator를 제작하는 공정은 다음과 같다.

- 1) MOCVD법을 이용하여 기판표면에 YBaCuO 박막을 입힌다.
- 2) 광식각 작업과 습식에칭을 이용하여 microstrip pattern을 얻는다.
Photolithograph에 사용된 photoresist는 AZ5206이었으며, 4000 rpm으로 30초간 spinning하여 0.8 μm 두께의 PR을 입힐 수 있었다. Developer는 AZ-MIF500을 사용하였다. 습식에칭을 위하여 5%의 질산을 이용하였으며 YBaCuO 박막은 5초 이내에 깨끗이 에칭되었다.
- 3) 기판의 뒷면은 dc sputtering을 이용하여 Cu 박막을 입힌다. 이때 sputtering 조건은 450 V, 150 mA, Ar 10 sccm, 압력 5 mtorr이었으며, 증착된 Cu 박막의 두께는 6000 Å 가량되었다.

위의 공정으로부터 얻은 공진기의 실물사진을 Fig. 5.3.2에 보였다.

공진기의 특성 측정을 위하여 기판크기에 알맞는 jig를 설계 제작하였으며 Omni Spectra사의 miniature panel mount tab terminal connector를 사용하였다. Hewlette Packard사의 HP8510B network analyzer를 이용하여 insetion loss를 측정하였다.

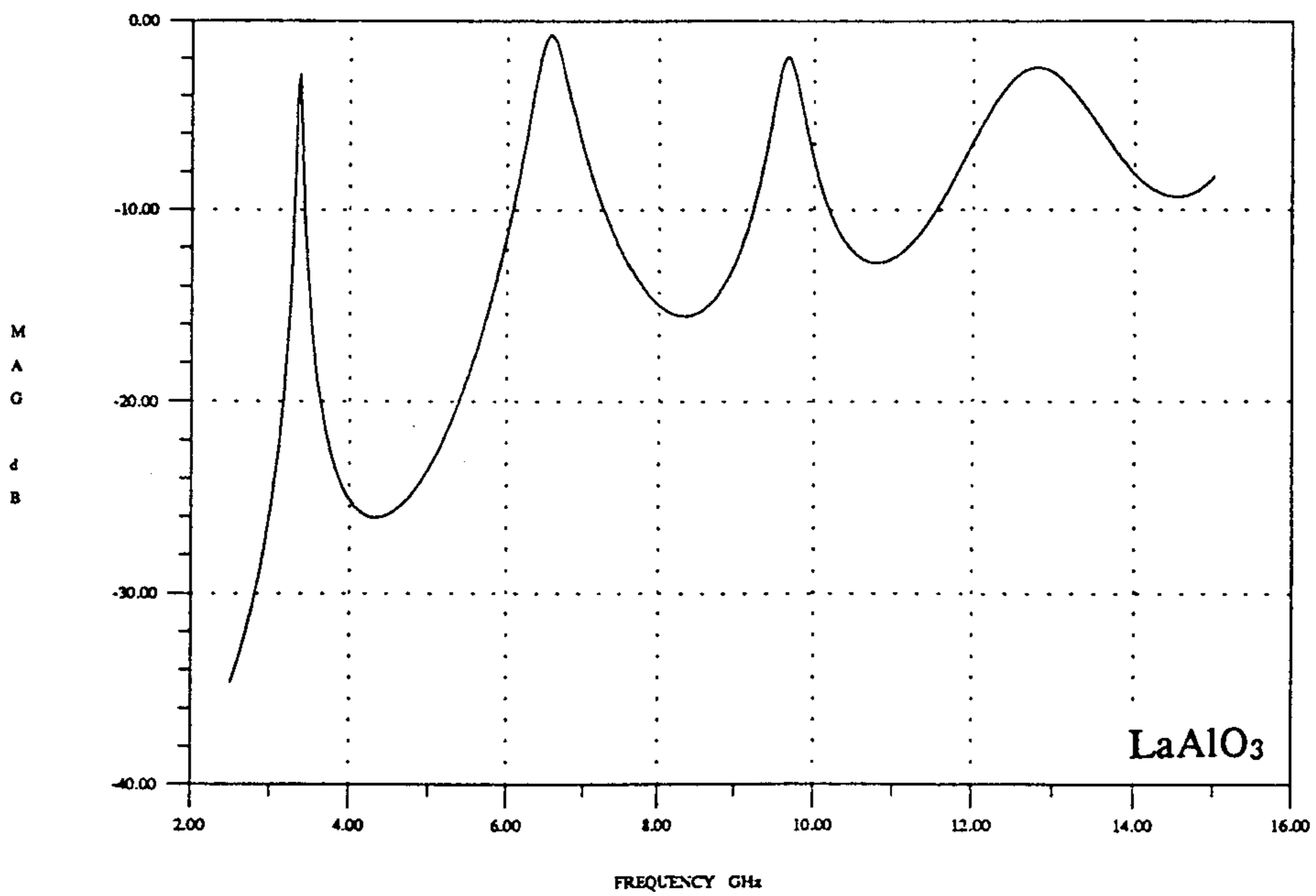
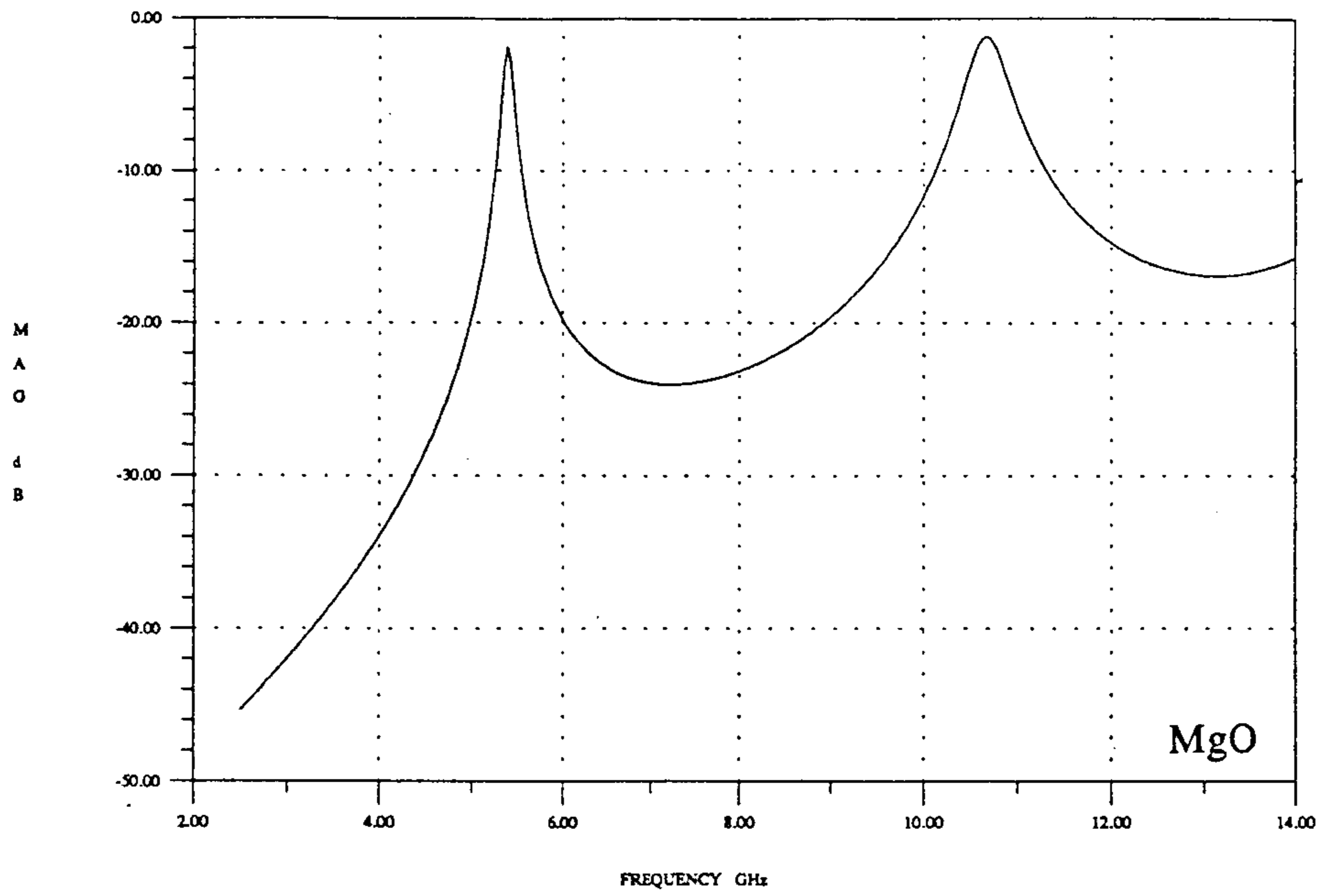


