

제1차년도
결과보고서

고온초전도 기술개발

Development of High T_c
Superconductivity Technology

고온초전도체 특성과 소규모 응용소자연구

Studies on Characteristics and Small Scale
Applications of High T_c Superconductors

연구기관

서울대학교

과학기술처

제 출 문

과학기술처장관 귀하

본 보고서를 “고온초전도 기술 개발” 과제의 (세부과제 “고온초전도체 특성과 소규모 응용소자연구”)의 연구진행보고서로 제출합니다.

1995. 4

주관연구기관명 : 한국표준연구소

총괄연구책임자 : 박 종 철

협동연구기관명 : 서울대학교

협동연구책임자 : 김 정 구

연구원 : 임 지 순

오 세 정

노 태 원

장 기 주

이 성 철

요 약 문

1. 제 목

고온 초전도체 특성과 소규모 응용소자 연구

2. 연구개발의 목적 및 중요성

초전도체는 완전도체성, 반자성 성질 등 고유한 전자기적 특성으로 인하여 광범위한 응용가능성을 가지고 있다. 특히, 초전도체는 초전도성의 질서계수인 에너지 간격의 coherence length가 길기 때문에 macroscopic scale의 계에서도 질서계수의 위상차에 의한 효과(Josephson 효과)가 나타나는 특성이 있으며 이러한 특성으로 인하여 초전도체만이 지닐 수 있는 응용 가능성이 매우 높다. 더욱이 고온 초전도체의 발견은 그 동안 초전도체 응용에서 가장 큰 걸림돌인 액체헬륨 신 값싼 액체 질소를 냉매로 가능하게했기 때문에 초전도체 응용에 있어서 한계가 사라졌음을 의미한다. 이러한 이유로 선진 각국에서는 고온 초전도체의 응용을 위한 연구가 경쟁적으로 추진되고 있는 상황이다.

그러나 고온 초전도체는 연구가 진행됨에 따라 응용에 앞서 해결하여야 할 여러가지문제가 있는 것으로 나타나 실용화가 예상보다 늦어지고 있다. 예를 들어 고온 초전도체는 산화물 세라믹이기 때문에 기계적 가공성이 나쁘고 또한 coherence length가 비교적 짧기 때문에 flux의 activation energy가 작아지고 따라서 flux motion이 쉬어져서 특이한 수송현상을 보인다. 이런 이유로 선재화를 통한 대규모 응용은 단시일 내에 해결되기는 어려울 지라도 박막을 이용한 소규모 소자 응용에 대한 연구는 전세계적으로 매우 활발하다. 특히, SQUID의 개발과

microwave filter 등에 대한 응용 연구는 상당한 수준에 도달했다고 볼 수 있다. 소규모 소자 응용을 위해서 선결해야할 문제점은 소자제작에 적합한 임계 특성과 표면 특성이 우수한 박막의 제작공정 확립, 다층 박막 제작공정의 확립, 미세 pattern 공정의 확립, 재현성 있는 Josephson 접합 제작, 및 flux dynamics의 이해로 잡음 제거 기술의 확립이 필요하다.

본 연구는 고온 초전도체의 소규모 응용을 위하여 step-edge형 Josephson 접합의 제작과 SQUID의 제작 그리고 junction array의 제작과 특성 분석 그리고 고온 초전도체의 에너지 간격의 측정과 flux dynamics에 대한 연구 및 특성 분석을 통하여 고온 초전도체의 기본 메커니즘 이해와 소규모 소자의 개발을 위한 기초연구를 수행함으로써 고온 초전도체의 실용화를 도모하고자 하였다.

3. 연구 개발의 내용 및 범위

본 연구과제에서 수행한 연구개발의 내용 및 범위는 지난 7년 간의 연구실적과 앞에서 언급한 문제점의 해결을 목적으로 고온 초전도체의 물성 조사를 통한 고온 초전도체의 기본 메커니즘 이해를 위한 이론적 노력과 양질의 박막제작을 토대로 step-edge 형 Josephson 접합, dc SQUID의 개발, 2차원 Josephson junction array 제작 및 특성조사를 통한 소규모 소자 개발이 주요 내용이다.

지금까지의 주요 연구 내용과 범위는

▷ 고온 초전도체 Josephson 접합 및 dc SQUID

 : step-edge 형 Josephson 접합

 : dc SQUID의 제작 및 특성 분석

▷ 2차원 고온 초전도체 Josephson junction array

 : 10×10, 10×100, 100×100 step-edge 형 array의 제작

: dI/dV 측정으로 junction 균일성 조사

: frustration 효과 측정

▷ 고온 초전도체의 에너지 간격 및 flux dynamics

: 저온 STM으로 borocarbide 계열 초전도체의 에너지 간격 측정

: 저온 STM으로 Hg 계열 초전도체의 에너지 간격 측정

: flux 구조 조사를 위한 MFM의 제작

▷ 고온 초전도체 수송 현상

: 고온 초전도체의 산소 함량에 따른 Hall 효과의 측정

: Ring 형태의 고온 초전도체의 자기 이완 특성 조사

4. 연구개발 결과 및 활동 방안에 대한 건의

본 연구를 통하여 얻은 연구 결과를 요약하면 다음과 같다.

□ 고온초전도체 조셉슨 접합 및 dc SQUID

▷ 소자 제작에 적합한 양질의 epitaxial 박막의 제작공정 확립

: In-situ dc inverted cylindrical magnetron sputtering

→ 임계온도 $T_c > 90$ K, 임계전류밀도 $J_c > 10^6$ A/cm² @ 77 K

: In-situ dc planar multi target magnetron sputtering

→ YBCO/PBCO multilayer 박막, In-situ Au 전극 증착

▷ 미세 pattern 공정 :

: e-beam lithography 및 ion milling을 이용한 1 μ m 수준의 미세 pattern 공정

: 1차년도 결과를 개선하기 위한 새로운 SQUID design

▷ Step-edge 조셉슨 접합 및 dc SQUID의 제작 및 특성 조사

: Ion-milling 방법에 의하여 재현성 있는 step-edge의 제작 공정 개발

: Step-edge 방법을 이용 다양한 넓이의 조셉슨 접합 및 다양한 형태의 dc SQUID 제작. 여러 가지 온도에서 I-V, V- Φ , noise 등의 특성을 조사하여 양호한 성능의 dc SQUID 확인.

□ 2차원 고온초전도체 조셉슨 접합 array

▷ Step-edge 조셉슨 접합 array 의 제작 (10×10 , 10×100 , 100×100)

▷ Step 식각 방법의 개선.

▷ 자속-전압 특성의 측정 (10×100 array)

: $f=1, 1/2, 1/3, 1/4$ frustration 관찰.

▷ dI/dV 측정에 의한 접합세기 분포의 해석.

▷ Junction array의 I-V 특성 simulation

□ 고온초전도체의 특성 조사

▷ Zn doped된 YBCO single crystal 성장

▷ YBCO 박막의 초전도 전이구간에서 Hall 효과를 측정

: 임계점 부근에서 Hall 전압 부호 변화

: 산소가 결핍된 YBCO 박막에서 Hall 전압 부호변화 사라짐

▷ Quaternary borocarbide 초전도체 기본 물리량의 자기적 측정

□ 고온초전도체의 Energy gap 측정과 Flux dynamics

▷ Energy gap 측정

: 1차년도에 제작한 저온 STM에 온도 변화 장치 부착

: Quaternary borocarbide 초전도체의 에너지 간격 및 이의 온도 의존성 조사

: Proximity model에 의한 Hg 계열 초전도체 에너지 간격 설명

▷ Flux dynamics 조사

: Flux line structure 조사를 위하여 MFM (magnetic force microscope)를 제작

□ 고온초전도체의 이론

▷ 고온초전도체의 에니온 모형이 만족하는 분수적 통계역학을 베리의 위상으로 기술할 수 있음을 밝혀냄. (고온초전도체, C60 fullerene)

이러한 연구결과는 고온 초전도체 이해를 위한 기초 연구일 뿐만 아니라 소규모 소자 (magnetic sensor, microwave generator 등)의 개발을 위한 기초 연구로 차후 소규모 소자 개발의 토대가 될 수 있다.

Summary

I Project Title

Studies on characteristics and small scale applications of high T_c superconductors

II Objectives and Significance of the Project

Due to its perfect conductivity and diamagnetic property, superconductor has a potential for a wide application. In addition the typical order parameter (energy gap) of the superconductor has a rather long coherence length thus allowing the phase coherent effect even in a macroscopic system, which is known as Josephson effect. The unique Josephson effect is the basis for the small scale application of the superconductor. The discovery of high T_c superconductor with T_c above the boiling point of liquid nitrogen virtually removed the necessity of liquid helium as the coolant thus removing obstacle for the application of superconductors. For this reason advanced countries such as U.S.A. and Japan are paying a great deal of interest for the application of HTSC.

As the research on HTSC makes progress, however, there appear

many unexpected problems such as poor mechanical ductility, short coherence length which in turn makes easier flux motion due to the small activation energy. Thus earlier application of HTSC is expected in the area of small scale devices which employ thin film of HTSC, rather than in the area of large scale applications which require HTSC wire. Already there has been a significant progress especially in SQUID and microwave filter. The prerequisite for the small scale device application is as follows : it is necessary to establish high quality thin film fabrication process, multilayer thin film fabrication process, micro pattern process, reproducible Josephson junction fabrication and also necessary to understand flux dynamics for the control of the noise in HTSC devices.

In this study, we intended to strengthen the ground for the small scale device application through the establishment of Josephson junction technique, SQUID, Josephson junction array, transport measurement in HTSC.

III Contents and Scope of Research Activity

Based on results of the research in the past of years, we intended to understand the basic mechanism of HTSC through the transport measurement as well as to develop small scale devices such as Josephson junction, dc SQUID, Josephson junction array.

Contents of present research activity are as follows :

HTSC Josephson junction and dc SQUID

Step-edge type Josephson junction

Fabrication of dc SQUID and its characterization

2-dim HTSC Josephson junction array

10×10 , 10×100 , 100×100 step-edge type array

Junction uniformity in array by dI/dV measurement

Frustration effect

Energy gap and flux dynamics

Energy gap measurement in borocarbide superconductor

Energy gap measurement in Hg compound superconductor

Construction of MFM for vortex structure study

Transport measurements

Hall effect in YBCO film

Magnetic relaxation in ring type HTSC

IV Results and Suggestions for Application

Main results obtained in this study are as follows :

HTSC Josephson junction and dc SQUID

▷ High quality epitaxial film growth

i) In-situ dc inverted cylindrical magnetron sputtering

→ critical temperature $T_c > 90$ K, critical current density $J_c >$

$10^6 \text{ A/cm}^2 @ 77 \text{ K}$

ii) In-situ dc planar multi target magnetron sputtering

→ YBCO/PBCO multilayer thin film, In-situ Au contact

▷ micro pattern process

: 1 μm pattern process using e-beam lithography and ion milling

: new SQUID design

▷ Step-edge Josephson junction and dc SQUID

: fabrication of step-edge in substrate by ion-milling

: fabrication of Josephson junction and dc SQUID by step-edge method

: I-V, V- ϕ , noise measurement for dc SQUID

□ 2-dim Josephson junction array

▷ Step-edge type Josephson junction array (10×10 , 10×100 , 100×100)

▷ refined process for step formation

▷ field-voltage characteristics for (10×100 array)

: $f=1, 1/2, 1/3, 1/4$ frustration

▷ junction uniformity through dI/dV measurement

▷ I-V characteristics simulation for junction array

□ Transport measurements

▷ Single crystal growth of Zn doped YBCO

- ▷ Hall effect measurement for YBCO thin film with different oxygen content
 - i) Sign reversal of Hall voltage near critical temperature
 - ii) no sign reversal of Hall voltage for YBCO with oxygen deficiency
- ▷ Characteristics of quaternary borocarbide

□ Energy gap and Flux dynamics

- ▷ Energy gap measurement
 - variable temperature LT STM
 - energy gap and its temperature dependence of quaternary borocarbide superconductors
 - Proximity model to explain the energy gap of Hg compound superconductor
- ▷ Flux dynamics
 - construction of MFM (magnetic force microscope) for the study of flux line structure

□ Theoretical study

- ▷ Barry's phase to explain superconductivity in HTSC and C60 fullerene

These studies can provide a basic ground for the development of

small scale devices such as magnetic sensor and microwave generator using HTSC as well as for the understanding of the basic mechanism of HTSC.

CONTENTS

| | |
|---|-----|
| Chapter 1. Introduction ----- | 1 |
| Section 1. Research Background for HTSC ----- | 1 |
| Section 2. Objectives ----- | 5 |
| Section 3. Contents and Scope of Research ----- | 6 |
| Chapter 2. dc SQUID and Josephson Junction Array ----- | 11 |
| Section 1. Step-edge Type dc SQUID ----- | 11 |
| Section 2. Fabrication and Characterization of JJA ----- | 25 |
| Section 3. Simulation of JJA ----- | 44 |
| Chapter 3. Energy Gap and Flux Dynamics of HTSC ----- | 53 |
| Section 1. Energy Gap of Hg-based Superconductor ----- | 54 |
| Section 2. Energy Gap of Borocarbides ----- | 68 |
| Section 3. Construction of MFM ----- | 83 |
| Chapter 4. Transport Phenomena of HTSC ----- | 99 |
| Section 1. Hall Effect ----- | 99 |
| Section 2. Magnetic Properties of Borocarbides ----- | 125 |
| Section 3. Magnetic Relaxation in Ring-Type YBCO ----- | 131 |
| Chapter 5. Theoretical Study of HTSC ----- | 144 |
| Appendix (Published or Submitted Papers) ----- | 147 |

목 차

| | |
|---|-----|
| 제 1 장 서 론 | 1 |
| 제 1 절 고온초전도체의 연구 현황 | 1 |
| 제 2 절 연구 개발의 목적 | 5 |
| 제 3 절 연구 내용 및 범위 | 6 |
| 제 2 장 dc SQUID 와 조셉슨 접합 Array | 11 |
| 제 1 절 Step-edge형 dc SQUID의 제작과 특성 | 11 |
| 제 2 절 조셉슨 접합 Array의 제작과 특성 조사 | 25 |
| 제 3 절 조셉슨 접합 Array의 특성 Simulation | 44 |
| 제 3 장 고온초전도체의 에너지 간격과 Flux Dynamics | 53 |
| 제 1 절 Mercury 계열의 에너지 간격 | 54 |
| 제 2 절 Borocarbide 계열의 에너지 간격 | 68 |
| 제 3 절 Flux Dynamics 조사를 위한 MFM 제작 | 83 |
| 제 4 장 고온초전도체의 수송 현상 | 99 |
| 제 1 절 Hall 효과 | 99 |
| 제 2 절 Borocarbide의 자기적 성질 | 125 |
| 제 3 절 Magnetic Relaxation in Ring-Type YBCO | 131 |
| 제 5 장 이 론 | 144 |
| 부 록 | 147 |

제 1 장 서 론

제 1 절 고온초전도체의 연구 현황

고체에서 일어나는 자연현상 중 우리가 관찰하는 현상들은 대부분 고체의 파동함수의 크기에 의하여 결정되는 평균적 효과들이다.

물론 극히 드물게 충돌이나 산란에 의한 효과가 없는 경우에는 파동함수의 위상 효과에 의한 현상을 관찰할 수 있다. 예를 들어 빛의 interference에 의한 diffraction은 진행하는 빛이 진공 중에서 산란 효과가 없기 때문에 위상 차에 의한 interference 효과 관찰이 가능한 것이다. 마찬가지로 크기가 극히 작은 미세구조계에서 관찰할 수 있는 Aharonov-Bohm 효과도 전자의 평균 자유 이동 거리(mean free path)가 계의 크기와 비슷하여 산란이 있더라도 전자 파동함수의 위상이 남아 있어서 나타나는 위상 간섭 효과이다.

초전도체는 완전도체성, 반자성 등 고유한 전자기적 특성으로 인하여 광범위한 응용 가능성을 가지고 있다. 특히 초전도체는 초전도성(superconducting phase)의 질서 계수(order parameter)인 에너지 간격의 coherence length가 길어서 macroscopic scale에서도 질서 계수의 위상 차에 의한 효과(Josephson 효과)가 나타나는 특성이 있으며 이러한 특성으로 인하여 초전도체만이 지닐 수 있는 응용 가능성이 매우 높다. 다만 초전도성이 나타나는 임계온도가 낮아서 액체헬륨을 사용하여야 하기 때문에 응용 범위가 한정되었으나, 고온 초전도체의 출현으로 냉매를 액체 질소로 사용하는 것이 가능하게졌기 때문에 초전도체의 응용에 있어서 장애점이 사라졌음을 의미한다.

그러나 고온 초전도체에 대한 연구가 진행됨에 따라 고온 초전도체는 응용에 앞서 해결하여야 할 많은 문제점을 내포하고 있음이 밝혀져 그 실용화가 예상보다 늦어지고 있다.

고온 초전도체의 실용화가 예상보다 늦어지고 있는 이유는 다음의 몇 가지 특성으로 요약될 수 있다.

첫째, 고온 초전도체는 산화물 세라믹이기 때문에 기계적 연성이 나쁘며 따라서 기계적 가공성이 없다는 점이다.

둘째, 고온 초전도체는 초전도성을 나타내는 변수인 coherence length 가 저온 초전도체에 비하여 훨씬 짧다는 점이다.

셋째, 고온 초전도체는 층상 구조를 가져 이방성이 매우 강하다는 점이다.

넷째, 고온 초전도체는 합성할 때 입상 성질을 보인다는 점이다.

이러한 고온 초전도체의 특성으로 인하여 고온 초전도체는 저온 초전도체에 비하여 여러 가지 특이한 현상을 보이고 있다. 예를 들어 구조적 입상 성질과 짧은 coherence length로 인하여 flux activation energy가 작아서 flux motion이 쉽게 일어나며 따라서 임계전류밀도가 낮아지게 되고, 또한 소자 작동시 flux motion에 의한 잡음이 크게 나타난다는 점이다. 뿐만 아니라 flux motion 때문에 자기적 이완 현상이 나타나며 Hall 효과에서도 특이한 sign reversal 현상도 나타난다.

따라서 고온 초전도체에 대한 세계적 연구 현황은 첫째 대규모 응용을 위한 선재화 연구와, 둘째 박막을 사용하여 소규모 응용을 위한 연구와, 셋째 단결정등 순수한 재료를 사용하여 고온 초전도체의 특성에 관한 연구, 그리고 넷째 고온 초전도체에 대한 기본 mechanism에 대한 연구로 구분할 수 있다.

고온 초전도체의 기계적 연성이 나쁘기 때문에 대규모 응용을 위한 선재화 작업은 고온 초전도체의 기계적 연성을 보완하기 위하여 silver tube를 사용하거나

또는 ribbon type 의 선재화를 위한 연구가 진행되고 있으며 아울러 임계전류밀도 상승을 위하여 pinning center 주입을 위한 여러 가지 연구가 진행되고 있다. 최근 Los Alamos 연구소에서는 박막 ribbon type 선재에서 임계전류밀도가 질소온도에서 10^6 A/cm² 를 넘어섰다고 발표하였다.

이에 비하여 박막을 이용한 소규모 소자의 응용은 고온초전도체의 기계적 성질에 크게 영향을 받지 않기 때문에 전세계적으로 박막을 사용한 SQUID 의 제작 및 이를 이용한 magnetometer, 그리고 고온 초전도체 박막의 표면 저항이 작은 사실을 활용한 microwave filter junction array에 대한 연구가 활발히 추진 중이다. 구체적으로는 고온 초전도체를 이용한 SQUID system으로 IBM 및 Quantum Magnet 사에서는 magnetic sensing system을 개발하고 있으며 비파괴 검사용으로 활용할 계획을 가지고 있다. 그리고 Conductus 및 STI 사에서는 cellular telephone의 base station 용 filter를 개발하고 있으며 현재 power capacity를 증가시키기 위한 연구가 진행 중이다. 이 밖에 소규모 NMR 용 coil 이라든가 digital electronics 용 소자 응용 연구도 매우 활발하다. 이러한 소규모 초전도 소자의 개발 및 응용 연구는 거시적 양자 현상으로 설명할 수 있는 Josephson 효과에 기초하고 있다. 한개 또는 두개의 Josephson junction이나 또는 많은 수의 Josephson junction의 array를 이용한 switching 소자, mixer, logic gate 등 반도체 소자를 대신할 수 있는 소자의 장점은 거의 양자 한계에 이르는 switching 시간 (~1 ps)과 작은 소비 전력 (10 μ W) 때문에 고온 초전도체의 개발 여지에 따라 응용 가능성은 대단히 크다고 볼 수 있다.