Fig. 5.3.1. Computer simulated S_{21} parameter of microstrip line resonator on MgO and LaAlO₃ substrate.

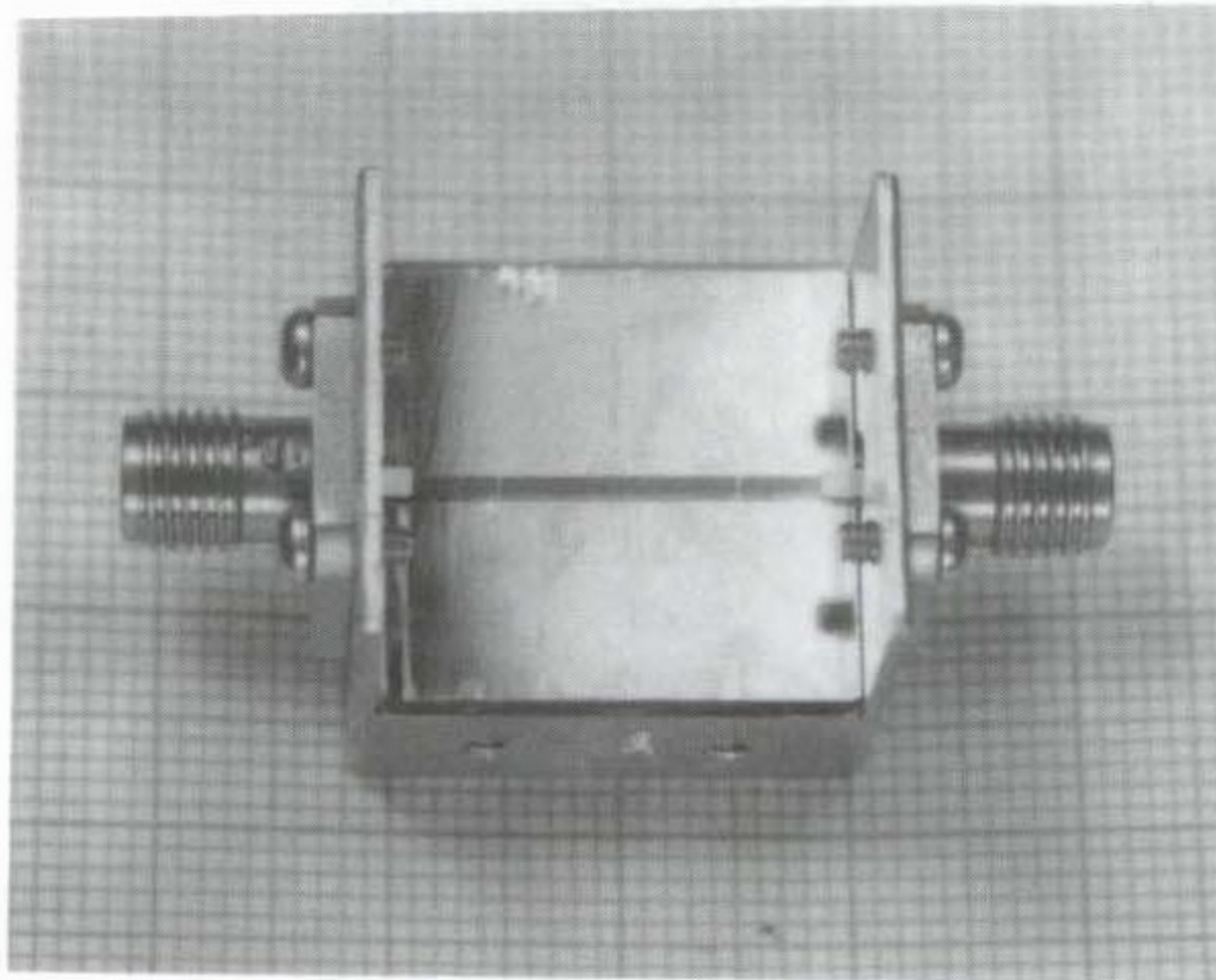
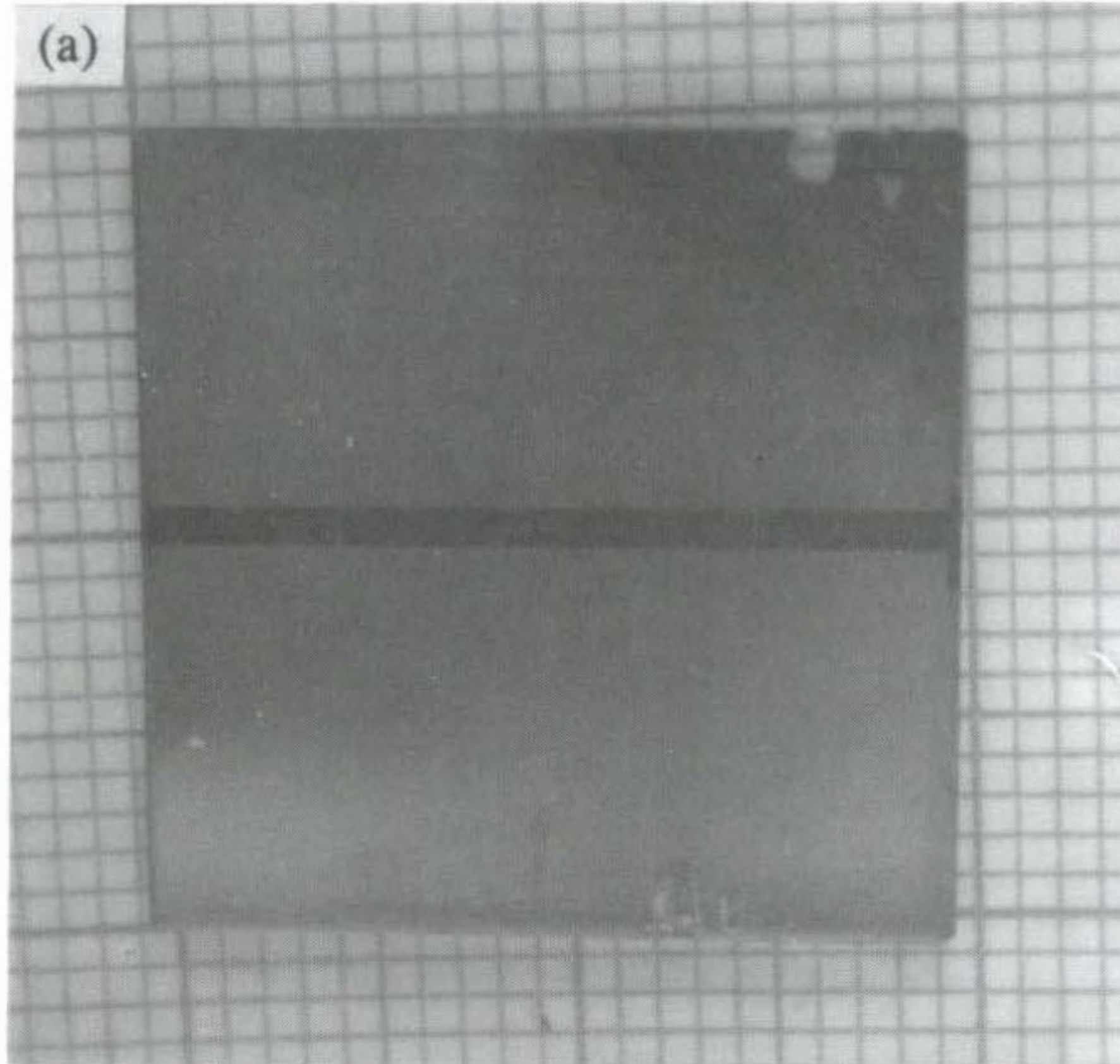