고온 초전도체의 특성 조사는 현재 고온 초전도체의 질서 계수의 대칭성에 대한 조사 연구가 가장 활발하다. 고온 초전도체는 저온 초전도체의 질서 계수가 s-wave 이라고 생각하는데 비하여 d-wave 의 특성을 지녔으리라고 생각하고 있

기 때문에 이에 대한 실험적 연구가 매우 활발히 진행되고 있다. 고온 초전도체의 에너지 간격에 대한 조사는 vacuum tunneling 에 의한 직접적 조사와 IR 등 optical 한 방법으로 유추하거나 photoemission 등에 의하여 대칭성을 조사하기도 한다. 또는 Josephson junction 을 결합하여 대칭성에 대한 조사를 하기도 한다. 아울러 고온 초전도체는 작은 activation energy로 인하여 초전도체 내의 flux의 움직임에 의한 특이한 현상을 보이고 있다. 예를 들어 최근 연구가 활발한 Hall effect 의 sign reversal 은 flux motion 때문에 생긴다고 믿어지나 이에 대한 근본적 이유는 아직 밝혀지지 않은 큰 문제로 부각되고 있다. 따라서 다른 방법으로 고온 초전도체 내의 vortex 구조 및 vortex dynamics에 대해 연구할 수 있는 방법의 개발이 점차 중요해지고 있다고 판단된다.

고온 초전도체의 기본 mechanism에 대한 연구는 매우 활발하지만 아직 분명한 해답의 방향이 설정되지 못했다고 판단된다. 기존의 BCS 이론을 크게 벗어나지 않는 것으로 의견은 모아지고 있으나, electron-phonon 상호작용인지 또는 strong-correlation에 의한 결과인지 또는 spin interaction에 의한 결과인지 불분명하며 이외에 다른 여러 가지 이론적 모델이 나오고 있다.

이상의 연구 현황에서 언급한 바와 같이 고온 초전도체에 대한 연구는 소규모 응용 소자를 중심으로 과거 2-3 년간의 선진국의 개발 연구가 결실을 맺기 시작함에 따라 전 세계적으로 더 많은 연구가 진행될 것으로 판단된다. 아울러 energy gap 의 대칭성, SQUID 등 여러 가지 방법을 사용한 vortex dynamics에 대한 연구도 계속적으로 진행되어 이에 대한 결론이 조만간 나올 것으로 전망된다.

제 2 절 연구개발의 목적

고온 초전도체의 응용은 선재화를 이용한 대규모 응용과 박막을 이용한 소규모 소자 응용으로 나눌 수 있으나 본 연구에서는 소규모 응용을 위한 연구를 추진하였다. 소규모 소자 응용을 위하여 선결되어야 할 문제점은 소자 제작에 적합한 임계 특성과 포면 특성이 우수한 박막제작공정의 확립, 다층박막제작 공정의 확립, 미세 pattern 공정의 확립, 재현성 있는 Josephson 접합 기술의 확립, flux dynamics에 대한 이해를 통하여 잡음 제거 기술의 확립이 요구되고 있다.

본 연구에서는 지난 7년간의 연구 실적과 앞에서 언급한 문제점에 대한 해결을 목적으로 고온 초전도체의 물성 조사를 통하여 고온 초전도체의 기본 메커니즘 이해를 위한 이론적 노력과 양질의 박막 제작 기술을 토대로 step-edge 를 이용한 Josephson junction의 형성, 다층구조의 SNS 형태의 Josephson junction, dc SQUID 와 2 차원 Josephson junction array 제작 및 특성조사를 통한 소규모 소자의 개발이 근본 목표이다. 이러한 목표를 정리하면,

- ▷ Step-edge 형 Josephson junction 및 dc SQUID 의 제작과 특성조사,
- ▷ 고온초전도체 2차원 Josephson junction array 의 제작 및 특성조사,
- ▷ 저온 STM을 사용한 고온초전도체의 에너지 간격 측정 및 표면조사,
- ▷ MFM(magnetic force microscope) 을 사용한 flux dynamics 조사,
- ▷ 잡음특성, flux motion 및 Hall 효과등 수송현상측정을 통한 고온초전도체 물성 이해,
- ▷ 고온 초전도체에 대한 이론적 이해

등이다.

제 3 절 연구 내용 및 범위

연구 목적에 따라 지금까지 수행한 연구내용은 다음과 같다.

3-1 고온초전도체 Josephson junction 및 dc SQUID

고온초전도체 Josephson junction 의 제작 방법은 정상상태의 금속 또는 부도체를 사용하는 SNS 또는 SIS 형태의 접합과 grain boundary 사이의 weak link 특성을 이용하는 grain boundary 접합이 있다. 본 연구에서는 주로 기판에 인위적인 계단을 만들어서 그 위에 박막을 증착함으로써 형성되는 step-edge 형 접합을 형성하여 Josephson junction 및 dc SQUID를 제작하였다. 그러나 장차 집적회로에 응용하기 위한 기초 연구로 SNS 형태의 접합에 관한 연구도 시도하였다.

이러한 연구 내용을 요약하면 다음과 같다.

▷ 소자 제작에 적합한 양질의 epitaxial 박막의 제작공정 확립

: In-situ dc inverted cylindrical magnetron sputtering

→ 임계온도 $T_c > 90$ K, 임계전류밀도 $J_c > 10^6$ A/cm² @ 77 K

: In-situ dc planar multi target magnetron sputtering

→ YBCO/PBCO multilayer 박막, In-situ Au 전극 증착

▷ 미세 pattern 공정 :

: e-beam lithography 및 ion milling을 이용한 1 μ m 수준의 미세 pattern 공정

: 1차년도 결과를 개선하기 위한 새로운 SQUID design

- ▷ SNS multilayer 조셉슨 접합의 제작 및 특성 조사
 - : YBCO/PBCO ramp-edge 조셉슨 접합 및 planar 조셉슨 접합 제작을 위한 design
- ▷ Step-edge 조셉슨 접합 및 dc SQUID의 제작 및 특성 조사
 - : Ion-milling 방법에 의하여 재현성 있는 step-edge의 제작 공정 개발
 - : Step-edge 방법을 이용 다양한 넓이의 조셉슨 접합 및 다양한 형태의 dc SQUID 제작. 여러 가지 온도에서 I-V, V- ϕ , noise 등의 특성을 조사하여 양호한 성능의 dc SQUID 확인.

3-2 2차원 고온 초전도체 Josephson junction array

Josephson junction array 는 2차원 모델의 실질적인 실현이라는 의미에서 등상전이 현상을 연구하는 통계 역학적 이론의 연구대상일 뿐만 아니라 array 는 그 자체로서도 microwave 소자로 응용 가능성이 높기 때문에 이에 대한 많은 이론적, 실험적 연구가 진행되고 있는 분야이다. $N \times N$ Josephson junction array 의 경우 phase locking effect에 의하여 Giant Shapiro step 의 관찰뿐만 아니라 coherent microwave radiation 이 가능하여 radiation intensity 가 N^2 에 비례하는 power를 얻을 수 있을 것으로 기대된다. 또한 주파수는 tunable하여 최대 주파수는 고온 초전도체의 에너지 간격에 해당하는 THz 영역의 신호를 다룰 수 있는 방법이다.

본 연구에서 시도한 고온 초전도체 Josephson junction array 의 결과를 요약하면 다음과 같다.

- ▷ Step-edge 조셉슨 접합 array 의 제작 (10×10 , 10×100 , 100×100)
- ▷ Step 식각 방법의 개선.

- ▷ 자속-전압 특성의 측정 (10×100 array)
 - : $f=1, 1/2, 1/3, 1/4$ frustration 관찰.
- ▷ dI/dV 측정에 의한 접합세기 분포의 해석.
- ▷ Junction array의 I-V 특성 simulation

3-3 고온 초전도체 energy gap 과 flux dynamics

고온 초전도체는 표면의 degradation 과 또는 energy gap 의 symmetry 등 여러 가지 이유로 인하여 저온 초전도체에 비하여 에너지 간격 측정에 많은 어려움이 있다. 따라서 지금까지 고온 초전도체의 에너지 간격에 대한 측정치는 연구자에 따라 많은 차이를 보였을 뿐만 아니라 최근 개발된 Hg 계열 초전도체와 borocarbide 계열 초전도체에 관해서는 아직 에너지 간격에 대한 측정 사례가 별로 없는 상황이다. 따라서 본 연구에서는 표면의 원자 배열을 조사할 수 있는 STM 을 저온에서 온도를 변화시키면서 에너지 간격을 측정할 수 있도록 제작하였으며 이를 이용하여 I-V 및 dI/dV 특성을 측정함으로써 에너지 간격을 측정하였다. 아울러 고온 초전도체에서의 flux 구조와 vortex structure 및 dynamics를 조사하기 위하여 본 연구에서는 MFM(magnetic force microscope) 의 제작을 시도하였다.

- ▷ Energy gap 측정
 - : 1차년도에 제작한 저온 STM에 온도 변화 장치 부착
 - : Quaternary borocarbide 초전도체 에너지 간격 및 이의 온도 의존성 조사
 - : Proximity model에 의한 Hg 계열 초전도체 에너지 간격 설명
- ▷ Flux dynamics 조사

: Flux line structure 조사를 위한 MFM (magnetic force microscope)
를 제작

3-4 고온 초전도체 수송 특성 조사

고온 초전도체는 coherence length가 극히 짧기 때문에 초전도체 내부에 trap 된 flux 의 activation energy 가 작아서 초전도체 내부에 전류가 흐르는 경우 생기는 flux motion으로 인하여 magnetic relaxation 효과나 Hall effect의 sign reversal 등 특이한 현상이 나타난다. 또한 이러한 특이한 수송 현상은 시료 내의 불순물 또는 불완전성 등에 의하여 많은 영향을 받을 것으로 생각되어 본 연구에서는 산소 함유량에 따른 Hall effect, 단결정 시료의 자기적 특성, 기하학적 모양을 지닌 시료에서의 magnetic relaxation 효과 등을 조사하였다. 아울러 flux dynamics를 조사하기 위하여 MFM의 제작을 시도한 것은 이미 위에서 언급하였다. 특히 최근 개발된 borocarbide 계열 초전도체의 magnetic 성질을 조사하여 초전도성과 antiferromagnetic ordering과의 관계를 확인 하였다.

이러한 고온 초전도체의 수송 특성을 조사한 결과를 요약하면 다음과 같다.

- ▷ Zn doped된 YBCO single crystal 성장
- ▷ YBCO 박막의 초전도 전이구간에서 Hall 효과를 측정
 - : 임계점 부근에서 Hall 전압 부호 변화
 - : 산소가 결핍된 YBCO 박막에서 Hall 전압 부호변화 사라짐
- ▷ Quaternary borocarbide 초전도체 기본 물리량의 자기적 측정
- ▷ 고온초전도체의 광학적 성질을 측정하기 위하여 적외선 분광기 제작
- ▷ 고온초전도체의 에니온 모형이 만족하는 분수적 통계역학을 베리의 위

상으로 기술할 수 있음을 밝혀냄. (고온초전도체, C60 fullerene)

- ▷ 밀접 결합 근사를 이용하여 간단한 물질의 유전함수 행렬을 계산함
: 고온초전도체에 적용을 위하여 DIIS 프로그램 수정 완료.

제 2 장 dc SQUID 와 조셉슨 접합 Array

제 1 절 Step-edge형 dc SQUID의 제작과 특성

본 연구에서는 전년도 연구를 토대로 양질의 박막을 이용하여 인공적인 GB(grain boundary)를 갖는 단일층 구조의 조셉슨 접합을 제작하여 SQUID를 만들었다.

고온초전도체는 coherence length가 매우 짧고 이방성을 가지고 있기 때문에 tunnel barrier 방식의 접합제작이 매우 어려워 고온초전도 조셉슨 접합은 epi 박막에 인공적인 GB를 만들어 접합을 제작하는 방법이 주류를 이루고 있다. 대표적인 인공 GB 접합으로는 bi-crystal 접합⁽¹⁾, bi-epitaxial 접합⁽²⁾, step edge 접합⁽³⁾ 등이 있다. 이러한 인공적인 GB는 각기 그 미세구조가 다를 뿐 아니라 조셉슨 현상을 보이는 기본적 mechanism조차 아직까지는 분명히 밝혀지지 않은 실정이다.

대표적인 몇 가지의 접합에 대해 조금 자세히 살펴보면 먼저 bi-crystal을 이용한 GB 접합은, 평면으로 10~45° 만큼 결정축이 어긋나는 (100) SrTiO₃ 결정 두개를 붙여서 만든 기판 위에 c축이 기판에 수직인 YBCO 박막을 증착하면 이 bi-crystal line을 따라서 θ 의 misorientation을 갖는 GB가 형성되고 적당한 선폭의 bridge로 박막을 식각하여 원하는 조셉슨 접합을 만들 수 있다. Bi-crystal 접합은 현재까지 개발된 가장 성공적인 고온초전도 조셉슨 접합의 하나로 θ 값을 조절함에 따라 접합의 결합세기를 조절할 수 있는 장점이 있으나, 기판에 접합이 형성되는 위치가 고정되므로 많은 접합이 필요한 소자의 경우나 다층 박막에는 적합하지 않은 방법이다. 반면 bi-epitaxy 방법은 기판 위의 일부분에 적당한 격자상수를 갖

는 물질을 epi 성장시켜 이를 seed layer로 이용하고 그 위에 알맞은 결정상수를 갖는 buffer layer를 성장시키면 seed layer가 있는 곳과 없는 곳의 결정축의 방향이 45° 만큼 차이가 나게 된다. 그 위에 성장시킨 YBCO 박막은 그 경계선을 중심으로 45° GB를 형성하게 되므로 이를 weak-link로 이용한다는 방법이다. 이 방법은 원하는 위치에 원하는 개수의 접합을 만들 수 있는 장점이 있으나 다양한 물질을 연속적으로 epi 성장시켜야 하는 기술적인 어려움과 함께 GB의 각도가 45° 로 고정되어 접합의 세기가 상당히 약하다는 단점이 있다.

Step-edge 접합은 기판 상에 45° 이상의 예리한 step을 만들고 그 위에 YBCO 박막을 step높이 이하로 증착하면, 박막이 각 면에 c축이 수직으로 성장하여 step의 상하에는 두개의 90° GB가 생기게 되어 조셉슨 효과를 보이게 된다. 단 이러한 90° GB는 bicrystal이나 bi-epitaxy 방법과는 다른 성질을 보이는 GB이다. Step-edge 방법은 기판상의 원하는 곳에 접합을 위치시킬 수 있다는 장점이 있고 single layer process로서 비교적 방법이 간단하여, 다단계 공정에 의한 초전도 박막의 특성 변화 등을 피할 수 있는 장점이 있다. 또한 접합의 세기를 step의 각도로 조절할 수 있는 가능성이 있기도 하나, 현재까지의 결과로 보면 재현성이 있는 예리하고 평탄한 step을 만드는 것이 용이하지 않다는 단점이 있다. 이 방법으로도 역시 우수한 소자가 제작되고 있으며, 본 연구의 접합 array 등과 같이 하나의 기판 위에 많은 개수의 조셉슨 접합을 형성하는 경우 유리한 방법이라 하겠다.

이러한 GB를 이용하는 방법 외에도 coherence length가 긴 a - b 평면 방향을 이용하여 조셉슨 접합을 제작하려는 노력이 있는데, 대부분은 SNS 형태의 접합이 시도되었다. 이러한 접합은, N-layer 물질로 금·은 등의 귀금속을 쓰거나, PBCO, Nb-doped SrTiO₃ 등 YBCO와 구조가 비슷한 물질을 써서 edge type으로 접합을 만드는 방법이 있고 드물게는 a 축 sandwich 접합을 시도하기도 한다. 이러한 방

법은 제작의 어려움으로 몇몇 연구팀에 의해서만 깊이 연구되고 있으며 특히 적절한 N-layer 물질을 찾는 것이 중요한 문제로 $\text{CaRuO}_3^{(4)}$, $\text{SrRuO}_3^{(5)}$, $\text{La}_2\text{NiO}_4^{(6)}$ 등의 새로운 물질의 사용으로 접합의 성질이 크게 개선되었다는 결과가 보고되어 있다. 또한 상전도 물질과 초전도 물질 사이의 계면의 성질을 밝히려는 노력들이 보고되어 있다.

인공적인 GB접합인 step-edge 접합을 제작하기 위하여 가장 중요한 변수는 날카롭고 균일한 step-edge의 제작이다. 왜냐하면 c 축이 기판에 수직하게 YBCO 박막을 epi 성장시킬 때, step-edge에서 step의 높이와 각도에 따라 GB가 다르게 형성되는 것이 알려져 있기 때문이다. Step의 각도가 60° 이상인 경우 기판의 step에 증착되는 박막은 단일 grain을 형성하여 step의 아래 위 부분에 GB를 형성하지만, step의 각도가 45° 부근인 경우 step 부분에 여러 grain이 형성되어 여러 개의 GB가 생긴다. 반면 step의 각도가 30° 이하이면 GB가 생기지 않음이 밝혀졌다. 본 연구에서는 Ar ion-milling을 이용하여 STO 기판에 step을 제작하였으며, 반도체 공정의 사진식각 방법을 응용하여 형성하였다.

1. Step-edge 조셉슨 접합 제작과 미세 패턴 공정 개선

사진식각 공정은 원하는 소자의 형태로 초전도 박막을 patterning하는 작업으로, 대개 마스크를 이용하여 PR(photoresistor)를 자외선으로 감광시켜 PR mask를 얻은 후 박막을 깎아 내거나, 혹은 PR mask 위에 박막을 증착한 뒤 필요 없는 부분을 제거하는 방법이다. 사진식각 공정은 예리한 step의 식각과 YBCO 박막을 device형태로 pattern하는 작업, 그리고 전기접점을 위한 Au의 evaporation 과정 등에 반드시 필요한 공정이다.

기존의 반도체나 저온초전도체에서는 사진식각 공정에 대한 충분한 연구와 개

발이 진행되어 광학적인 방법으로 선폭 1 μm 이하까지의 공정이 이미 확립되었고, 전자빔이나 X선을 이용한 극미세 구조의 공정도 활발히 연구되고 있다. 기존의 반도체 공정을 바탕으로 한 고온초전도 박막의 사진식각 작업은 최근 활발히 연구되어 왔으나 아직도 여러 가지 해결되어야 할 문제가 남아있다. 예를 들면 물을 용제나 세척제로 사용하는 화학 물질과 고온초전도체간의 수화반응, 미세 pattern 에도 영향이 없는 적절한 식각액이 없는 것, RIE(Reactive Ion Etching)에 사용될 반응성이 좋은 적절한 가스가 없는 것 등이다. 그러나, 꾸준한 연구와 박막의 질이 향상됨에 따라 이러한 문제들은 부분적으로 해결되어가고 있으며, 선폭 1 μm 이하의 공정도 일부 이루어지고 있다.

본 연구에서는 Cr coated quartz mask와 Az 계열의 PR을 이용하여 PR mask를 만들고 Ar ion beam을 이용한 건식 식각 방법을 사용하여 step을 제작하고 박막을 소자형태로 식각하였다. 전기접점의 경우는 먼저 PR mask를 만들고 그 위에 Au를 증착한 뒤 필요 없는 부분을 PR을 녹이면서 제거하는 lift-off 방법을 사용하였다. 이 절에서는 본 연구에서 개선된 고온초전도체 lithography방법과 ion milling에 의한 식각방법을 단계별로 정리·기술한다.

박막 표면에 먼지나 오염물질이 묻어 있으면 PR coating시 부분적으로 두께가 변하거나 PR과 반응하여 그 부분이 현상되지 않는 경우가 있으므로 사진식각작업 전에 실험실에서 아세톤과 에탄올로 세척하고 PR coating 직전에 청정실 내에서 다시 세척을 행하였다. epi 성장한 박막의 경우 아세톤 등의 화학약품에 의한 손상은 관측되지 않았다.

세척이 끝난 시료는 spinner를 사용해서 PR coating을 하였다. PR은 positive type인 Hoechst의 Az계열 제품을 사용하였으며 식각공정시에는 Az1512를, lift-off의 경우에는 Az1518을 사용하였다. Spinner의 회전수는 저속인 350 rpm 에서 4

초, 고속인 4300 rpm 에서 35초를 회전시켰으며 이때 PR 의 두께는 각각 1.2 μm , 1.8 μm 정도가 된다. Coating이 끝난 후 90~95 $^{\circ}\text{C}$ 에서 25분 정도 soft bake하여 PR의 용제를 증발시켰다.

노광에 사용한 Mask는 반도체 공동연구소와 KAIST의 E-beam lithography 장비를 활용하여 석영(quartz)에 크롬(Cr)이 입혀진 상용의 mask를 제작하였다. 본 연구에서 사용한 반도체 공동연구소의 수동식 Aligner의 자외선 광원은 수은 램프를 filter 없이 썼으며, 조도는 6 mW/cm^2 였다. 정확한 노광 시간은 원하는 소자 형태와 PR의 모서리 형태를 얻는데 매우 중요한 변수이며, 위의 Aligner를 사용할 경우 적정 노광시간은 15초로 조사되었다.

노광된 박막의 현상에는 Az 500 MIF 현상액을 희석하지 않고 그대로 사용하였으며 현상 시간은 Az 1512의 경우 16~18초, Az 1518의 경우 18초 정도로 하였다. 전기접점을 위한 lift-off pattern의 경우에는 PR의 under-cut 구조를 만들기 위하여 PR을 노광한 후 현상 전에 3~5분간 MCB(monochlorobezene, CH_2Cl)에 담그는 과정을 거쳤으며 이 경우 현상시간은 79~90초로 길게 하였다. 일반적인 반도체 공정에서는 현상 후 PR을 열경화시키는 hard bake공정을 118 $^{\circ}\text{C}$ 에서 30분 정도 거치지만 본 실험에서 사용된 Ion beam을 이용한 건식 식각의 경우 식각도중 PR이 경화되어 제거되지 않는 경우를 막기 위하여 대개의 경우 생략하였다.

식각에 사용된 ion milling system은 상용의 3cm ion gun(Ion-tech co.)과 power supply(MPS 300 FC, Ion-tech co.)로 이루어져 있다. Ion gun은 두개의 grid를 갖는 저에너지 Kauffmann type으로 Ar 가스를 사용하였으며, 진공도는 바탕압력 2×10^{-6} torr 이하, milling시 압력은 $1.1 \times 10^{-4} \sim 1.2 \times 10^{-4}$ torr 였다. 기판 홀더는 ion gun에서 8 cm 떨어져 있으며, 물로 냉각되고 각도를 조절할 수 있도록 되어 있다. 400V의 beam voltage로 ion milling 할 경우 식각률은 기판이 beam에

수직일 경우 각각 130 Å/min (STO 기판), 380 Å/min (YBCO), 230 Å/min (PR) 가량 되었으며, 본 연구에서 step을 만드는 경우인 70° 각도로 식각하는 경우 STO 기판의 식각률은 280 Å/min 이었다. 이러한 조건으로 식각해낸 YBCO 박막의 경우 2 μm 선폭까지 박막의 특성변화 없이 재현성 있는 선폭을 얻어낼 수 있었다.

식각을 통해서 pattern이 만들어진 후 PR은 아세톤을 사용하여 제거하였다. Ion milling으로 기판에 step을 식각하는 경우 오랜 milling시간으로 인해 PR이 변성되어 얇게 남는 경우가 있다. 이러한 경우 남아있는 PR 잔유물(residue)은 유기 용제와 초음파 세척기를 이용 장시간 세척하더라도 완전히 제거되지 않아 현미경으로 관찰시 미묘한 기판의 색깔 차이를 관찰할 수 있으며, 그 위에 박막을 입힐 경우 표면이 거칠고 outgrowth가 보이기도 하였다. 이러한 경우 PR 잔유물의 제거에는 산소 플라즈마를 이용한 ashing 방법이 효과적인 것으로 알려져 있으나, 본 실험에서는 그 대신에 PR 제거 후 step 식각 조건과 동일한 조건 또는 수직 방향으로 30초~1분 정도 Ion-milling을 하여 잔유물을 제거하였다. 이렇게 하여 PR 잔유물이 제거된 표면에 입힌 YBCO 박막은 아무런 처리도 하기 전의 기판에 입힌 박막과 마찬가지로 매끈한 표면과 좋은 특성을 보였다.

YBCO 박막은 step이 형성된 기판 위에 dc magnetron 스퍼터링 방법으로 기판 온도 720 °C 정도에서 증착하였으며, 박막의 임계온도는 88~90 K 정도, step이 아닌 부분에서 임계전류밀도는 77K 에서 3×10^6 A/cm² 이상으로 좋은 특성을 보였다.

Ohmic contact을 보이는 electric contact pad의 제작을 위해 본 연구에서는 metal mask나 PR lift-off mask를 이용하여 Au를 thermal evaporator로 수천 Å 정도 증착하고 증착 후 450~500 °C 산소 분위기에서 1시간 가량 열처리하였다. 또 점점 저항이 반드시 작아야 할 경우 YBCO 박막 표면의 dead layer를 제거하기

위하여 lithography 작업 후 Au를 증착하기 직전에 400V Ar ion milling을 30초 가량 실시하였다. 이렇게 제작된 접점의 경우 대표적 접점저항은 77K에서 0.5 ohm 이하였으며 온도를 내리면 선형적으로 감소하는 ohmic contact의 특성을 보였다. 완성된 소자는 PCB board에 부착하여 소자 특성의 측정을 위한 전기접점을 연결하였다. 전기접점은 LG 전자기술원의 ultrasonic wire wedge bonder를 이용하여 직경 1.25 mil Al wire를 연결하여 사용하였다.

2. 고온초전도 step-edge dc SQUID의 특성 분석

본 연구에서는 고온초전도체 step-edge dc SQUID의 여러 가지 디자인 변수에 대하여 액체질소 온도에서 최적화 되도록 고려하였다. 첫째 접합의 I-V 특성에서 hysteresis가 없으려면 McCumber number β_c 가 1보다 작아야한다. 고온초전도체 GB 접합의 정전용량 C는 대개 1 pF 정도로 알려져 있으므로,⁽⁷⁾ 이 값을 대입하면 I_0 를 μA , R_n 을 Ω 의 단위로 각각 쓸 때 $I_0 R_n^2$ 의 값은 330보다 작아야 한다. 즉 접합의 저항 R_n 이 1 Ω 인 경우 I_0 가 330 μA 를 넘으면 I-V 특성에서 이력이 나타나게 된다. 다음으로 접합이 작동하는 온도에서 위상의 결맞음을 유지하기 위하여서는 γ 가 10보다 커야 하므로 액체질소온도 77 K에서 각 접합의 임계전류 I_0 가 16 μA 이상이어야 한다. 다음으로는 SQUID 링에 의한 열 자속 잡음 $\langle \Phi_N^2 \rangle^{1/2} = (k_B T L)^{1/2}$ 이 Φ_0 보다 훨씬 작아야 SQUID가 동작하게 되는데 컴퓨터 시뮬레이션 결과⁽²⁹⁾에 따르면 이 조건은 다음과 같이 주어지며 따라서 따라서 액체질소온도 77 K에서 SQUID의 인덕턴스 L은 800 pH보다 작아야 한다.

$$L \leq \phi_0^2 / 5 k_B T \quad (2-1-1)$$

우리가 제작한 washer 형태의 SQUID에서 인덕턴스 L은 hole과 slit, 그리고 접

합에 의한 인덕턴스들의 합 $L = L_h + L_{slit} + L_j$ 로 주어진다. 이때 hole과 washer의 한 변의 길이를 각각 d 와 w 라 하면 각 항들은 다음 식과 같이 계산된다.^(8,9)

$$\begin{aligned} L_h &= 1.25 \mu_0 d \quad (w > 3d) \\ L_{slit} &= 0.35 x_1 \text{ pH}/\mu\text{m} \quad (0 \leq x_1 \leq 1) \\ L_j &= \hbar / 2eI_0 \end{aligned} \tag{2-1-2}$$

이를 이용하면 정사각형 washer의 한 변의 길이 w 가 hole의 한 변의 크기 d 의 3배 이상인 경우 d 는 $500 \mu\text{m}$ 보다 작아야 한다. w 의 크기가 d 의 3배 이상인 경우는 hole에 의한 인덕턴스 L 은 일정한 값을 갖지만 slit에 의한 인덕턴스는 w 의 증가에 따라 계속 증가하므로 초전도체 ground plane이 없는 고온초전도체 dc SQUID의 제작시는 이점을 반드시 고려해야 한다. 한편 w 의 크기가 d 의 3배 이하인 경우는 hole에 의한 인덕턴스 L 은 급격히 증가함을 유의해야 한다⁽⁸⁾. 또한 자속변화에 대한 전압변화가 최대가 되려면 screening 변수 $\beta \equiv 2LI_0/\Phi_0$ 가 1 가량의 값을 갖도록 해야 하며, 이는 SQUID의 인덕턴스 $L(\text{pH})$ 과 임계전류 $I_0(\mu\text{A})$ 의 곱이 1000쯤 되는 것이 적합함을 나타낸다.

접합의 임계전류는 특히 온도에 따라 변화 심한 양이므로 모든 온도에서 만족되는 최적의 dc SQUID를 제작하는 것은 불가능하므로 본 연구에서는 액체질소 온도에서 작동하는 dc SQUID를 목표로 여러 가지 변수를 설계하였다. 설계된 SQUID는 정사각형의 washer type으로 크기 $120 \times 120 \mu\text{m}^2 \sim 240 \times 240 \mu\text{m}^2$ 의 washer와 $20 \times 20 \mu\text{m}^2 \sim 40 \times 40 \mu\text{m}^2$ 의 hole에 길이 $100 \mu\text{m}$, 폭 $5 \mu\text{m}$ 가량의 slit으로 이루어져 있으며 slit의 인덕턴스를 포함한 SQUID의 인덕턴스는 $60 \sim 110 \text{ pH}$ 가량 되었다. 또한 접합의 너비는 본 연구진에서 가장 좋은 결과를 얻은 $4 \mu\text{m} \sim 6$

μm 폭의 bridge를 사용하였다.

제작된 dc SQUID의 I-V 특성곡선은 RSJ 형태의 특성을 보여주며, 온도가 내려감에 따라 그 특성이 더욱 확연해짐을 볼 수 있다. 그러나 저온에서는 전류-전압 특성의 hysteresis를 관찰할 수 있었는데 이는 β_c 가 1보다 커져서 나타나는 것으로 판단된다. 예를 들어 두 접합의 평균저항 R_n 이 2.2Ω 가량인 시료의 경우 접합당 임계전류 I_0 가 $70 \mu\text{A}$ 를 넘을 경우 이력이 나타날 것으로 추정되므로 대략 I_0 가 $200 \mu\text{A}$ 이상 되는 온도에서 이력이 일어나는 것을 추정할 수 있다. 또한 전류의 방향에 따라 비대칭적인 I-V 특성이 나타나기도 하였는데 이러한 특성은 두 접합의 임계전류와 저항이 일치하지 않는데서 기인하거나, 하나의 접합도 여러 개의 접합들과 저항들이 병렬로 연결되어 있는 것으로 보고된⁽¹⁰⁾ 고온초전도체 GB 접합의 특성으로 추정된다. 한편 측정시 stray 인덕턴스나 정전용량이 존재하게 되고 이러한 영향으로 이력이 나타나기도 하나, 이럴 경우 I-V가 대칭적일 뿐만 아니라 전류값의 최대치를 기준으로 이러한 현상이 보이고, 측정 주파수에 따라 심한 변화를 보이게 되는데, 본 연구에서의 hysteresis 측정에서는 주파수에 따른 변화는 없었다.

그림 2-1-1은 hole의 크기가 $15 \times 15 \mu\text{m}^2$ 인 인덕턴스 42 pH SQUID의 $V-\Phi$ 특성을 보여주고 있다. 작은 자기장에 대해서는 $20 \mu\text{V}$ 가 넘는 약 20 mG의 주기적인 진폭을 보여주지만, 1 G 정도의 큰 자기장을 sweep하는 경우 부분적으로 진폭의 감소가 두드러지게 나타나서 $1 \mu\text{V}$ 까지 진폭이 줄고 주기 1.3 G 가량의 새로운 주기를 관찰할 수 있다. 이 SQUID의 접합의 폭은 $5 \mu\text{m}$ 로서 접합 자체에서의 flux focusing 효과를 고려하면 접합에 임계전류의 주기는 1.5 G 정도로 계산된다.⁽¹¹⁾ 따라서 SQUID 자체의 주기 외에 나타나는 주기는 접합을 통과하는 자속에 의한 효과로 이해할 수 있으며, 효과적인 SQUID를 이용하기 위해서는 FLL에서

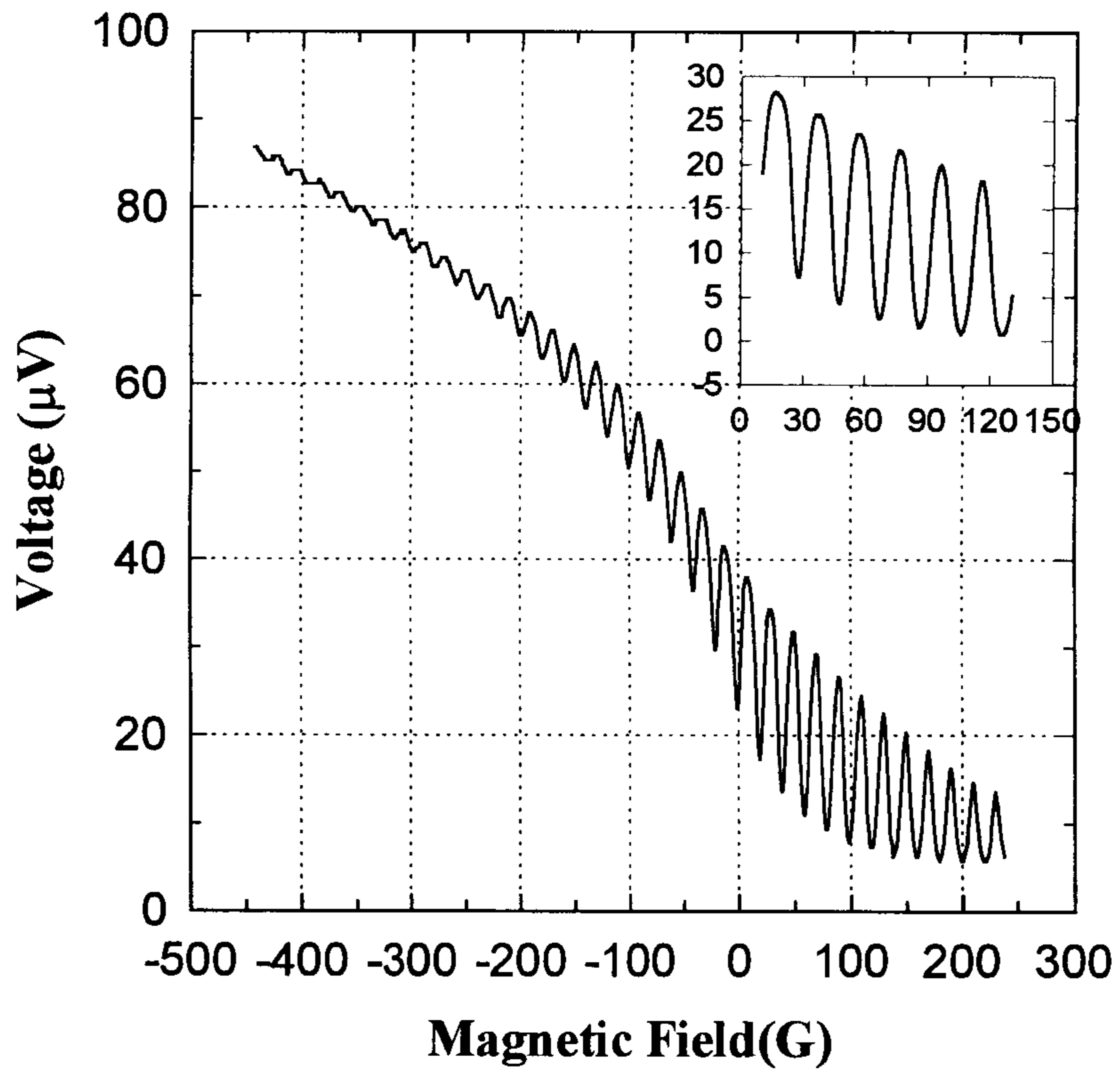


그림 2-1-1. Hole의 크기가 $15 \times 15 \mu\text{m}^2$ ($L = 42 \text{ pH}$)인 SQUID 의 $V-\phi$ 특성
 ($T = 45 \text{ K}$) Inset은 작은 자기장에서의 modulation

null detector로 사용해야 함을 보여준다 하겠다.

dc SQUID에 대하여 온도의 변화에 따른 자속-전압 특성을 측정한 결과 정현파 형태의 자속-전압 특성은 최대 86 K까지 관찰되었으며, 최적의 바이어스 전류에서 온도에 따른 자속-전압 특성의 진폭은 온도가 내려감에 따라 증가하여 10 K에서는 17 μ V까지를 보였다. 여기서 특이할 만한 점은 그림 2-1-2에 나타난 것처럼 자속 양자 Φ_0 에 해당하는 자지장의 값이 측정오차 범위 내에서 370 nT로 일정하게 나타났다는 점이며, 이는 박막의 임계온도 바로 이하부터 저온까지 washer에 의한 flux focus factor가 일정하다는 것을 의미한다. Washer를 이루는 초전도 박막에 구멍이나 weak-link등이 존재하여 자속의 침투가 일어나고, 온도에 따라 침투의 정도의 변화가 일어날 경우 flux focus factor는 온도의존성을 가지게 되고 SQUID의 주기는 변화하게 된다. 따라서 이 dc SQUID는 우수한 성질의 박막으로 된 washer로 이루어져 있으며, 접합 부분만이 인공적인 weak-link로 이루어져 있다는 것을 알 수 있다.

저온으로 내려감에 따라 관측되는 진폭의 증가는 screening 변수 $\beta \equiv 2LI_0/\Phi_0$ 와 ΔI 의 관계를 이용하여 살펴볼 수 있는데 $L=100$ pH 정도인 SQUID에 대해서 77 K에서 β 값은 1.5 정도로 온도가 내려감에 따라 증가하게 된다. 전압의 변조 진폭을 $\Delta V = \Delta I \times R_n / 2$ 으로 쓰면 다음의 식을 얻을 수 있다.

$$\Delta V \approx I_0 R_n / [1 + (2LI_0/\Phi_0)] \quad (2-1-3)$$

이 식에서 SQUID의 인덕턴스 L 과 저항 R_n 이 온도에 변화와 무관한 값이라고 가정하면 ΔV 는 I_0 만의 함수가 되며, 우리의 SQUID의 인덕턴스 값 100 pH와 평균 R_n 2.2 Ω 을 넣고 식 (2-1-3)을 그려보면 다음의 그림 2-1-3이 된다.