Fig. 5.3.2. Photograph of microstrip line resonator
(a) micro-patterned, (b) mounted on jig.

제 4 절 수동소자의 동작특성 측정

YBaCuO 박막을 이용하여 제작된 open ended half wavelength resonator의 동작특성을 측정하기 위하여 HP8510 network analyzer를 이용하였다. 측정주파수는 2~15 GHz의 넓은 범위에 대하여 측정하였다. Fig. 5.4.1은 LaAlO₃ 기판과 MgO 기판위에 Cu 박막을 이용하여 제작된 공진기의 S₂₁ parameter의 측정결과이다. 이때 Q값은 처음 공진 주파수에서 3 dB 감소폭으로부터 구하였으며 그 값은 MgO 기판의 경우 21.7, LaAlO₃ 기판의 경우 37.2이었다. 주파수가 높은 영역에서는 공진특성이 사라지고 대부분의 파가 통과되었는데 이는 측정용 jig가 resonant cavity로 작용하였기 때문으로 생각된다.

Fig. 5.4.2는 MgO 기판위에 증착된 YBaCuO 박막을 이용하여 제작된 공진기의 S₂₁ parameter 측정결과이다. (a)에 나타난 결과는 c축 수직인 박막을 이용하여 제작된 공진기의 특성이며 두번째 공진주파수에서 7.2 dB의 감소를 보이고 있다. 이때 Q값은 peak 위치로부터 3 dB 감소폭으로부터 구하였는데 그 값은 47이었다. (b)에 나타난 결과는 a축 수직인 박막을 이용하여 제작된 공진기의 특성이다. 공진 주파수에서 7.8 dB의 감소를 보이며 이때의 Q값은 44이었다.

Fig. 5.4.3은 LaAlO₃ 기판위에 증착된 YBaCuO 박막을 이용하여 제작된 공진기의 S₂₁ parameter 측정결과이다. (a)에 나타난 결과는 c축 수직인 박막을 이용하여 제작된 공진기의 특성이며 첫번째 공진주파수에서 5.1 dB의 감소를 보이고 있다. 이때 Q값은 peak 위치로부터 3 dB 감소폭으로부터 구하였는데 그 값은 114이었다. (b)에 나타난 결과는 a축 수직인 박막을 이