그림에서 보듯이 임계전류의 증가에 따라 진폭의 증가가 관측되며, 임계온도 값

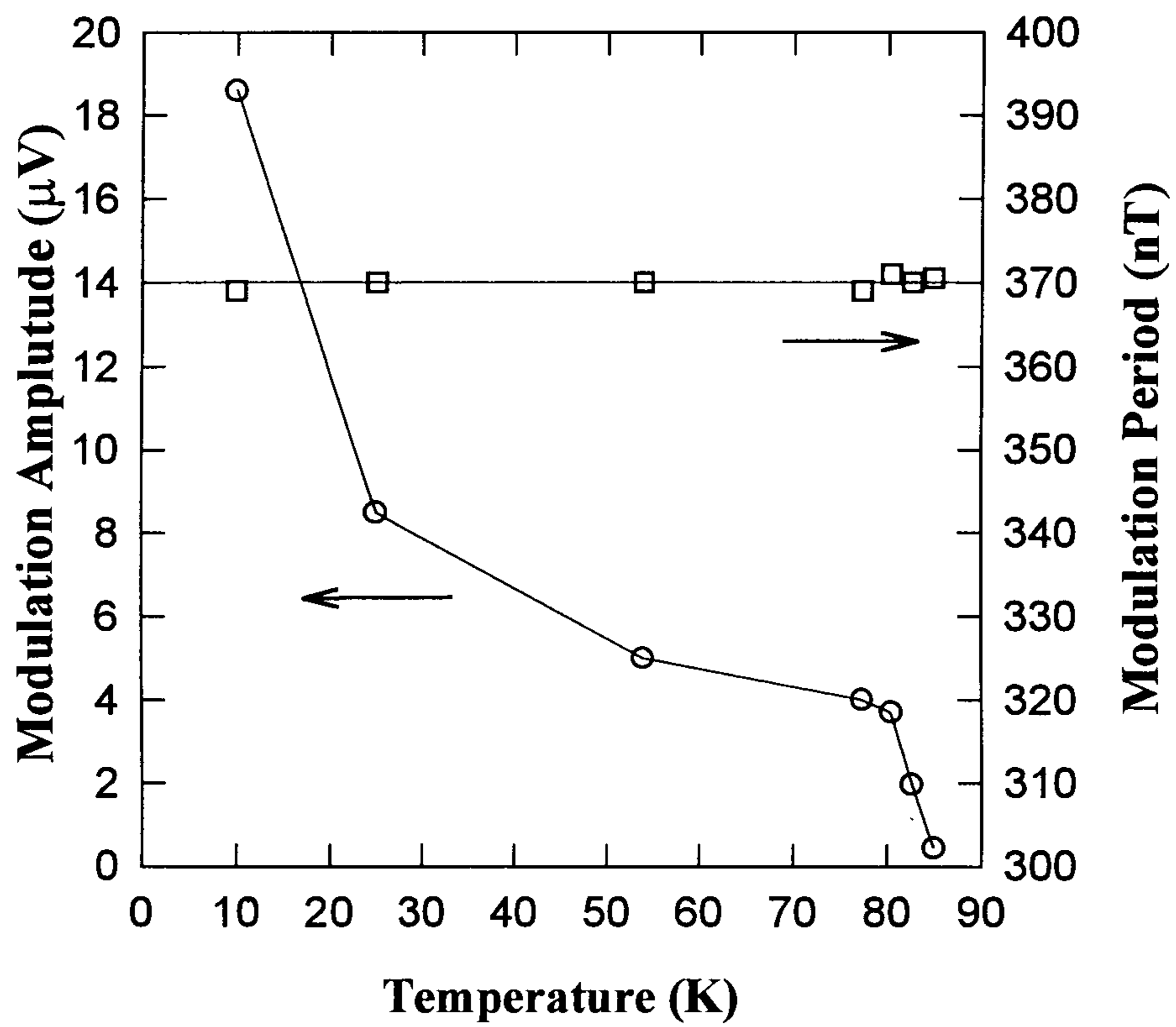


그림 2-1-2. Step-edge dc SQUID의 자속-전압 특성에서의 진폭 V_{pp} 과 주기
의 온도 의존성.

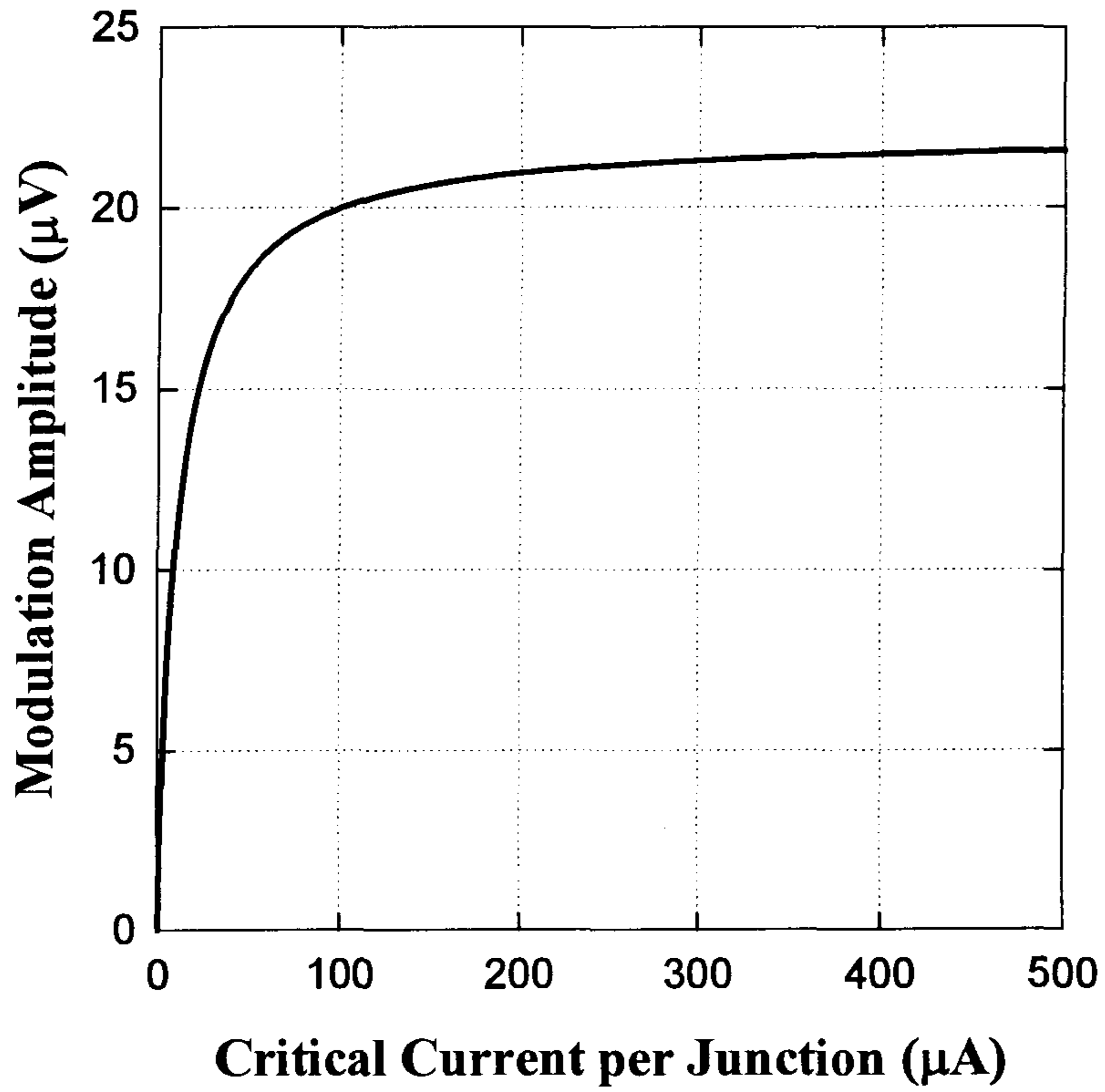


그림 2-1-3. 이론적으로 계산된 최대진폭 V_{pp} 의 임계전류 의존성

이 작은 부분에서는 진폭의 변화가 심하지만 큰 부근에서의 변화율은 다소 둔화된다. 제작한 SQUID에서 실제로 측정된 진폭의 온도에 따른 변화를 보면 그림 2-1-2와 같이 온도가 감소함에 따라 임계전류가 증가에 따른 진폭의 증가가 관측된다. 그러나 25 K와 54 K에서 진폭의 감소가 급격히 둔화되다가 10 K에서 다시 진폭의 큰 증가를 보여주고 있어서 그림 2-1-3과는 큰 차이를 보인다. 물론 식 (2-1-3)은 많은 근사가 있어서 β 가 1 부근인 터널 접합에 대해서만 정량적으로 적용이 가능하지만, 이런 큰 차이를 보이는 주요한 원인은 SQUID에 trap된 자속의 점프에 의한 것으로 추정된다. 왜냐하면 60 K이하에서는 자속-전압 특성도중 transient한 진폭의 변화를 오실로스코프 상에서 관측할 수 있었고 따라서 최대 진폭인 점에서의 결과를 재현성 있게 얻기가 어려웠다. 특히 FLL에서 측정할 때 이 온도구간에서는 오실로스코프의 시간-전압 mode에서 telegraph 형태의 잡음을 관찰하였는데 이러한 잡음의 요인이 접합에서의 자속 점프로 알려져 있으나⁽¹²⁾ 온도에 따른 접합에서의 자속 점프의 원인은 불분명하다. 그림 2-1-2에서 77 K와 10 K에서 측정된 전압의 변조진폭은 각각 4.2 μ V와 17 μ V로, 이 온도에서의 임계전류를 이용하여 식 (2-1-3)으로 계산한 이론치는 17 μ V와 23 μ V보다 다소 작은 값이다. 이는 그림 2-1-3에서도 추정할 수 있듯이 접합의 불완전성으로 인한 누설 (leakage) 전류가 있어서 실제로 접합에 흐르는 임계전류 I_0 는 훨씬 작다는 것을 의미한다고 볼 수 있다.

제 2 절 조셉슨 접합 Array의 제작과 특성 조사

조셉슨 접합 array는 2차원 XY model의 실제적인 구현이라고 할 수 있다. 2차원 XY model은 Kosterlitz-Thouless transition⁽¹³⁾이라는 상전이 현상을 보이는 계로서 통계역학적으로 많은 이론적 연구가 행해진 계이다. 조셉슨 접합 array는 이러한 이론적 결과들을 실험할 수 있는 실제적인 계로서 80년대 이후 저온초전도체를 이용하여 상당한 실험이 수행되었다⁽¹⁴⁾. 그러나 고온초전도체를 이용한 조셉슨 접합 array는 고온초전도체 조셉슨 접합을 만들기 어려운 까닭에 매우 일부에서만 시도되었으며, 아주 최근에만 의미 있는 결과들이 발표되기 시작하고 있다. 저온 초전도체를 이용한 접합 array에 대한 실험들은 거의 대부분 상전이 현상과 dynamic behavior에 관심을 두고 있었던 반면, 고온초전도체는 접합 array는 응용 측면에서 더 관심을 끌고 있다. 고온초전도체 조셉슨 접합 array는 고온초전도체 자체의 물성과 이를 이용한 조셉슨 접합의 물리적인 특성상 저온초전도체를 이용한 array와는 다른 특성들을 나타낼 것이 기대되고 있다. 또한 조셉슨 접합 array는 입상성질이 강한 고온초전도체 박막의 model system이며, 따라서 array의 특성을 조사함으로써 초전도 박막에서의 여러 현상들을 설명할 수 있는 이론적 실험적 기초를 마련할 수 있다. 아울러 고온초전도체를 이용한 집적소자의 제작에는 많은 수의 조셉슨 접합을 집적하는 기술이 필수적이며, 조셉슨 접합 array는 100 ~ 10000 개 이상의 접합이 함께 집적된 것이므로 접합 array의 제작공정은 조셉슨 집적소자의 제작에 기초 연구가 된다.

한편으로 조셉슨 접합 array는 그 자체로서 microwave 소자로서의 응용가능성이 있어 그 가능성에 대한 이론적, 실험적인 연구들이 발표되고 있다. 조셉슨 접

합에 microwave를 조여준 경우 접합의 I-V 특성곡선은 Shapiro step을 보임은 잘 알려져 있는데, 크기가 $N \times N$ 인 조셉슨 접합 array의 경우 array 내의 접합들이 phase locking 현상에 의해 단일 접합의 N 배의 voltage에 해당하는 Giant Shapiro step이 관찰된다. 또 array에 유리수 p/q 의 filling factor(단위 격자당 자속의 양)에 해당하는 자기장이 가해진 경우 fractional giant Shapiro step이 관찰되기도 한다. Phase locking 현상은 접합 array에서 coherent microwave radiation을 가능하게 하여 단일 접합에서보다 N^2 에 비례하는 크기의 microwave power를 얻을 수 있다. 더욱이 source로서의 조셉슨 array는 ac 조셉슨 효과에 의해 주파수를 변화시킬 수 있는 tunable source이며 최대 고온초전도체의 energy gap에 해당하는 THz 영역의 신호를 다룰 수 있는 방법으로 연구되고 있다⁽¹⁵⁻¹⁷⁾. 조셉슨 접합 array를 이용한 microwave source에 대한 연구는 시뮬레이션과 저온초전도체를 이용한 실험이 행해졌으나, 고온초전도체의 경우에는 접합 제작의 어려움 때문에 몇몇 그룹을 제외하고는 좋은 결과가 보고된 바 없으며, 특히 본 연구와 같은 2차원 array는 최근에 들어서야 array의 제작과 실험이 행해져 microwave radiation의 detection 및 그의 분석을 통해 array 내의 접합의 세기 분포를 분석하려는 시도가 보고되어 있다⁽¹⁸⁻²⁰⁾.

1. 조셉슨 접합 array의 디자인

이 절에서는 본 연구진의 조셉슨 접합 array 디자인과 mask의 제작에 대하여 기술한다.

사진식각공정용 마스크는 서울대학교내 반도체 공동연구소와 KAIST의 E-beam lithography 장비를 활용하여 석영(quartz)에 크롬(Cr)이 입혀진 4×4 inch² 크기의 상용의 mask를 제작하였다. 개개 소자의 기본적인 디자인은 사용하

는 기판의 크기에 맞추어 $10 \times 10 \text{ mm}^2$ 크기로 제작되었으며 사진식각공정에서 기판의 edge에 PR이 균일하게 입혀지지 않는 것을 고려하여 실질적인 소자는 $8 \times 8 \text{ mm}^2$ 크기 안에 모두 들어가도록 설계하였다. 각각의 chip은 기판의 step, YBCO pattern, gold contact pad의 3개의 layer로 구성되어 있으며, 하나의 mask상에 여러 가지 chip의 모든 layer를 함께 배치하고 Aligner의 움직임을 고려하여 미세한 패턴이 요구되는 chip의 경우에는 mask의 중앙에 놓이도록 하였다.

본 연구에서는 격자의 형태가 정사각형인 square lattice array 형태를 사용하였으며 Step-edge 형의 조셉슨 접합 array를 형성하기 위하여 체크보드 형태의 step pattern을 기판 위에 식각하고 그 위에 YBCO 박막 sputtering을 사용하여 입히고 mesh형태를 pattern하여 4방향으로 접합이 형성되도록 하였다. 그림 2-2-1은 step-edge 조셉슨 접합 array의 schematic diagram이다. 본 연구에서는 모두 3가지 종류의 접합 array chip이 디자인되었는데, 개개 소자의 일반적 디자인 특성에 대해서만 살펴보면 다음과 같다.

첫번째 array chip의 경우, 본 연구전에 의한 이전까지의 연구 결과에서 $4 \mu\text{m}$ 선폭에서 좋은 접합특성을 얻을 수 있었으므로 모든 접합의 폭을 $4 \mu\text{m}$ 으로 고정하였다. Array의 cell의 크기는 $10 \times 10 \mu\text{m}^2$, $20 \times 20 \mu\text{m}^2$, $40 \times 40 \mu\text{m}^2$ 로 변화시켰으며 초전도 island가 접합으로 연결된 형태와 island없이 line으로만 이루어진 두 가지 형태를 디자인하였다. Array의 크기는 10×10 , 10×100 , 100×10 , 100×100 으로 디자인하였으며 array의 양단에는 4단자법으로 측정할 수 있는 pad가 있다. 측정을 위한 전기접점용 pad와 각 array의 연결에 사용되는 선폭은 $40 \sim 100 \mu\text{m}$ 을 사용하였으며, contact pad는 $0.8 \times 0.8 \text{ mm}^2$ 의 크기로 28개의 pad를 chip의 사방에 균일간격으로 배치하였다. 자세한 디자인 변수들은 표2-2-1과 같다.

$4 \mu\text{m}$ 선폭의 접합의 경우 좋은 특성을 보이기는 하지만 77K 에서의 접합임계

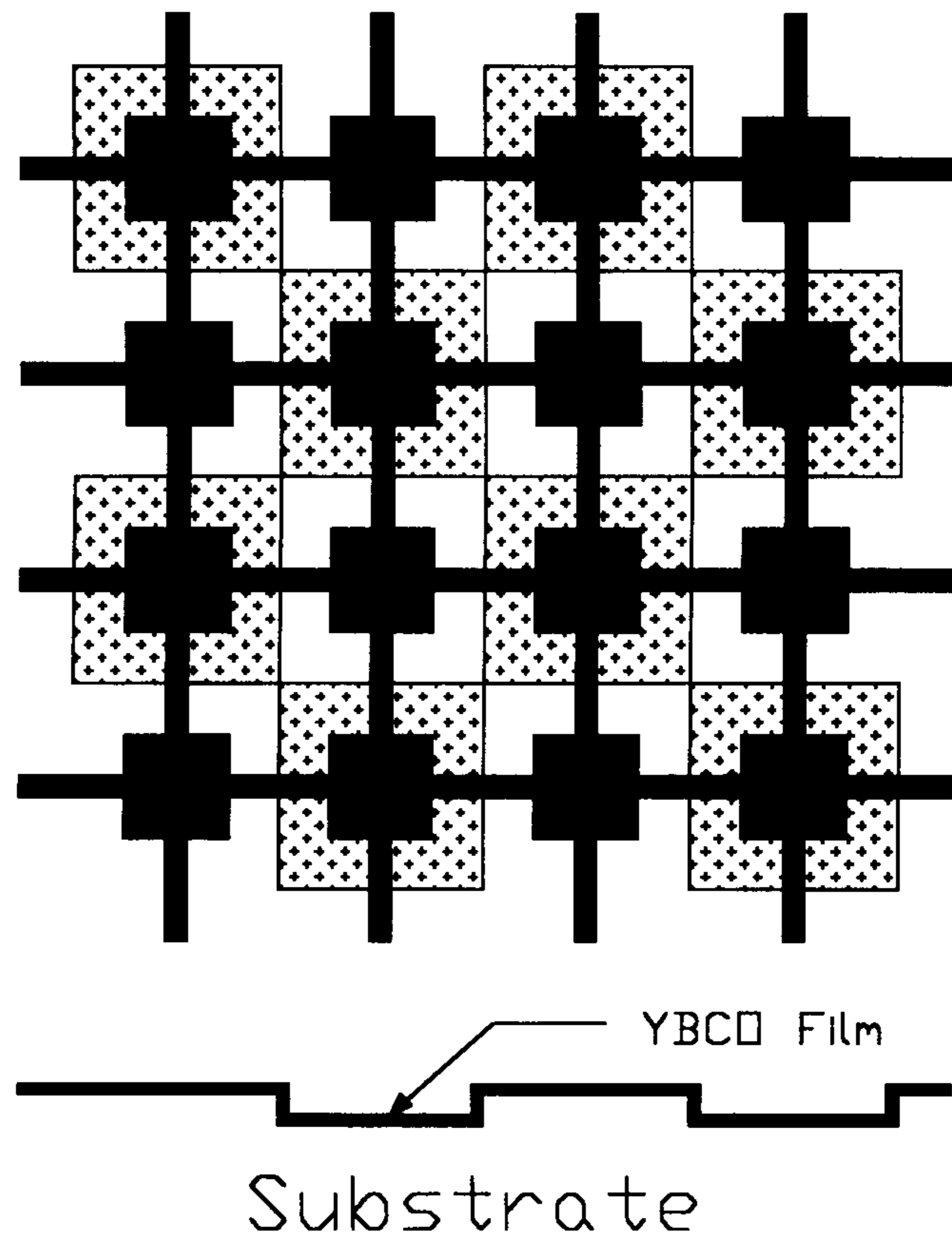


그림 2-2-1. Step-edge 조셉슨 접합 array의 schematic diagram. 칠해진 부분은 낮은 부분을 표시한 것이며, 체크보드 모양의 step에 YBCO 박막이 증착되어 4면에서 조셉슨 접합을 이루게 된다.

전류값이 0.1 mA에 달하고 온도를 내릴수록 선형적으로 증가하는 경향을 보이는데 10개 또는 100개 이상의 접합이 병렬연결되는 array에서는 array의 임계전류값이 너무 커져서 측정에 어려움이 있다. 따라서 두번째와 세번째 chip에서는 접합의 선폭을 2 μm 으로 고정하여 array의 임계전류값을 줄이도록 디자인하였다. 선폭이 좁을 경우는 R_n 값이 커져 측정이 용이한 측면과 microwave 특성 측정시 임계전류가 작아 작은 microwave power가 필요하다는 점도 고려되었다. Cell의 크기는 사진식각 작업시 align의 용이성 등을 고려하여 $20 \times 20 \mu\text{m}^2$ 으로 고정하였으며, 모든 array를 island 없이 line으로만 구성되도록 하였다. 이 chip에서는 대각선 방향으로 I-V 특성을 측정할 수 있는 diagonal array를 디자인하였으며, square array의 경우에는 4단자법 측정용 pad 외에 transverse voltage를 읽을 수 있는 pad를 연결하였다. 또한 접합의 이방성 정도와 임계전류의 분포를 가늠하기 위하여 각 방향으로의 series array를 디자인하였다. 세번째 chip은 microwave 특성을 측정하기 위하여 4단자법 측정 pad만 있는 20×20 크기의 array를 대칭적으로 4방향에 위치시키고, chip이 완성된 후 $5 \times 5 \text{ mm}^2$ 크기로 각각 잘라 따로 실험할 수 있도록 디자인하였다. 단 접합의 선폭 및 cell의 크기는 두번째 chip과 동일하다. 자세한 디자인 변수는 각각 표2-2-2 및 표2-2-3과 같다.

☒ 2-2-1. Design parameters for Array chip 1

| array ID | array size | junction width(μm) | unit cell size (μm^2) | island size (μm^2) |
|----------|------------|---------------------------------|------------------------------------|---------------------------------|
| #1 | 10×10 | 4 | 10×10 | none |
| #2 | 10×10 | | 20×20 | 12×12 |
| #3 | 10×10 | | 40×40 | 20×20 |
| #4 | 10×100 | | 20×20 | 12×12 |
| #5 | 100×10 | | 20×20 | 12×12 |
| #6 | 100×100 | | 10×10 | none |

☒ 2-2-2. Design parameters for Array chip 2

| array ID | array size | junction width(μm) | unit cell size (μm^2) | transverse voltage lead |
|----------|------------|---------------------------------|------------------------------------|-------------------------|
| #1 | 20×20 | 2 | 20×20 (no island) | 1 pair |
| #2 | 20×20 | | | diagonal array |
| #3 | 10×100 | | | 3 pairs |
| #4-#5 | 10×10 | | | none |
| #6-#9 | 1×20 | | | none |

☒ 2-2-3. Design parameters for Array chip 3

| array ID | array size | junction width(μm) | unit cell size (μm^2) | transverse voltage lead |
|----------|------------|---------------------------------|------------------------------------|-------------------------|
| MW | 20×20 | 2 | 20×20 (no island) | none |

2. 조셉슨 접합 array의 제작

본 연구에서는 고온초전도체인 YBCO 박막을 이용한 step-edge 형태의 조셉슨 접합을 이용하여 조셉슨 접합 array를 제작, 그 특성을 조사하였고, 제작 공정을 개선하였다.

Step-edge 형 조셉슨 접합은 기판의 임의의 위치에 접합을 형성시킬 수 있는 장점이 있어 한 기판 위에 수백~수만 개의 접합을 만들어야 하는 array 등의 소자 제작에 적합하다. 또한 제작 공정이 비교적 간단하고, 다른 특성도 좋은 편이므로 여러 분야에서의 응용이 시도되고 있다. 조셉슨 접합 array 는 통계적 관심 때문에 저온 초전도체를 이용하여 많은 연구가 이루어져 왔지만, 고온초전도체를 이용한 조셉슨 접합 array 는 외국에서도 몇몇 그룹을 제외하고는 좋은 결과가 보고된 바 없으며, 특히 본 연구와 같은 2 차원 array는 최근에야 결과들이 보고되고 있다.

Step-edge 조셉슨 접합은 기판상의 step에 형성되는 grain boundary를 이용하는 것으로서 접합의 특성이 step의 모양 및 각도에 의해 크게 좌우됨이 AFM 연구를 통해 밝혀진 바 있으므로, 예리한 step 의 형성이 가장 중요한 공정이 된다. 앞서 기술한 바와 같이 PR 을 사용한 체크보드 모양의 마스크에 400V/25mA Ar ion milling 을 이용하여 기판 상에 step을 만들었다. 이때 기판으로는 SrTiO₃ 과 LaAlO₃ 를 사용하였으며 Az1512 PR을 사용하였다. Step의 모양은 PR의 edge 모양과 ion-milling의 각도에 매우 민감하여 적정량의 노광 및 현상과 함께 좁은 영역의 적절한 milling 각도(70°)에서만 예리한 step 과 좋은 접합을 얻을 수 있었다.

접합 array의 경우 phase locking 현상이나 phase transition 현상을 관찰하기 위해서는 접합의 균일성이 가장 중요하며 본 연구에서 추구하는 step edge형 접합

의 경우 step의 각도와 표면상태가 접합의 uniformity에 가장 큰 변수로 생각되므로 균일한 step edge 형성을 위한 ion milling process가 필요하다. 기판에 수직인 ion beam을 사용하는 경우에는 예리한 각도의 step을 얻지 못하고 step angle이 30° 정도로 나타나서 접합 형성이 불안정하다. 특히 본 연구에서와 같은 접합 array의 경우나 한 기판 상에 여러 개의 접합이 형성되어야 하는 집적 소자의 경우에는 step이 4개 면에 균등하게 형성되어야 하므로 ion milling의 조건이 쉽지 않아, 여러 방법을 고안 시험하였으며, 기판면을 평면상에서 45° 회전시킨 후 ion beam을 70° 각도로 식각함으로써 4 면에 예리한 step을 얻을 수 있었으나 방향에 따라 step의 각도는 차이를 보여 array 내의 접합들은 이방성을 가지게 된다. 개개의 공정 후 step의 모양을 AFM으로 관찰하였으며 ion beam을 등지는 경우 step은 60° 이상의 예리한 각도를 가지고 ion beam을 마주보는 방향의 step은 45° 이상의 약간 무딘 step이 형성되어 이방성이 있음을 확인하였다. Ion beam을 마주보는 방향의 step이 무더지는 가장 큰 이유로는 PR의 식각률이 기판의 식각률에 비하여 두 배 가량 크기 때문에 기판보다 빠른 속도로 PR의 edge가 깎여 나가는데 기인한다고 생각된다. 따라서 더 단단한 masking 물질을 사용하거나 식각 전에 PR을 열적·화학적 방법으로 경화시키는 방법이 제안될 수 있는데, 이 경우 PR이 지나치게 경화되면 오히려 redeposition이 일어날 수 있으므로 적절한 정도로 경화시켜야 할 것이며 lift-off 때에 사용되는 MCB등에 의해 PR을 경화시키는 방법이 그 한가지로 제안될 수 있을 것이다. Step의 milling은 통상 400V beam으로 7~8분간 실시되었으며 만들어진 step의 높이는 2000 ~ 2500 Å 정도이다. 그림 2-2-2는 YBCO 박막을 입힌 뒤 완성된 array에서의 접합 부분의 AFM image이다.

AFM을 이용하여 식각된 step을 조사한 결과를 보면, step 부분의 각도가 위와

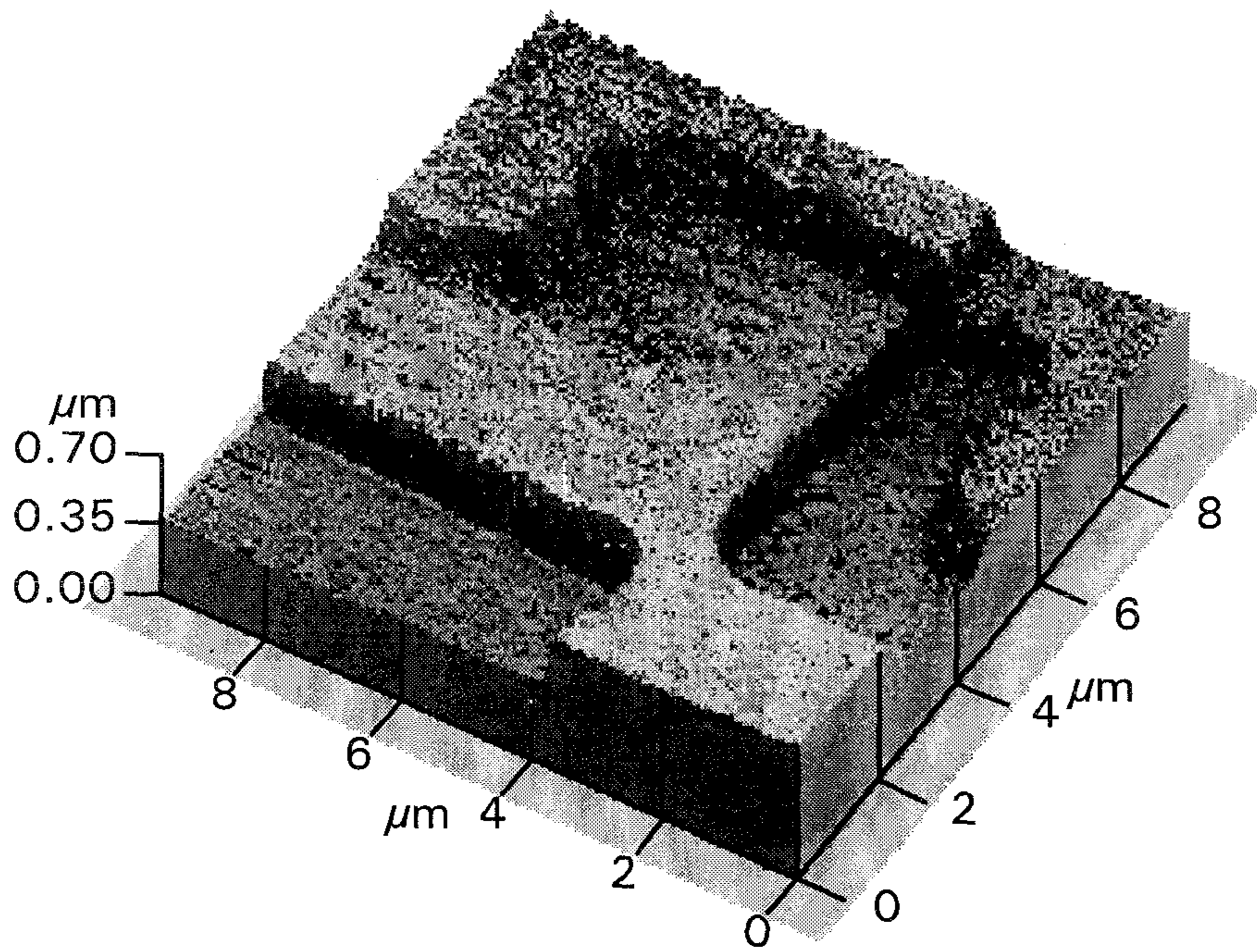


그림 2-2-2. 완성된 step-edge 조셉슨 접합 array에서 step 부분의 AFM image

같이 얻어졌을 뿐 아니라 milling된 면과 PR로 덮여져 있던 부분의 morphology가 거의 동일한 매끈한 면을 나타내었다. 그러나 그 위에 YBCO를 증착한 결과 PR이 덮여있던 면의 morphology가 대단히 나쁜 것이 관찰되었다. 따라서 유기용제에 의한 PR 제거 후 ion-milling을 같은 각도, 같은 조건에서 1분 미만으로 한번 더 시행한 결과 그 결과 step을 기준으로 위아래 면이 모두 우수한 morphology의 YBCO 박막이 성장됨을 AFM 으로 확인하였다.

형성된 step 위에는 dc Magnetron Sputtering 방법을 이용하여 step 높이의 70% 정도인 1300 ~ 1800 Å 두께의 YBCO 박막을 증착하였다. 제작된 박막은 통상 $T_c > 90 \text{ K}$, $J_c(77\text{K}) > 10^6 \text{ A/cm}^2$ 으로 좋은 특성을 보였으며, 이러한 특성은 모든 공정이 끝난 뒤에도 거의 나빠지지 않았음을 확인하였다.

입혀진 YBCO 박막에 PR mask 와 ion milling 을 이용하여 array pattern을 식각하였다. 이 때 array pattern 은 기판의 step pattern 과 1~2 μm 이내로 align 되어야 하므로 세심한 주의가 요구된다. 또 ion milling을 할 때에 부분적으로 박막의 온도가 높아져서 특성이 나빠질 우려가 있으므로, 냉각수를 충분히 흘려 박막을 식혀주었으며 thermal contact이 잘되도록 주의하였다. 전기접점은 Au를 lift-off 방식으로 evaporate한 뒤 산소 분위기에서 450°C에서 1시간 annealing 하였으며, PCB board에 Al wire ultrasonic wedge bonding을 하여 측정하였다.

본 연구진에서 이러한 공정을 이용하여 제작한 step-edge 단일접합의 경우 박막의 임계온도 바로 아래 ($\sim 85 \text{ K}$)에서부터 조셉슨 임계전류를 관찰할 수 있었으며 I-V 곡선의 형태는 약간의 excess current를 고려하면 이론적인 RSJ (Resistively Shunted Junction) 모형을 잘 따랐다.

3. 조셉슨 접합 array의 특성 조사

Array의 특성 측정은 dipping insert를 자체 제작하여 67l 액체헬륨 storage dewar에서 측정하였다. 온도의 조절은 sample의 액체 헬륨 표면에서의 높이로써 조절하였으며, thermocouple을 이용하여 온도를 읽었다. 일정한 높이에 고정된 경우 온도변화는 1/10 K 미만으로 수십분 이상 매우 안정된 온도를 유지하였다.

그림 2-2-3은 10×100 array의 온도에 따른 I-V 특성으로 RSJ (Resistively Shunted Junction) 형태의 특성을 보여주고 있다. 온도가 낮아짐에 따라 I_c 값은 증가하는데 반해 normal 상태의 기울기 R_n 은 변화하지 않음을 볼 수 있다. 또 77 K 근처에서는 thermal noise에 의해 뚜렷이 보이지 않던 RSJ 특성이 저온에서의 I-V 특성에서는 확실히 보이고 있다. 이상의 I-V 특성으로부터 접합 array가 잘 형성되었음을 알 수 있다.

그림 2-2-4는 단일 접합, 10×10 array, 10×100 array의 I_c 및 R_n 값의 온도에 따른 의존성이다. 단일접합의 값으로 normalize한 결과 I_c 값은 array의 크기에 관계없이 잘 일치함을 알 수 있으나 R_n 값은 약간의 분산을 보여주고 있다. 단일접합에서와 마찬가지로 I_c 값은 온도가 낮아짐에 따라 대략 선형적으로 증가하는데 반해 R_n 값은 온도에 무관하게 일정한 값을 보인다. 단일접합에서 온도에 따라 약간의 변화를 보이는 R_n 값이 array에서 접합의 수가 많아질수록 접합의 값이 평균되어 평탄한 온도의존성을 보여준다.

이 array에 수직방향으로 자기장을 가해준 결과 array의 I-V 특성 및 임계전류 I_c 값이 자기장에 민감하게 변화함을 알 수 있었다. 자기장에 따라 I_c 값이 크게 변화하는 것은 제작된 접합의 특성을 반영한다고 볼 수 있다.

접합 array는 수백~수만 개의 접합이 들어가게 되는데 접합들 사이의 phase locking 현상이나 array의 상전이 현상을 관찰하기 위해서는 array 내 접합들의 접

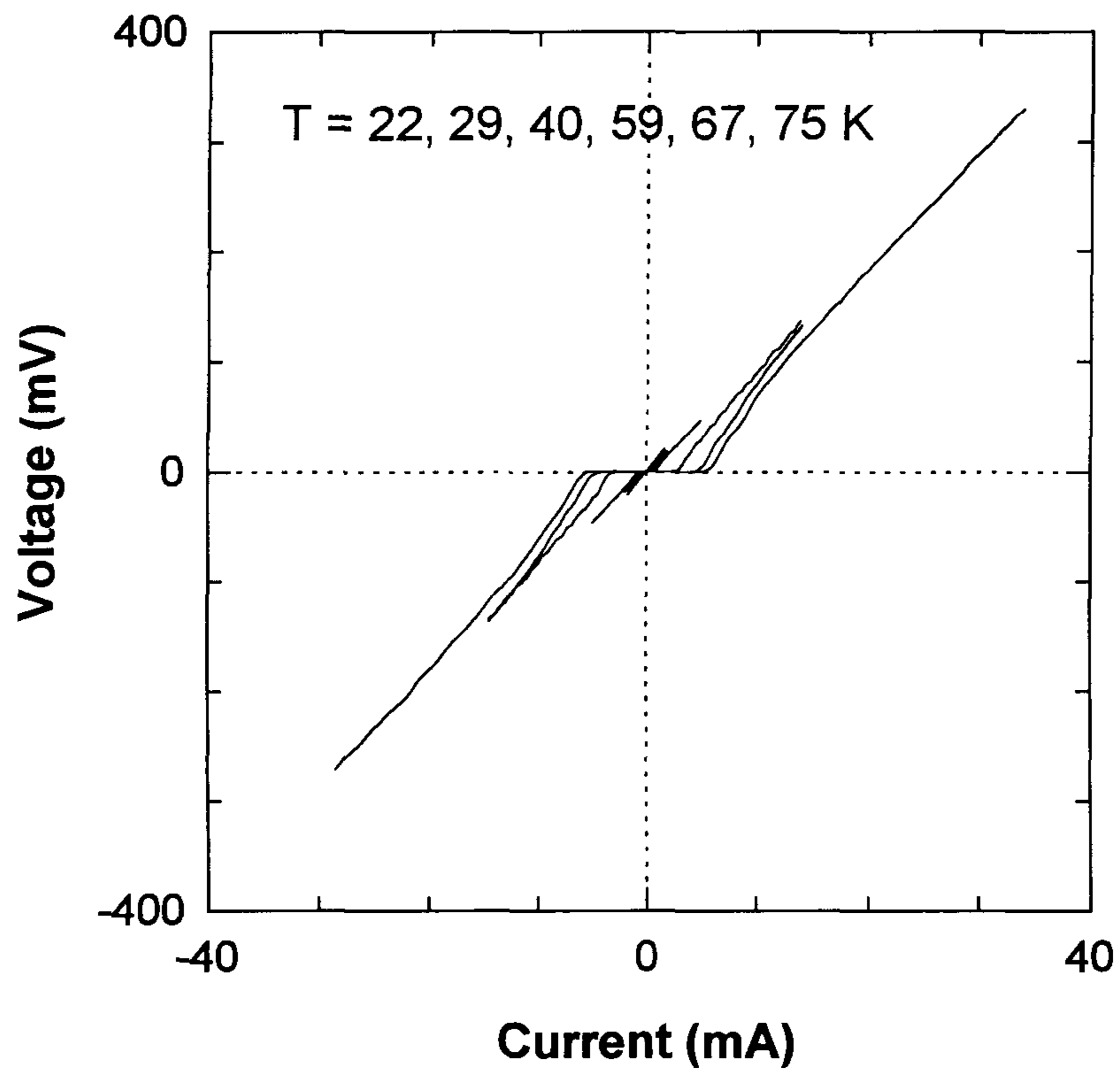


그림 2-2-3. 10×10 array의 온도에 따른 I-V 특성 곡선. 온도가 낮아질수록 RSJ 형태의 특성이 뚜렷이 보이고 있다.