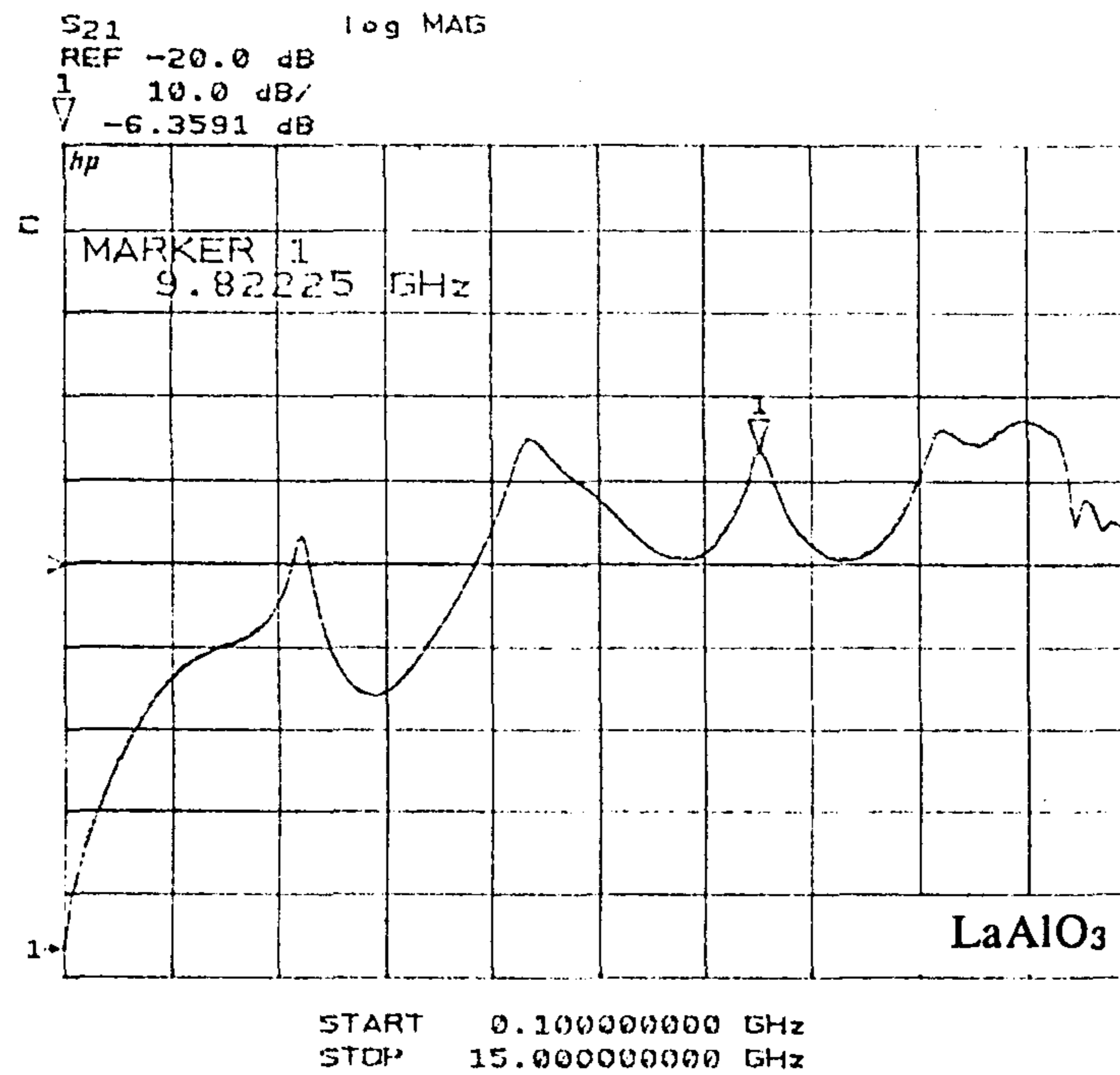
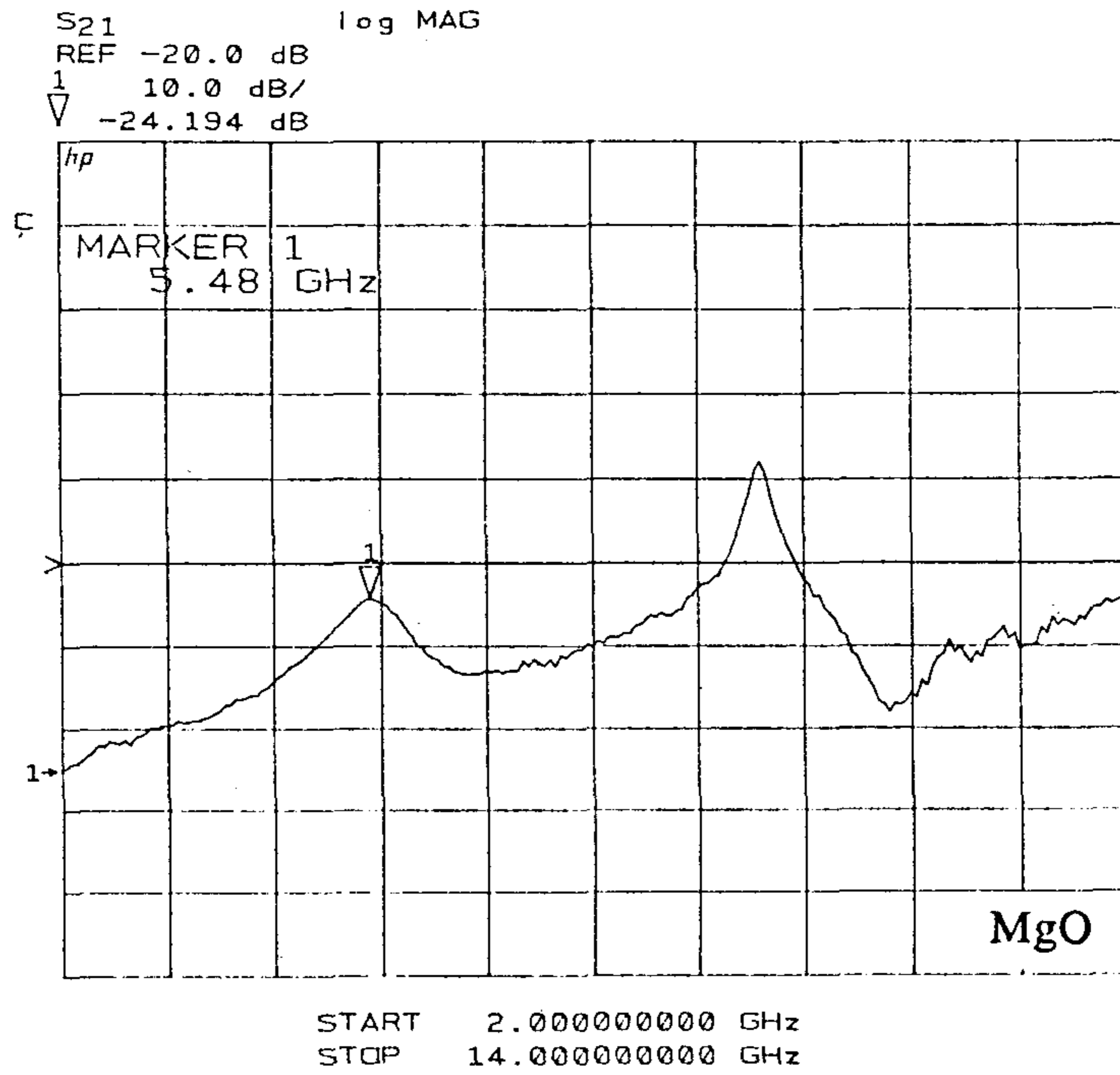


Fig. 5.4.1. S₂₁ parameter measure curve of microstrip line resonator fabricated with Cu film on MgO and LaAlO₃ substrate.