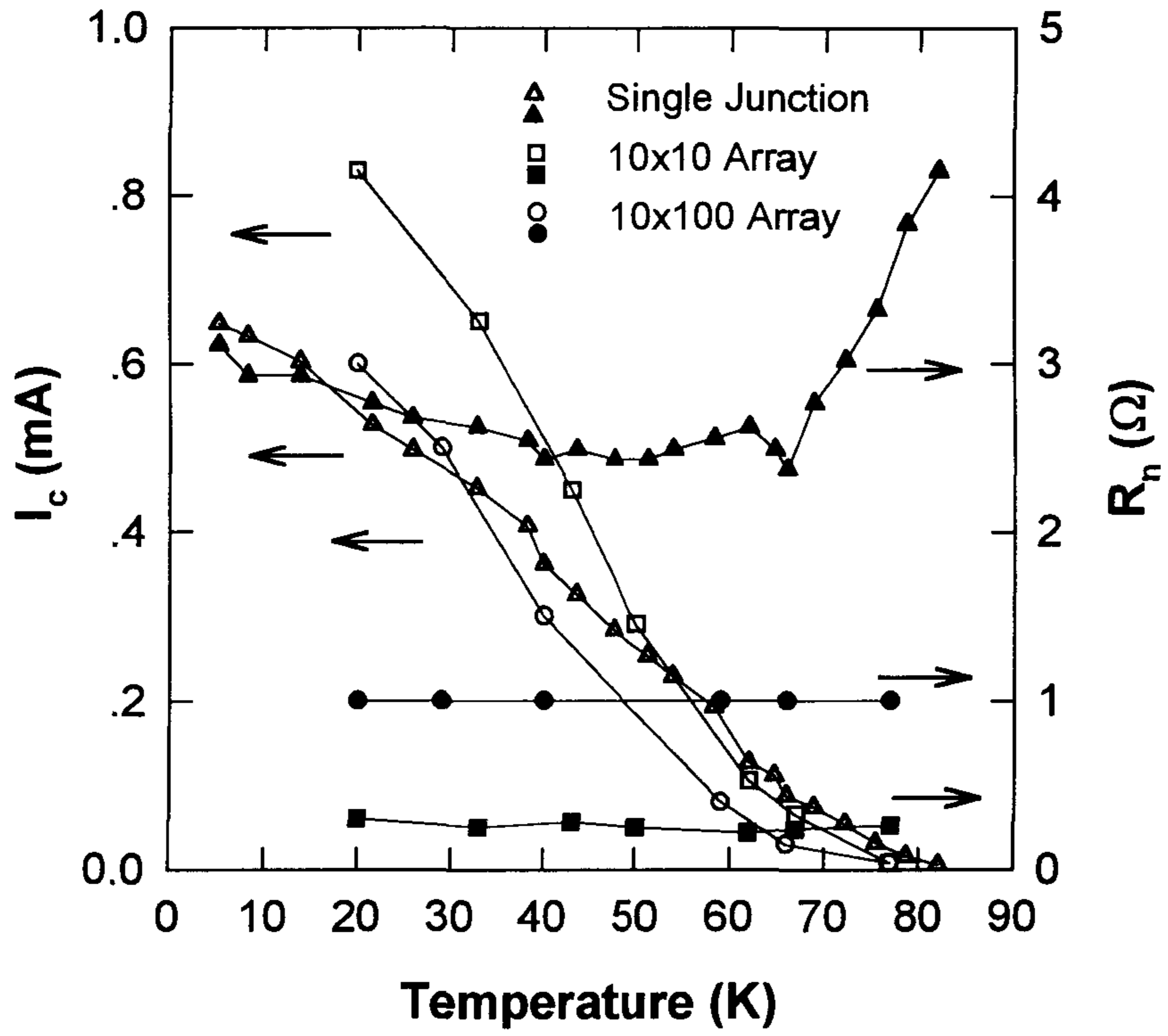


그림 2-2-4. 단일접합, 10×10, 10×100 array의 I_c 및 R_n 값의 온도 의존성
 Array의 경우 단일접합의 값으로 normalize된 수치임.

합특성이 균일해야 할 필요가 있다. 1 차원 array의 경우에는 dV/dI 를 측정하여 그 peak의 분포로써 array내의 접합들의 임계전류값들의 분포를 유추할 수 있으며, 본 연구와 같은 2차원 array의 경우에는 그 해석이 좀 더 복잡해지지만 역시 dV/dI 에서의 peak의 분포가 임계전류값을 나타낸다고 해석할 수 있다. 그림 2-2-5는 lock-in amplifier를 이용하여 dV/dI 를 측정한 결과이다. 10×10 array의 경우에는 여러 개의 좁은 peak들이 보이게 되어 임계전류값의 분산을 추정할 수 있으며, 10×100 array의 경우에는 접합의 수가 많으므로 개개의 peak들이 겹쳐져서 폭이 넓은 하나의 peak으로 나타나게 되며, 그 너비로 접합의 세기 분포를 추정할 수 있다. 이러한 peak의 형태로부터 제작된 array에서의 임계전류값의 편차는 약 $\pm 30\%$ 이내로 추정된다. 실제로 접합변수들의 분포가 phase locking이나 상전이 현상에 어떤 영향을 미치는가에 대해서는 80년대에 이론적으로 몇몇 연구가 행해졌으나 실제 실험에서는 이 분포를 제어하기가 힘들기 때문에 매우 단순한 경우를 제외하고는 많은 연구가 이루어져 있지는 않다. 따라서 균일한 접합들을 제작하는 것이 중요하며 이는 균일한 step 을 만드는 과정이 결정적인 역할을 하게 된다.

조셉슨 접합 array 는 작은 자기장에서 frustration 현상을 보임이 알려져 있으므로, 이를 알아보기 위해서는 작은 자기장 영역에서의 특성 변화를 측정할 필요가 있다. 따라서 우리는 임계전류값보다 약간 큰 일정한 값의 바이어스 전류를 array 에 가해주면서 작은 자기장의 변화에 따라 발생하는 array 양단의 전압 변화를 4 단자법으로 측정하였다. 이는 SQUID에서의 $V-\Phi$ 특성곡선의 측정방법과 거의 동일하다. 자기장은 PCB board 뒤쪽의 470 turn 코일($L=8.9$ mH)에 수 Hz 정도의 삼각파 형태의 전류를 흘려 sweep 하고, 이때의 array 양단의 전압 파형을 pre-amplifier를 거쳐 오실로스코프로 측정하였다. 이때 코일에 가하는 전류 1

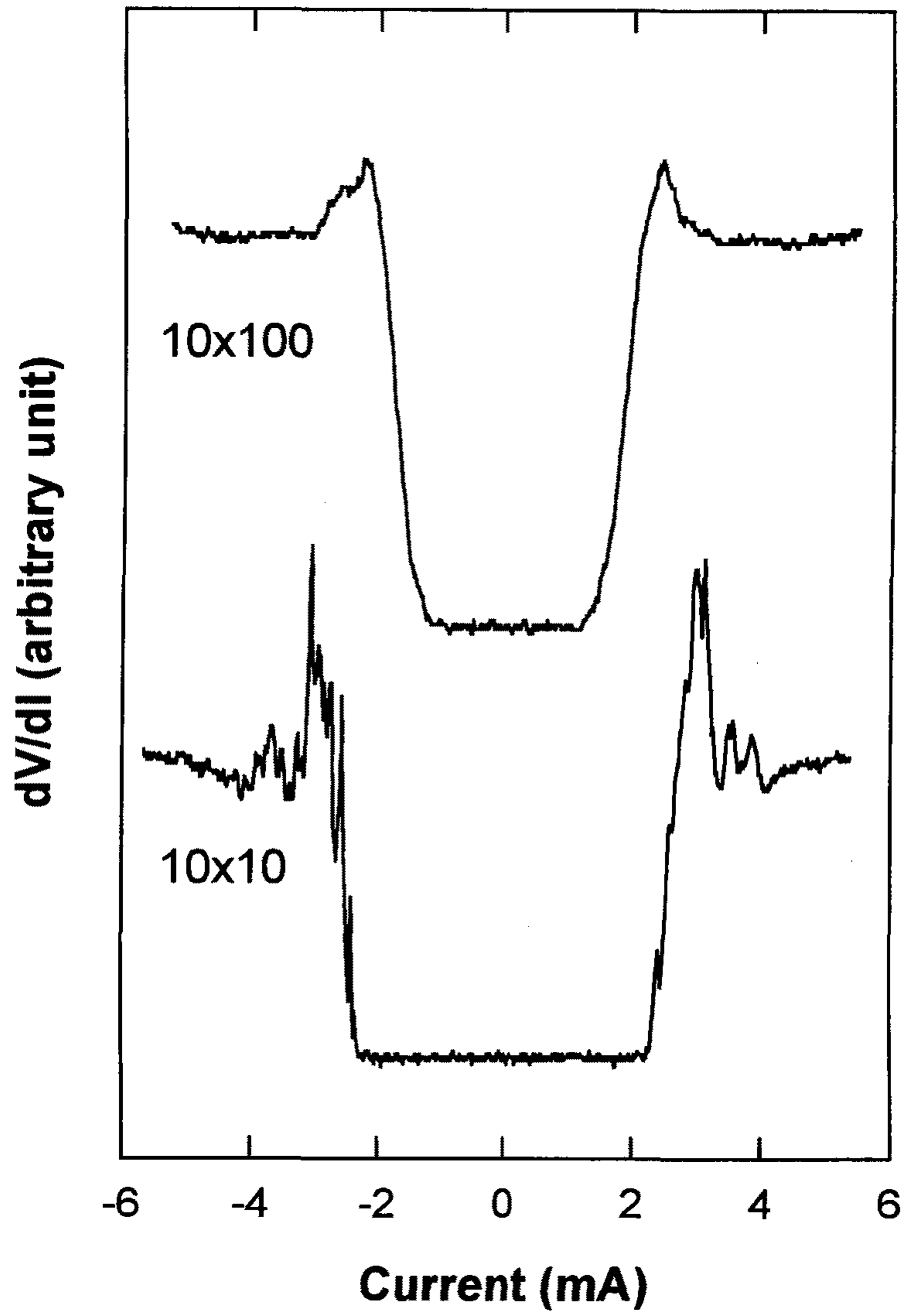


그림 2-2-5. 45K 에서 10×10 및 10×100 array의 dV/dI 특성 곡선

mA당 92 mG 의 자기장을 가하게 된다.

10×100 array는 10×10 array에 비하여 길이/너비의 비율이 크므로 큰 signal 을 얻을 수 있었다. 10×100 array에 대한 자속-전압 특성의 측정에서 $f=1$ 에 해당하는 52 mG 주기의 modulation이 포물선 형태의 background 위에 뚜렷이 보인다.(그림 2-2-6) 온도를 내리는 경우 포물선 background의 기울기가 더욱 급해지는 것을 볼 수 있으며 이는 임계온도가 자기장에 따라 포물선을 그리는 접합 array의 특성을 반영한다고 볼 수 있다. 관찰된 주기는 $20 \times 20 \mu\text{m}^2$ 에 대한 flux quantum의 크기 52 mG와 잘 일치한다. 단 전반적인 자속-전압 특성에서 array의 크기에 따른 상이점은 보이지 않았다.

Array에 인가하는 바이어스 전류에 따라 modulation의 형태는 다양한 structure를 보여준다. 이와 함께 바이어스 전류 값에 따라 전체 modulation 모양과 background 포물선의 최소점 위치의 평행이동이 관찰되는데 이는 array 내의 접합들의 임계전류값이 분산되어 있으며 접합간에 mutual inductance가 존재한다는 점과, 바이어스 전류 자체에 의한 자기장 등의 원인에 의한 것이라 생각된다.

그림 2-2-7 은 바이어스 전류에 따른 modulation 모양의 변화를 보여준다. (a)와 같이 $f=1$ 주기의 modulation과 함께 바이어스 전류를 조절함에 따라 먼저 (b)와 같이 $f=1/2$ 에 해당하는 dip이 보이기 시작한다. 또한 다른 바이어스 전류 값에서는 (c), (d)와 같이 $f=1/3, 1/4$ 에 해당하는 dip이 보이기도 하는데 이러한 dip은 $f=1$ 또는 $f=1/2$ dip에 비하여 그 크기가 매우 작아 보통 noise level에 묻히기 쉬우므로 이러한 dip의 관찰시에는 특히 잡음을 줄이는데 신경 써야 한다. 이러한 작은 dip은 작은 자기장 하에서만 관찰되며 자기장을 증가시키는 경우 작은 structure는 사라지고 $f=1$ 에 해당하는 structure만이 보이게 된다.

그림 2-2-8은 하나의 modulation curve에서 $f=0, 1/2, 1/3, 1/4$ 의 위치를 표시

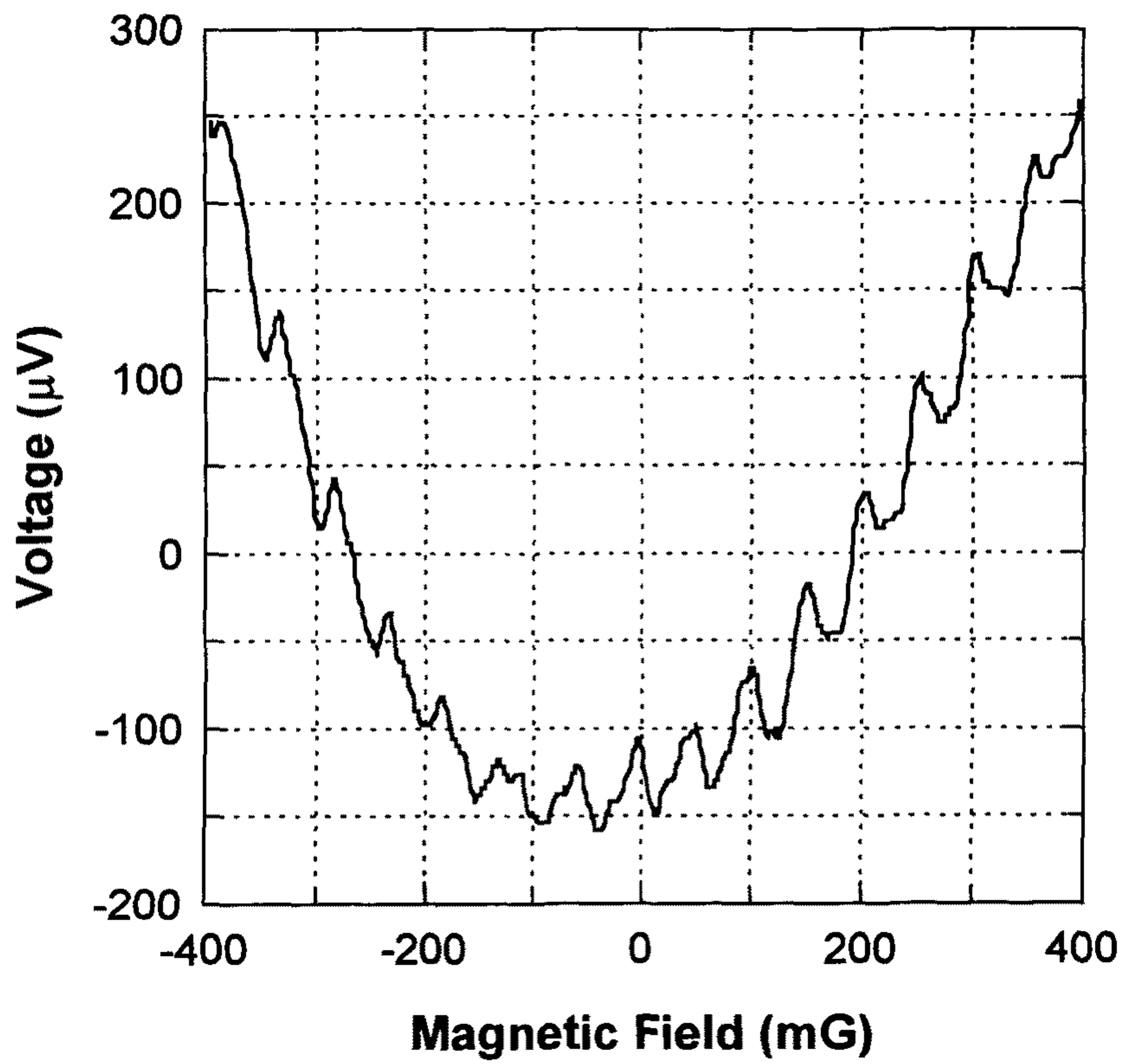
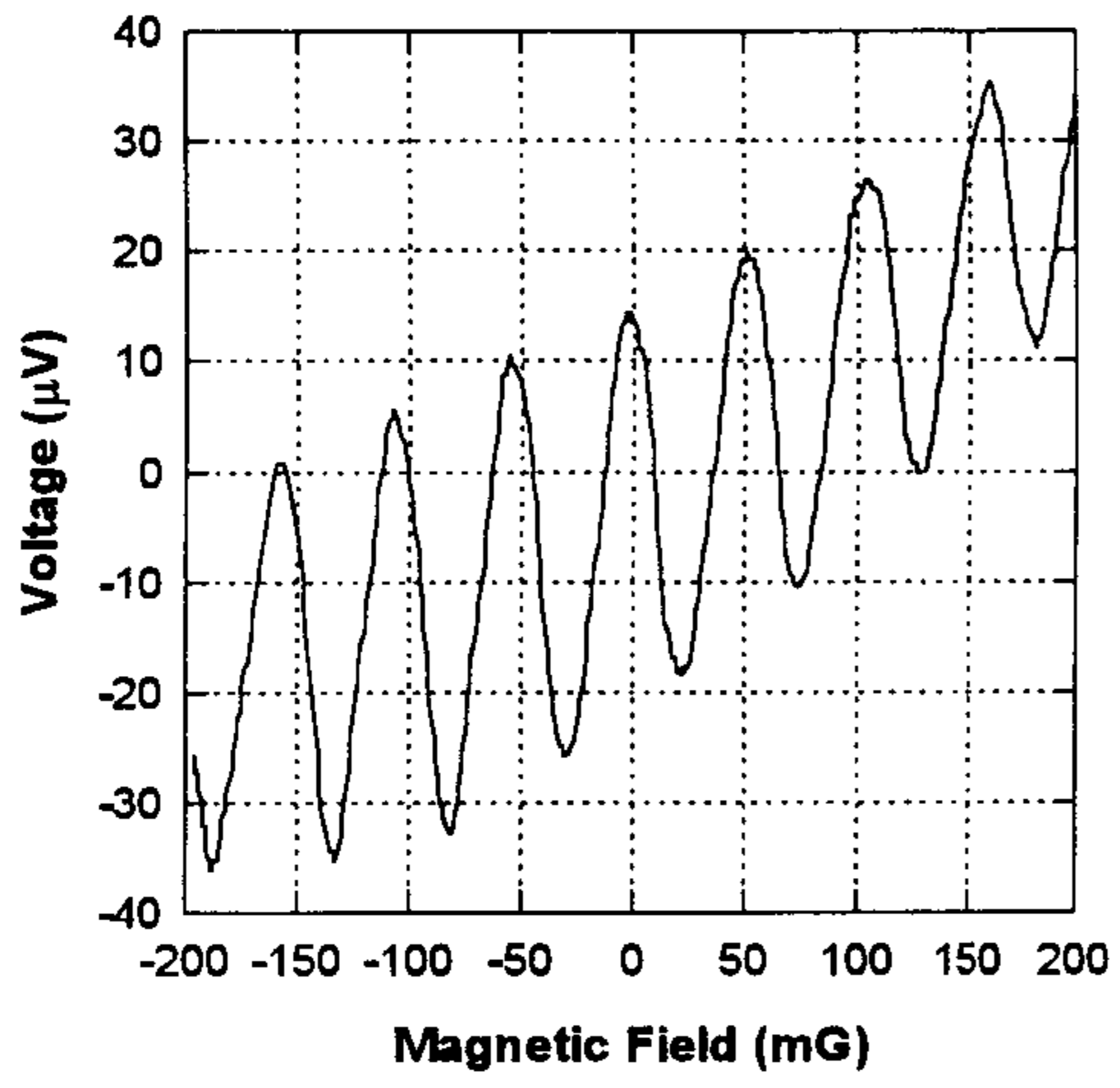
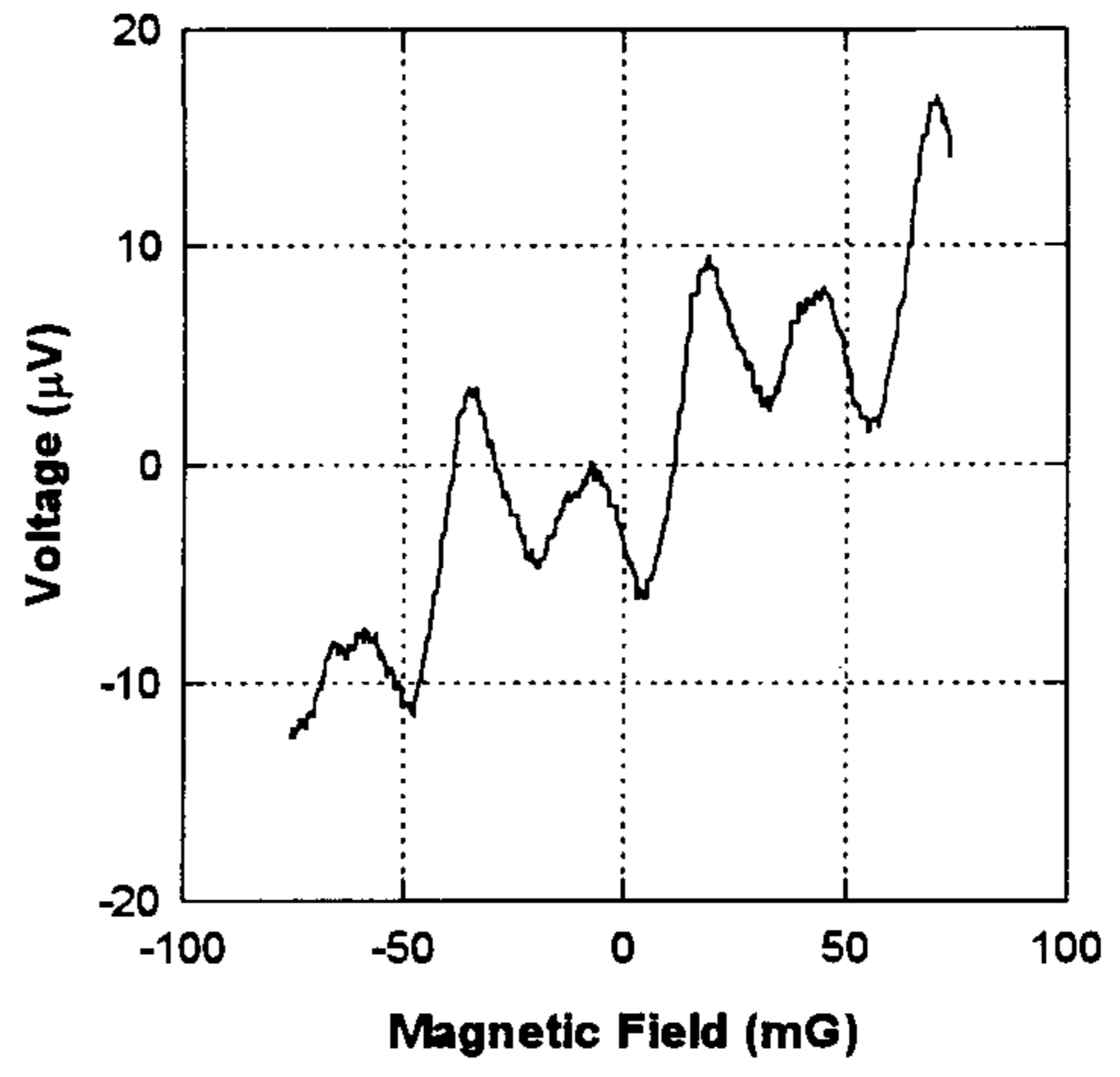