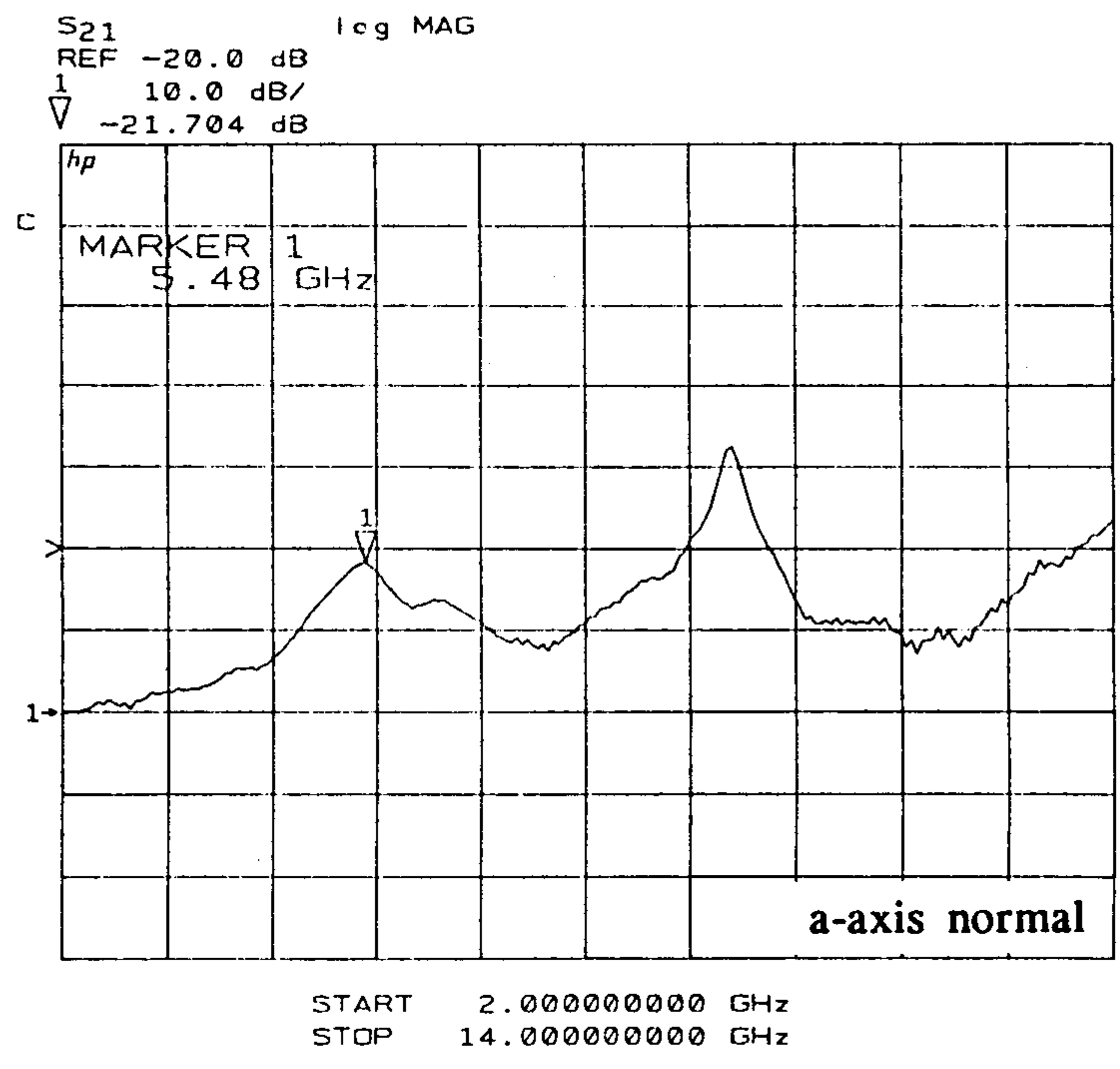
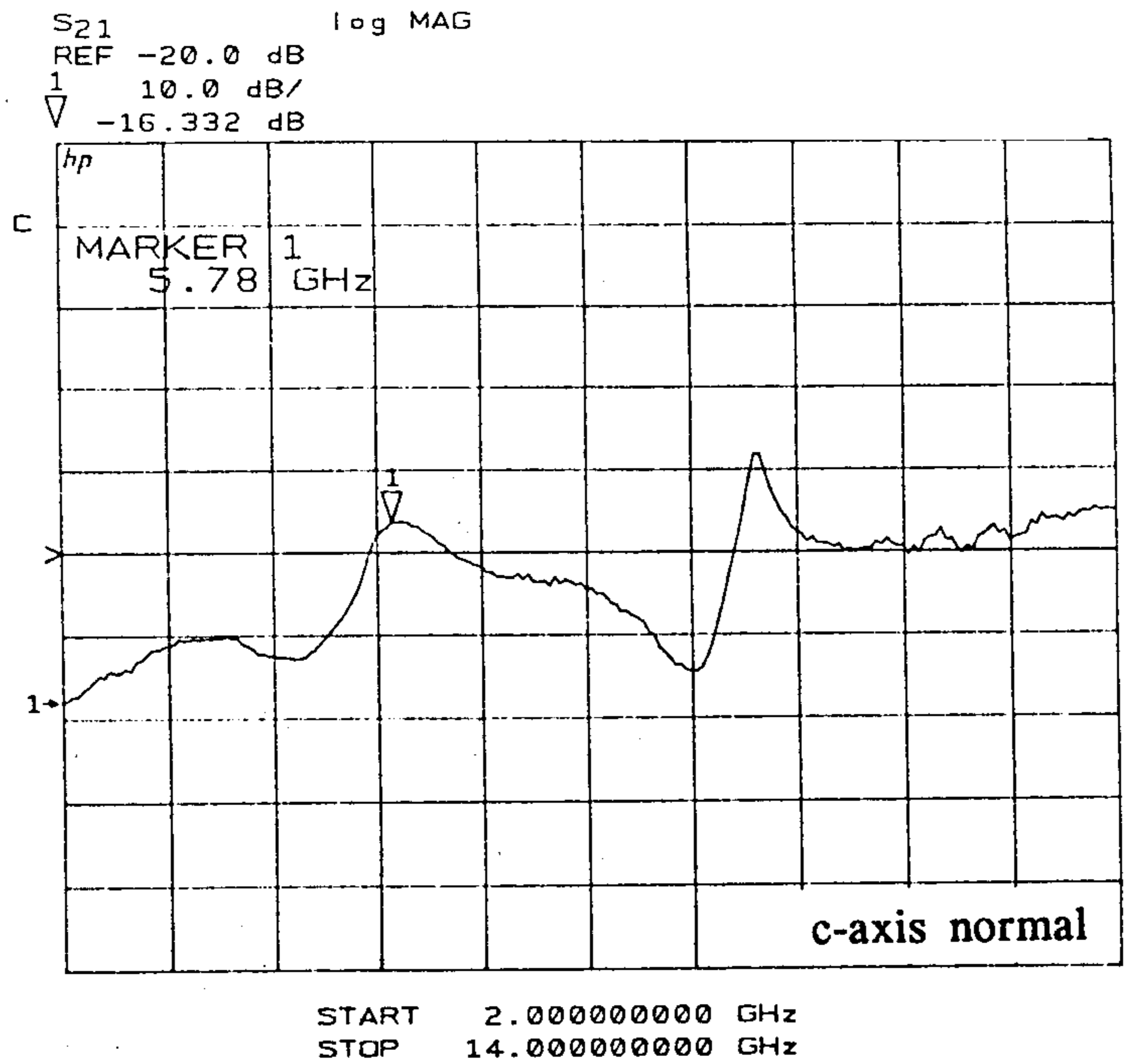


Fig. 5.4.2. S₂₁ parameter measure curve of microstrip line resonator fabricated with YBaCuO film on MgO substrate.

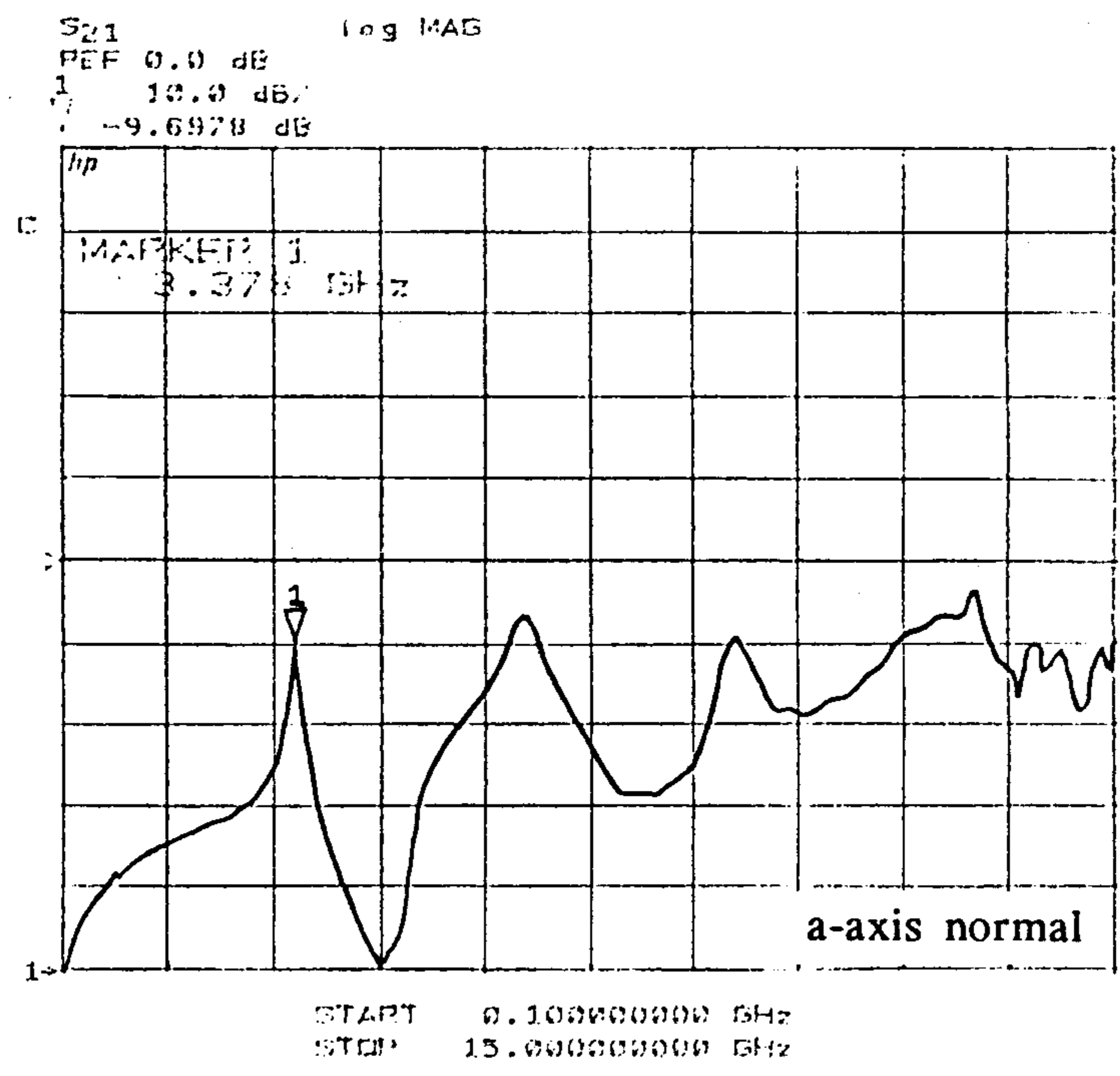
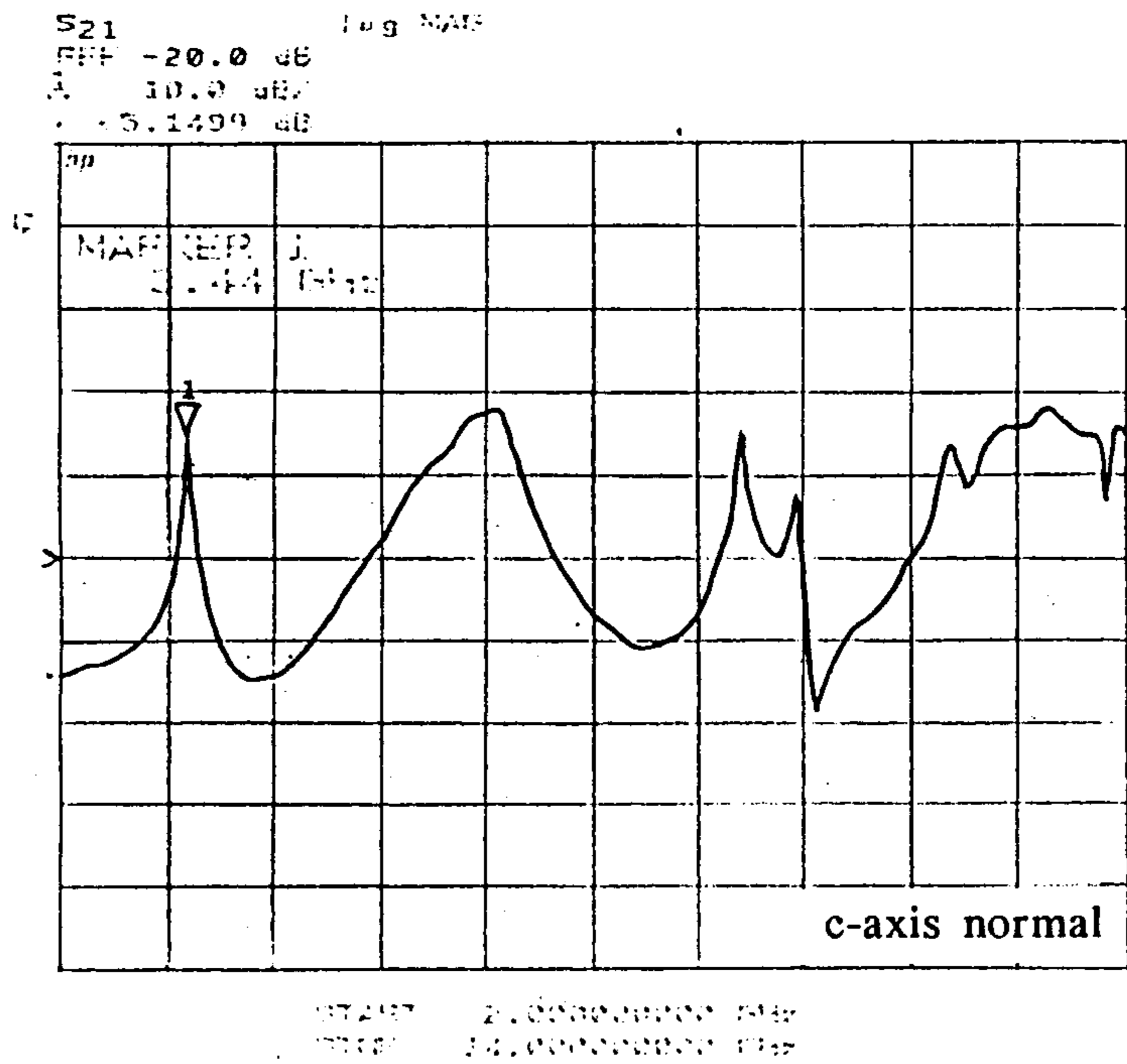