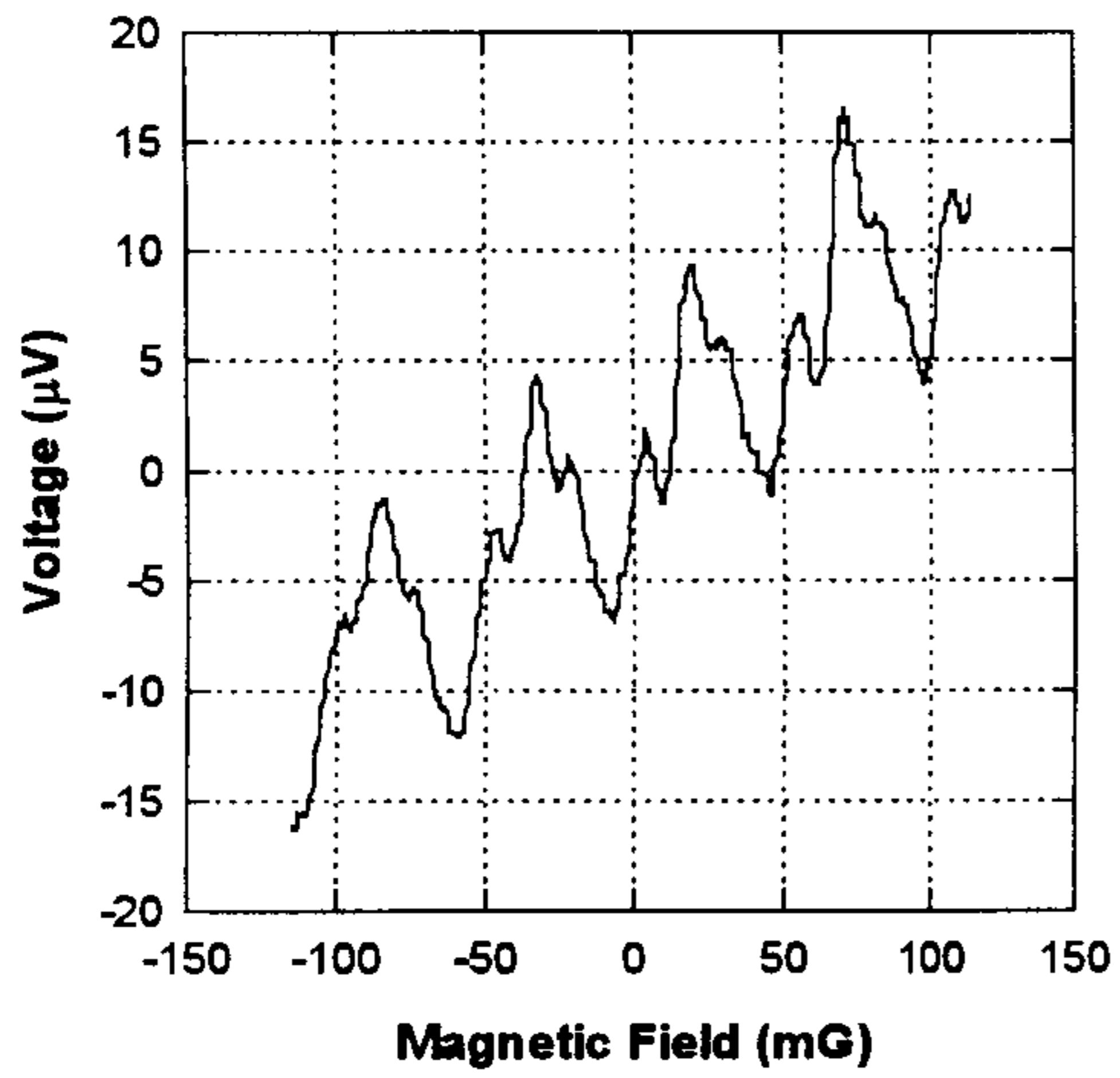
그림 2-2-6. 자기장에 따른 10×100 array의 voltage modulation과 포물선 형태의 background. ($T = 37K$, $I_b = 4.68$ mA)



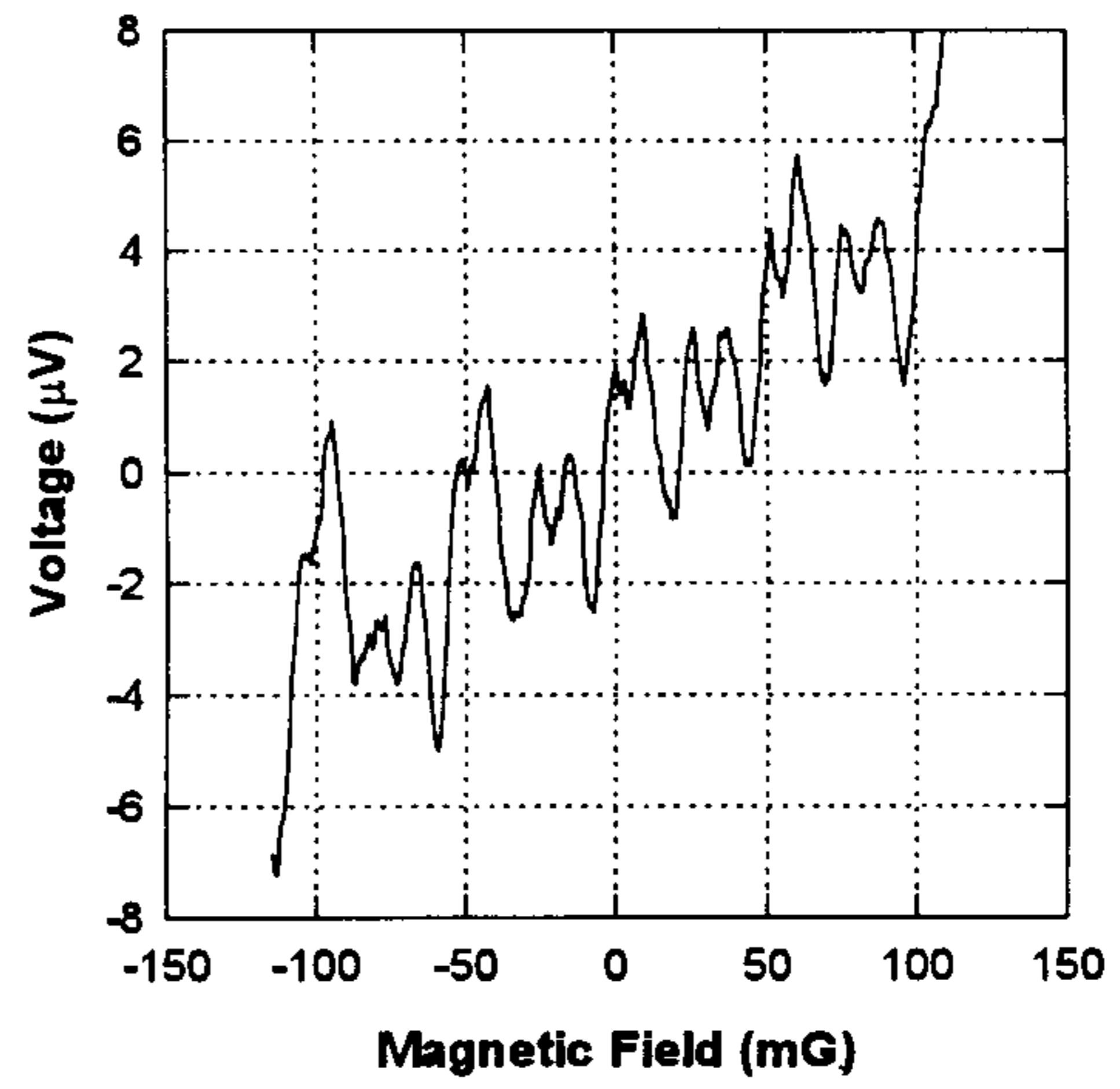
(a)



(b)



(c)



(d)

그림 2-2-7. 자기장에 따른 10×100 array의 voltage modulation.

(a) $T = 69\text{K}$, $I_b = 667 \mu\text{A}$

(b) $T = 69\text{K}$, $I_b = 549 \mu\text{A}$

(c) $T = 69\text{K}$, $I_b = 541 \mu\text{A}$

(d) $T = 69\text{K}$, $I_b = 420 \mu\text{A}$

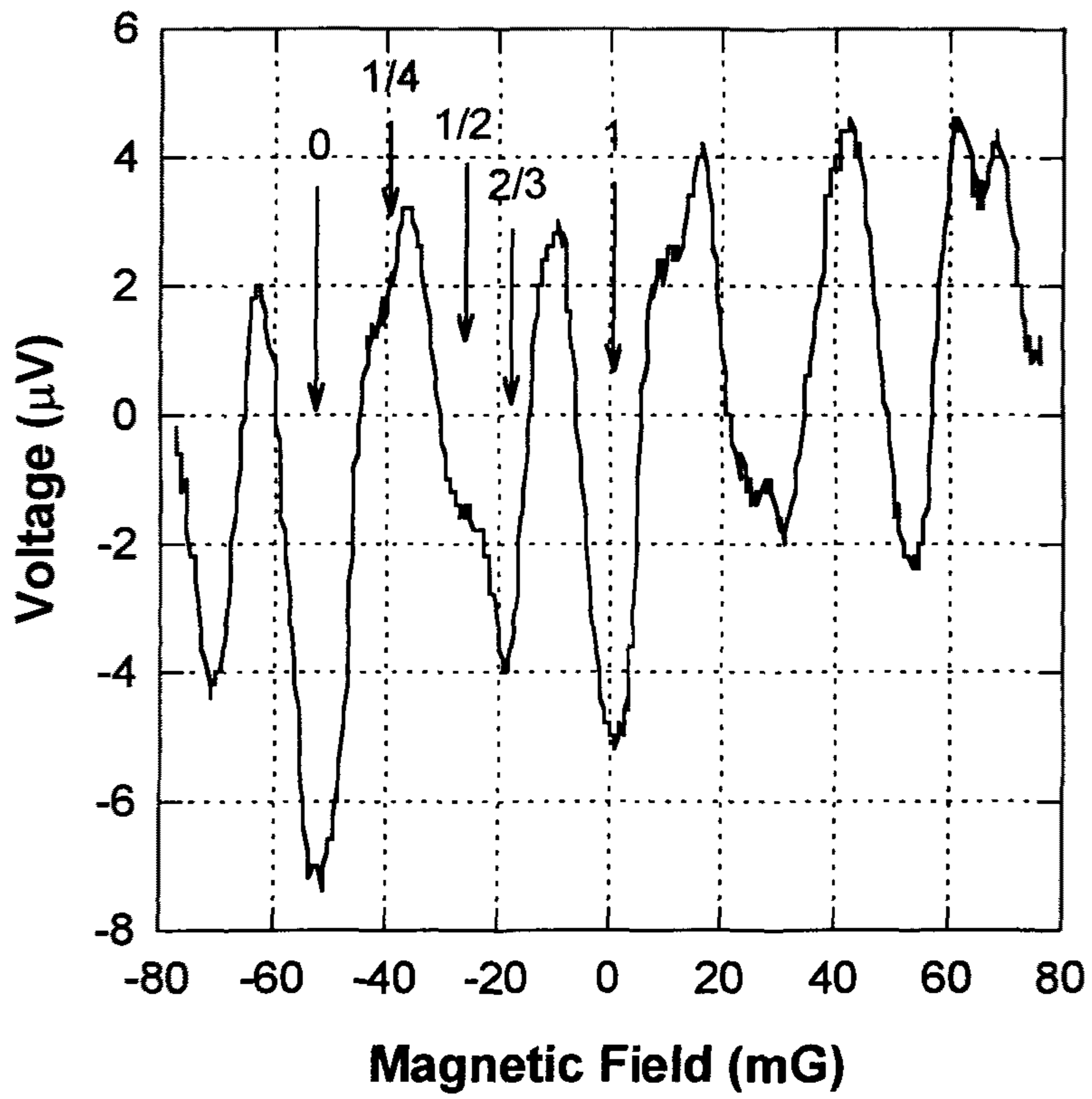


그림 2-2-8. 자기장에 따른 10×100 array의 voltage modulation

($T = 69\text{K}$, $I_b = 488 \mu\text{A}$)

한 것이다. Modulation의 모양이 비대칭형이고 배경 기울기를 가지고 있기는 하지만 flux quantum에 해당하는 주기와 그 유리수에 해당하는 fractional dip이 주기적 구조를 가지고 있음을 뚜렷이 볼 수 있다. 또한 이러한 형태의 기본주기가 52mG로서 array의 $f=1$ 에 정확히 대응되는 것은 이러한 structure가 array의 frustration 현상에 기인함을 의미한다고 하겠다

이상의 연구에서 아직 미흡한 점이라면 조셉슨 접합 array에서 중요한 phase coherence를 위해서는 접합의 균일성이 보장되어야 하는데 불구하고 임계전류의 분포에서 유추할 수 있듯이 접합의 균일성이 아직 microwave source로 쓸 수 있을 만큼 되지 못한다는 점과 제작된 조셉슨 접합 array에 대한 microwave 특성 분석을 하지 못한 점이다. 실용적인 면에서는 microwave 분야 응용이 가장 가능성이 높기 때문에 microwave 특성분석을 계속하여 고온초전도체 조셉슨 접합 array의 실용화에 대한 기초를 지속적으로 다지는 것이 바람직하다.

제 3 절 조셉슨 접합 Array의 특성 Simulation

본 연구에서는 junction array에 대한 실험 결과를 설명하기 위하여 computer를 이용한 모의실험을 행하였다. 이 모의실험의 기본적인 idea는 array를 구성하는 junction들이 RSJ 모형을 따른다는 가정이다. 이 모형에 의하면 array를 구성하는 각각의 island 사이에 흐르는 전류는 손실이 없는 supercurrent (두 island 사이의 phase 차이에 관계)와 이에 평행하게 흐르는 손실이 있는 전류 (두 island 사이의 전위차에 의존)로 나누어 쓸 수 있다.⁽²³⁾ 즉

$$I_{ij} = I_{c,ij} \sin(\phi_i - \phi_j - A_{ij}) + G_{ij}(V_{ij})V_{ij}$$

여기에서 $G(V)$ 는 전압에 의존하는 conductance이다. RSJ 모형에서는 $G(V)$ 를 전압에 관계없는 상수 $\frac{1}{R_{ij}}$ 로 놓는다. 또한 $A_{ij} = \frac{2\pi}{\phi_0} \int_i^j \vec{A} d\vec{l}$ 은 자기장에 의한 위상차이며 array에서 나타나는 frustration의 원인이 된다. 여기에서 $\phi_0 = hc/2e$ 은 flux quantum이다.

array가 xy 평면상에 있고 자기장을 z축 방향으로 걸었다면, 즉 $\vec{H} = H\vec{z}$ 이면 $\vec{A} = Hx\vec{y}$ 로 쓸 수 있고 $A_{ij} = \frac{2\pi}{\phi_0} Hx(y_j - y_i) = \pm \frac{2\pi fx}{a}$ 가 된다. 여기에서 a 는 array의 격자상수이다. 또한 $f = \frac{Ha^2}{\phi_0}$ 는 cell 하나당의 자속량을 나타내 주는 양이다.

Kirchhoff 법칙에 의하여 각 island에 들어오는 (혹은 나가는) 전류의 합은 영이다. 다만 array의 가장 위, 그리고 가장 아래에 있는 행에는 외부에서 주어지는 bias current가 흐르게 된다. 즉 각각의 island j에서 다음 식이 성립한다.

$$\sum_j I_{ij} = I_i^{ext} = \sum_j [g_{ij}V_{ij} + I_{c,ij} \sin(\phi_i - \phi_j - A_{ij})]$$

여기에서 $g_{ij} = \frac{1}{R_{ij}}$ 이다. 위 식을 다시 쓰면

$$\sum_j g_{ij} \frac{d}{dt} (\phi_i - \phi_j - A_{ij}) = \frac{2e}{\hbar} [I_i^{ext} - \sum_j I_{c,ij} \sin(\phi_i - \phi_j - A_{ij})]$$

이 되고 다음과 같은 vector와 행렬을 정의하면⁽²⁴⁾

$$c_i(t) = I_i^{ext} - \sum_j I_{c,ij} \sin(\phi_i - \phi_j - A_{ij})$$

$$M_{ij}(t) = \begin{cases} \sum_j g_{ij} & \text{for } i = j \\ -g_{ij} & \text{for } i \neq j \end{cases}$$

아래와 같은 형태로 쓸 수 있다.

$$M \frac{d}{dt} \vec{\phi} = \frac{2e}{\hbar} \vec{c}$$

그런데 여기에서 M 은 singular한 행렬이다. 즉 0을 하나의 eigenvalue로 갖는데 여기에 해당하는 eigenvector는 (1, 1, ..., 1)이다. 그 이유는 각각의 ϕ 를 임의의 양만큼 같이 돌려 주어도 이 계의 상태는 변함이 없기 때문이다. 따라서 M에서 하나의 행과 열을 없앤 행렬을 사용하게 되는데 이는 array에서 하나의 island의 위상을 고정시키는 (즉 그 island를 ground 시키는) 효과를 준다.

이제 위에서 유도한 연립 미분방정식을 푸는 일만 남았다. 위의 연립방정식은 일계 미분방정식이므로 수치 해를 구하는 많은 알고리즘이 이미 개발되어 있다. 본 실험에서는 fourth order Runge-Kutta 방법과 단순한 iteration 방법을 사용하였으며 대부분의 경우 두 방법에 의한 해가 차이를 보이지 않았으므로 iteration 방법에 의한 결과만을 기술하기로 한다.

먼저 새로운 시간변수 $\tau = \frac{2eI_c R}{\hbar} t = \omega_c t$ 를 도입한다. 그리고 시간을 적당한 간격 $\Delta\tau$ 으로 잘라서 iteration을 한다. 즉 $\vec{\phi}(\tau)$ 는 시간이 지남에 따라 다음과 같이 진행한다.

$$\vec{\phi}(\tau + \Delta\tau) = \vec{\phi}(\tau) + M^{-1} \vec{c} \Delta\tau$$

이에 따라서 $V(\tau)$ 는 다음과 같이 결정된다.

$$\frac{V}{I_c R} = \frac{d\phi}{d\tau} = \frac{\phi(\tau + \Delta\tau) - \phi(\tau)}{\Delta\tau}$$

또한 array 전체의 전압강하는 맨 윗행의 전위의 평균값에서 맨 아래행의 전위의 평균값을 빼주면 된다. 이는 각 열에서의 전위차의 평균과 같아지게 된다.

simulation은 PC(486DX2-66) 혹은 mainframe (Alliant) 를 사용하였으며 mainframe에서는 10×10 과 13×13 의 square array에 대해서 계산하였으며 PC 에

서는 memory 문제로 10×10 에 대해서만 계산하였는데 mainframe에서의 결과와
같이 나타났다.