Fig. 5.4.3. S_{21} parameter measure curve of microstrip line resonator fabricated with YBaCuO film on LaAlO_3 substrate.

용하여 제작된 공진기의 특성이다. 공진 주파수에서 9.7 dB의 감소를 보이며 이때의 Q값은 56이었다.

길이 l 인 전송선의 input impedance는 아래 식과 같이 계산될 수 있다.

$$\begin{aligned} Z_{in} &= Z_0 \text{Coth}(\alpha + j\beta) l \\ &= Z_0 \frac{1 + j \tan\beta l \tanh\alpha l}{\tanh\alpha l + \tanh\beta l} \end{aligned} \quad (5)$$

이때 $l = \lambda/2$ 즉 $\omega = \omega_0$ 에서 공진이 일어나며 공진주파수가 약간 벗어난 경우, $\omega = \omega_0 + \Delta\omega$ 일때 윗 식은 다음과 같이 표현된다.

$$Z_{in} = \frac{Z_0}{\alpha l + j(\Delta\omega\pi/\omega_0)} \quad (6)$$

길이 l 인 전송선의 input impedance는 RLC로 이루어진 병렬공진회로의 input impedance와 같아진다. 즉 open circuited half wavelength transmission line은 RLC 병렬공진기처럼 작용하게 된다. 이때 이 공진기의 quality factor Q는 다음식과 같이 주어진다.

$$Q = \omega_0 RC = \pi/2\alpha l \quad (7)$$

α 는 마이크로파의 attenuation constant이며 이 값은 전송선의 도체손실을 나타내는 α_c 와 기판의 유전체손실을 나타내는 α_d 두값의 합으로 표현되며 이 값들은 아래 식과 같이 표현된다.

$$\alpha_c = R_s/Z_0 w \quad (8)$$

(w = width of microstrip line)

(R_s = surface resistivity)

$$\alpha_d = \frac{k_o \epsilon_r (\epsilon_e + 1) \tan d}{2\sqrt{\epsilon_e} (\epsilon_r - 1)} \quad (9)$$

두 기판의 유전체손실을 계산하기 위하여 상대유전상수값과 loss tangent 값은 Liang의 결과를 이용하였다. 이들 기판의 유전체손실상수값은 MgO의 경우 0.012, LaAlO₃의 경우 0.014이었다.

위 식들과 S₂₁ parameter 측정결과로부터 얻은 Q값을 이용하여 YBaCuO 박막의 표면저항값을 계산할 수 있었으며 그 값들은 다음과 같았다.

MgO 기판위에 a축 수직으로 성장된 박막 : 178 mΩ

MgO 기판위에 c축 수직으로 성장된 박막 : 167 mΩ

LaAlO₃ 기판위에 a축 수직으로 성장된 박막 : 124 mΩ

LaAlO₃ 기판위에 c축 수직으로 성장된 박막 : 54 mΩ

위의 표면저항 값들은 현재 보고되고 있는 연구결과에 비하여 매우 높은 값이다. 이처럼 낮은 Q값과 높은 표면저항이 얻어진 이유로는 다음의 몇 가지 사항을 고려할 수 있다. 첫째, 박막의 미세가공시 microstrip line의 경계부가 깨끗이 에칭되지 못하고 잔류물이 남거나 under cut에 의하여 공진기의 coupling gap의 크기가 미세하게 변화하였다. 이를 확인하기 위하여 microstrip line의 경계부를 주사전자현미경을 이용하여 관찰하였다. Fig. 5.4.4에서 보이듯이 에칭의 경계부에 잔류물을 관찰할 수 있는데 이와 같은 잔류물이 공진기의 특성저하 원인이 되었을 것이다. 둘째, 공진기와 측정용 jig, network analyzer간의 mismatching에 의하여 특성이 저하될 수 있다. 셋째, 기판 뒷면에 ground plane으로 증착된 Cu 박막에 의한 도체 손실이 있다. 따라서 이와같은 문제점들을 극복하기위한 계속된 연구가 이

루어져야 할 것이다.

이상의 결과들로 부터 LaAlO_3 기판위에 증착된 YBaCuO 고온초전도 박막을 이용한 마이크로파 공진기는 Cu 박막을 이용한 경우에 비하여 그 특성이 우수하게 나타남을 알 수 있었다. 또한 YBaCuO 고온초전도 박막을 이용한 마이크로파 수동소자 제작에는 LaAlO_3 가 우수한 기판재료임을 알 수 있었다. 이는 MgO 기판의 경우 격자상수차가 커서 YBaCuO 박막내에 high angle grain boundary가 형성된 반면, LaAlO_3 기판의 경우 격자상수차가 작아서 epitaxial한 박막이 성장되어 grain boundary에 의한 손실이 적기 때문으로 생각된다.

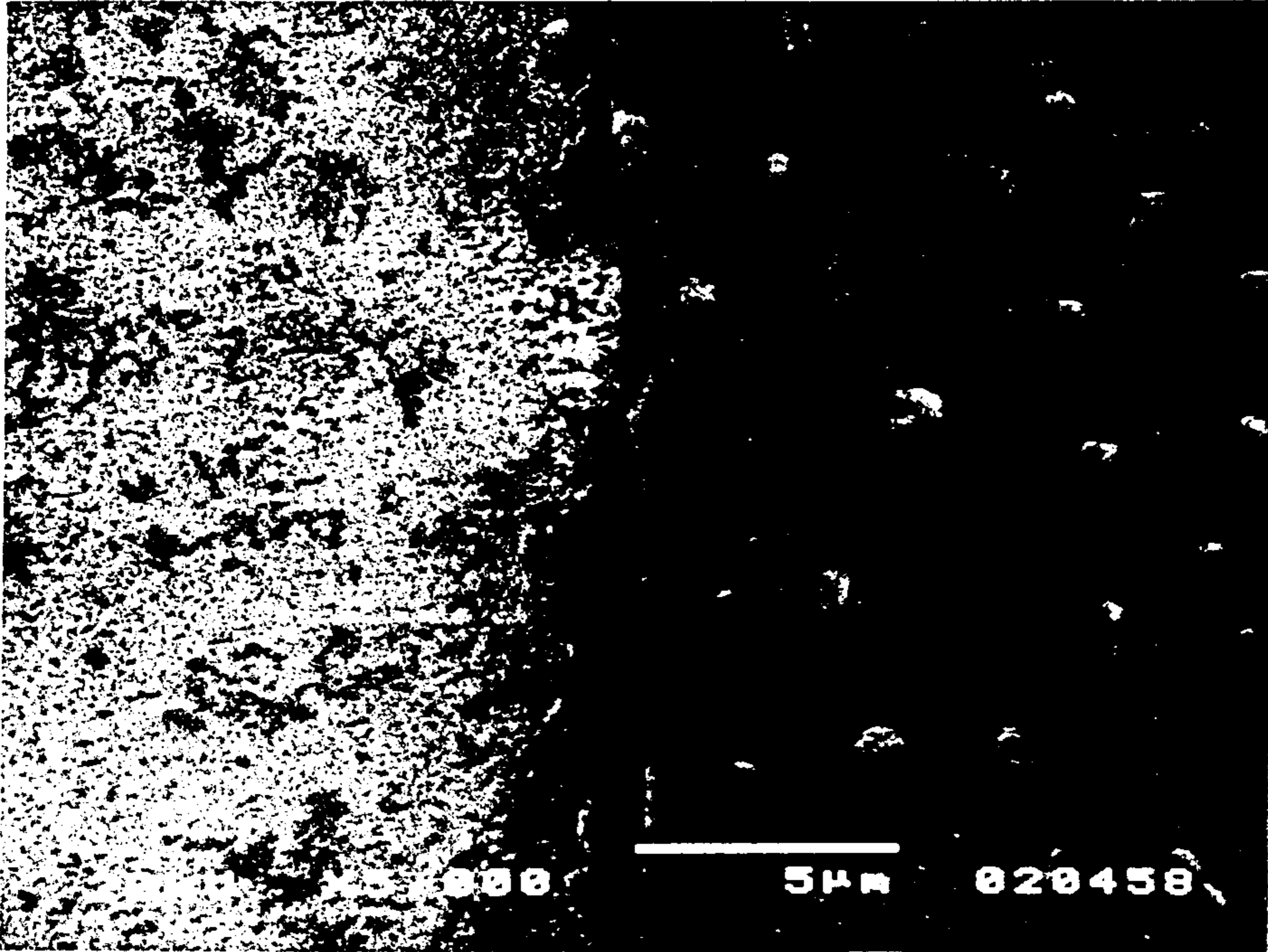


Fig. 5.4.4. Scanning electron micrograph of YBaCuO film at wet etch boundary.

제 5 절 결 론

YBaCuO 고온초전도 박막을 이용한 수동소자 개발을 위한 연구의 일환으로 open circuited half wavelength microstrip line resonator를 제작하였으며 Cu 박막을 이용한 공진기에 비하여 우수한 마이크로파 특성을 얻을 수 있었다.

1. MOCVD법을 이용하여 $20 \times 20 \text{ mm}^2$ 의 면적을 갖는 MgO(001), LaAlO₃(001) 단결정위에 YBaCuO 박막을 증착하였다.
2. LaAlO₃ 기판위에 YBaCuO 박막을 이용하여 제작된 공진기의 S₂₁ parameter 측정결과 Cu 박막을 이용한 공진기에 비하여 10 dB 이상의 이득 향상을 보였으며 공진주파수에서 Q값은 115이었다.
3. 기판의 표면에 c축 수직으로 성장한 YBaCuO 박막은 a축 수직인 박막에 비하여 4.6 dB의 이득 향상을 보였으며 표면저항값 또한 낮은 값을 보였다.

위의 실험결과들로 YBaCuO 박막을 이용한 마이크로파용 수동소자 개발 및 응용 가능성을 확인할 수 있었다.

참 고 문 헌

- [1] M.S. Schmidt, R.J. Forse, R.B. Hammond, IEEE Trans. on Microwave Theory and Tech. 39, 1475(1991).
- [2] E.B. Ekholm, S.W. McKnight, IEEE Trans on Microwave Theory and Tech. 38, 387(1990).
- [3] D.R. Dykaar, R. Sobolewski, J.M. Chwalek, J.F. Whitaker, Appl. Phys. Lett. 52, 1444(1988).
- [4] H. Yamane H. Masumoto, T. Hirai, H. Iwasaki, K. Watanabe, N. Kobayashi, Y. Muto, Appl. Phys. Lett. 53, 1548(1988).
- [5] Siu-Wai Chan, D.M. Hwang, L. Nazer, J. Appl. Phys. 65, 4719(1989).
- [6] P.H. Dickinson, T.H. Geballe, J. Appl. Phys. 66, 444(1989).
- [7] David M. Pozar, "Microwave Engineering" CH4, Addison Wesley, 1990.