모의 실험에서는 모든 접합이 동일하다고 가정하고 array의 I-V 곡선을 구하였
다. 우선 전류를 임계전류 이상으로 설정하고 이 전류값에서의 전압을 구한 후 전
류를 $0.01 I_c$ 만큼 감소시킨 후 다시 전압을 구하였다. 이런 식으로 계속 전류를
감소시키다가 전압이 일정 기준 (10^{-12}) 이하가 되면 전류를 $0.2 - 0.3 I_c$ 정도 더
내린 후 다시 전류를 올리면서 hysteresis가 있는지를 확인하였다.

각각의 전류에 해당하는 전압은 다음과 같이 구하였다. 적분 시간 간격 $\Delta\tau =$
 $0.05 - 0.1$ 로 하였으며 $\tau = 3,000 - 6,000$ 동안의 data는 equilibrium에 도달하지
않은 것으로 간주하여 버렸으며 그 이후 $\tau = 6,000 - 12,000$ 동안의 data를 취하
여 이를 평균한 값을 실험결과로 삼았다. $\vec{\phi}$ 의 초기값은 여러 가지 경우를 시도
하였다. i) 모든 ϕ 를 같게 놓는다.; ii) 모든 ϕ 를 random하게 놓는다.; iii) 각각
의 f 에 대하여 static simulation을 하여 energy를 최소로 하는 ground state를 구
하여 이를 초기조건으로 삼는다. 이 세가지 경우에 대하여 I-V 곡선은 같은 결과
를 나타내었다. 다만 iii)의 경우에는 좀 더 빨리 equilibrium에 도달하는 것을 알
수 있었다.

array내의 loop에 의한 inductance와 바이어스 전류에 의한 자기장의 영향 등은
고려하지 않았다. 또한 편의상 $T = 0$ K에서 계산하였으며 finite size effect를 줄
이기 위해 periodic boundary condition을 사용하였다. 그림 2-3-1 은 10×10
array에 대하여 여러 가지 f 값에 대하여 계산한 결과이다. 그림에서 볼 수 있듯
이 $f = 0$ 에서 가장 큰 임계전류값을 갖고 다음으로 $f = 1/2, f = 1/3, f = 1/4$ 순으

로 임계전류 크기가 나타난다. 주목할 점은 저항에 해당하는 기울기가 f 값에 따라 변화하는 것과 서로 다른 f 값에 대한 전류-전압 곡선이 임계전류값 바로 위에서 교차하는 것이다. 따라서 바이어스 전류 값에 대하여 특정한 f 값을 가지는 dip이 보일 것을 정성적으로 짐작할 수 있다.

위의 simulation 결과는 상황을 상당히 단순화하여 계산한 것이므로 정성적인 예측은 어느 정도 가능하지만 정량적인 예측은 힘들다. 우리가 무시한 요인들이 줄 수 있는 결과를 예상해 보면, i) 시료에서는 불균일성이 항상 존재하게 된다. 이것이 어떤 영향을 미칠지는 미리 예측하기 곤란하며 직접적인 simulation이 요구된다.⁽²⁵⁾ ii) 열적 요동을 고려한다면 I-V 곡선은 특히 임계전류 부근에서 부드러워지면서 전체적으로 임계전류가 감소하게 될 것이다. 따라서 서로 다른 f 에서의 차이가 줄어들게 되어 실험적인 관측이 힘들어 질 것이다. 그러나 앞 절의 실험의 경우 시료의 임계전류밀도가 커서 reduced temperature

$$t = \frac{k_B T}{E_J(T)} = \frac{2ek_B T}{\hbar I_c(T)}$$

가 0.1 이하인 구간에서 실험을 행하였으므로 큰 문제가

되지 않는 것으로 생각된다.⁽²⁶⁾ iii) 앞에서 이야기한 대로 실험에 사용된 시료의 임계전류밀도가 크기 때문에 inductance의 영향을 무시하기는 힘들다. 본 시료의 경우 array penetration

$$\text{depth } \lambda = \frac{\phi_0 c}{8\pi^2 i_c^{\text{single}}} \text{ 가 unit cell의 크기 (10-20 } \mu\text{m) 보다 작기 때문에 각 cell}$$

에서의 frustration f 가 서로 달라지게 된다. 이는 λ 가 큰 경우와는 달리 vortex가 실제로 존재한다는 것이므로 array의 dynamics를 다른 각도에서 바라볼 것이 요구된다.⁽²⁷⁻²⁸⁾

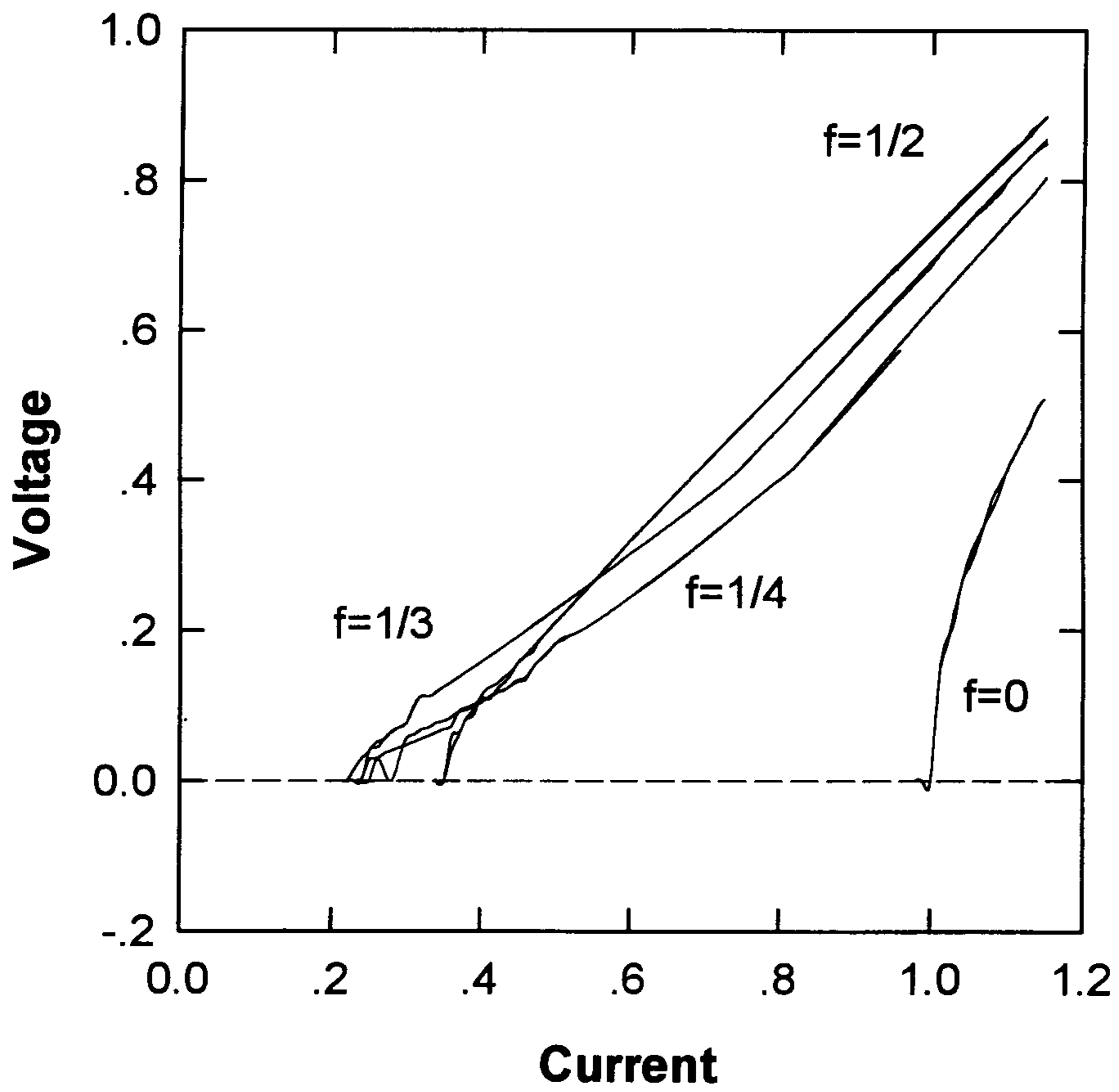


그림 2-3-1. Computer simulation에 의한 10×10 조셉슨 접합 array의 I-V 특성 곡선

참 고 문 헌

1. B. Oh, R. H. Koch, W. J. Gallayher, R. P. Robertazzi, and W. Eidelloth, *Appl. Phys. Lett.* **59**, 123 (1991).
2. K. Char, M. S. Colclough, S. M. Garrison, N. Newman, and G. Zaharchuk, *Appl. Phys. Lett.* **59**, 733 (1991).
3. 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).
4. K. Char, M. S. Colclough, T. H. Geballe, and K. E. Myers, *Appl. Phys. Lett.* **62**, 196 (1993).
5. L. Antognazza, K. Char, T. H. Geballe, L. L. H. King, and A. W. Sleight, *Appl. Phys. Lett.* **63**, 1005 (1993).
6. M. Kasai, T. Ohno, Y. Kanike, Y. Kozono, M. Hanazono, and Y. Sugita, *Jpn. J. Appl. Phys.* **29**, 2219 (1990).
7. R. Gross, P. Chandhari, M. Kawasaki, M. B. Ketchen, and A. Gupta, *Appl. Phys. Lett.* **57**, 727 (1990).
8. J. M. Jaycox and M. B. Ketchen, *IEEE Trans. Mag.* **17**, 400 (1981).
9. M. B. Ketchen, *J. Appl. Phys.* **58**, 4322 (1985).
10. E. Sarnelli, D. Chaudhari, and J. Lucey, *Appl. Phys. Lett.* **62**, 777 (1993).
11. P. A. Rosenthal, M. R. Beasley, K. Char, M. S. Colclough, and G. Zaharchuck, *Appl. Phys. Lett.* **59**, 3482 (1991)
12. J. Z. Sun, W. J. Gallagher, A. C. Callegari, V. Foglietti, and R. H. Koch, *Appl. Phys. Lett.* **63**, 1561 (1993).

13. J. M. Kosterlitz and D. J. Thouless, J. Phys. **C6**, 1181 (1973); J. M. Kosterlitz, J. Phys. **C7**, 1046 (1974).
14. For a list of references for Josephson junction array, see e.g., Physica **B+C** **152**, 1-302 (1988).
15. S. P. Benz, C. J. Burroughs, Appl. Phys. Lett. **58**, 2162 (1991); S. P. Benz, C. J. Burroughs, Supercond. Sci. Technol. **4**, 561 (1991).
16. M. Octavio, C. B. Whan, C. J. Lobb, Appl. Phys. Lett. **60**, 766 (1992).
17. K. Wan, A. K. Jain, J. E. Lukens, Appl. Phys. Lett. **54**, 1805 (1989).
18. W. Reuter, M. Siegel, K. Herrmann, J. Schubert, W. Zander, and A. I. Braginski, P. Muller, Appl. Phys. Lett. **62**, 2280 (1993).
19. J. S. Martens, A. Pance, K. Char, L. P. Lee, S. R. Whiteley, and V. M. Hietala, Appl. Phys. Lett. **63**, 1681 (1993)
20. J. S. Martens *et al.*, IEEE trnas. Appl. Supercond., **vol. 3**, No 4. (1993)
21. J. S. Satchell, R. G. Humphreys, J. A. Edwards and N. G. Chew, IEEE trnas. Appl. Supercond., **vol. 3**, 2273 (1993)
22. J. M. Murduck *et al.*, 4th International Superconductive Electronics Conference, August, 1993.
23. D. E. McCumber, J. Appl. Phys. **39**, 2503 (1968).
24. J. S. Chung, K. H. Lee, and D. Stroud, Phys. Rev. **B40**, 6570 (1989).
25. K. H. Lee, D. Stroud, and J. S. Chung, Phys. Rev. Lett. **64**, 962 (1990).
26. H. S. J. van der Zant, H. A. Rijken, and J. E. Mooij, J. Low Temp. Phys. **79**, 289 (1990).
27. R. Phillips, H. S. J. van der Zant, J. White, T. P. Orlando, Phys. Rev. **B47**,

5219 (1993).

28. T. P. Orlando, Phys. Rev. B**43**, 10218 (1991).

29. J Clarke and R. H. Koch, Science **242**, 217 (1988)

제 3 장 고온초전도체의 에너지 간격과 Flux Dynamics

터널링 spectroscopy는 Giaever가 I-V 특징으로부터 초전도체의 에너지 간격을 측정 한 이후로 초전도체에 널리 응용되어왔다. 처음에는 주로 박막 위에 산화막을 터널링 barrier로 입히고 그 위에 초전도체나 금속을 입히는 평면 접합에 의한 방법을 주로 사용하였으나 요즘에는 STM을 이용한 방법⁽¹⁾, break 접합⁽²⁾ 등 많은 방법이 시행되어 오고 있다. 초전도체의 터널링 실험을 하면 초전도체의 상태밀도와 에너지 간격을 측정할 수 있고 d^2I/dV^2 를 정확히 측정하면 phonon structure도 알 수 있다. Giaever의 실험은 초전도 현상에 대한 BCS 이론이 아주 잘 맞는다는 것을 입증해주고 있다. BCS이론에 의하면 페르미 에너지에 에너지 간격이 존재하고 쿠퍼쌍의 pairing 세기를 나타내주는 에너지 간격과 전이온도의 비는 $2\Delta/k_B T_c = 3.52$ 이다. 지금까지 실험된 결과에 의하면 이 값은 Al, Nb, V 등의 초전도체에서 예상된 값과 거의 같게 나온다. 그러나 납의 경우에는 $2\Delta/k_B T_c = 4.3$ 정도로 BCS 이론에 의한 값보다 많이 크다. Eliashberg는 이러한 strong coupled 초전도체의 이론을⁽³⁾ 정립시켰으며, McMillan 과 Rowell에⁽⁴⁾ 의해 실험과 잘 일치함이 밝혀졌다. 또한 단결정의 방향에 따른 터널링 특성을 조사하면 초전도체의 pairing symmetry에 대한 정보도 얻을 수 있다. 고온초전도체의 pairing symmetry는 지금도 많은 연구의 대상이 되고 있으나 아직 확실한 결론을 내리지 못하고 있다. BCS 이론에서는 쿠퍼쌍의 상태함수는 s-wave symmetry를 갖는 것으로 가정하였으나 실제로는 p나 d-wave와 같은 symmetry도 가능하다. p나 d-wave 초전도체

는 k 공간에서 어느 일정한 방향으로 에너지 간격이 제로이거나 부호가 바뀌는 것이 가능하므로 단결정의 방향에 따른 터널링 특성을 조사하면 그 초전도체의 pairing symmetry를 알 수 있다.⁽⁵⁾

한편 type II 초전도체에 자기장을 걸어주면 시료 내에 vortex가 존재하고 이 vortex들은 일정한 모양을 형성하게 된다. 이러한 vortex의 구조를 관찰하는 방법은 magnetic decoration, scanning hall probe microscope, magnetic force microscope(MFM), STM 등이 있다. magnetic decoration은 자성을 띤 입자를 시료 위에 뿌려서 형성된 모양을 광학 현미경 혹은 SEM등을 이용하여 보는 방법이고 scanning Hall probe microscope는 크기가 아주 작은 Hall 패턴을 주사하여 위치에 따른 자기장의 세기를 측정함으로써 vortex의 구조를 관찰하는 방법이며, MFM은 자성을 가지고 있는 물질로 코팅된 tip을 시료 가까이로 가져가 tip과 시료 사이의 magnetic force를 이용하여 초전도체의 vortex를 관찰하는 방법이다. 또한 저온 STM을 이용하여 초전도체의 vortex 구조를 볼 수도 있는데 Hess⁽⁶⁾ 등은 자기장 하에 있는 NbSe₂의 Abrikosov vortex lattice를 관찰하였다. vortex의 core 내부는 정상 금속 상태이므로 터널링 spectroscopy를 하면 core 외부와 내부의 터널링 컨덕턴스가 다르게 나온다. 따라서 STM 모드로 주사하면서 동시에 터널링 spectroscopy를 하면 그 변화로부터 vortex구조를 볼 수 있다. 이 방법은 Bitter pattern이나 magnetic force microscope와는 달리 초전도 상태에 전혀 영향을 주지 않고 좋은 분해능으로 관찰할 수 있으므로 유리하다. 반면에 넓은 영역을 전체적으로 보기가 힘들다는 단점이 있다.

제 1 절 Mercury 계열의 에너지 간격 측정

1. 서 론

Bednorz와 Muller에 의해 금속 산화물에서 고온 초전도 현상이 발견된 이래 많은 그룹에 의해 초전도 현상에 대한 연구가 진행되어왔다. 그러나 고온초전도체는 입상 성질을 가지고 있고 안정된 터널링 barrier를 만들기 어렵기 때문에 처음에는 주로 STM등을 이용한 point contact 스타일의 실험을 하였으며 터널링 spectroscopy의 결과가 그룹마다 다르고 재현성이 부족했다.⁽⁷⁾ 양질의 박막과 단결정을 만들면서부터 보다 재현성 있는 좋은 결과가 많이 나오기는 하였으나 여전히 완전히 통일된 결론이 난 것은 아니며 특히 기존의 BCS 이론으로는 설명할 수 없는 이상한 현상들이 많이 보고되어 있다. 산화물 초전도체의 일반적인 터널링 특성은 a)바이어스 전압의 극성에 따라 비대칭인 경우가 많고^(8,9) b)dI/dV의 갭 모양의 broadening이 심하며⁽¹⁰⁾ c)갭 바깥쪽에서 선형적으로 증가하는 모양이 많이 나온다는 점이다.^(11,12) 많은 사람들이 이에 대한 설명을 하려고 노력하고 있으며, 연구를 진행중이나 아직 확실한 이론이 정립되어 있지는 않다. 그러나 모든 산화물 초전도체들이 위와 같은 특징을 보이는 것은 아니고 같은 종류의 시료도 보고하는 그룹에 따라 결과가 다른 경우가 종종 있으며, 구리 산화물이 아닌 BaBiO₃⁽¹³⁾ 는 터널링 spectroscopy가 BCS 이론에 잘 맞는다고 알려져 있으므로 이 모든 문제들이 단지 고온초전도체의 표면이나 질에 의해서 야기되는 것일 수도 있다.

고온초전도체의 임계온도는 La_{2-x}Sr_xCuO_{4+δ} 이후에 급격한 증가를 보였으나 TI 화합물에서 125 K 의 임계온도가 발견되고 그 증가가 잠시 멈추어지는 듯하였다. 그러나 Hg 화합물은⁽¹⁴⁾ 그전까지 가장 높은 전이 온도를 갖는 TI 화합물의 전이 온도를 넘어서서 보다 높은 전이 온도를 갖는 초전도체에 대한 희망을 주었다. HgBa₂Ca₂Cu₃O_{8+δ}는 상압에서 약 135 K 의 임계온도를 갖고 높은 압력하에서는 약

165 K의 임계온도를 갖는다.⁽¹⁵⁾ 그러나 아직 그에 대한 기본적인 메커니즘이 불확실하며 지금도 많은 연구의 대상이 되고 있다.

지금까지 Hg 화합물에 대한 수송 특성과 압력에 의한 의존성 등 많은 물리적 성질이 측정되었으나 초전도 상태에서의 상태밀도나 에너지 간격에 대한 연구는 거의 이루어지지 않았다. 특히 터널링 특성에 대한 연구 결과는 아직 보고된 것이 거의 없다. 그 주된 이유로는 Hg 화합물은 아직 박막이나 양질의 단결정을 얻기가 힘들고 다른 고온초전도체와 마찬가지로 입상 성질을 가지고 있으며, 저온초전도체와 같이 균일한 산화막에 의한 좋은 터널링 barrier를 만들기가 어려우므로 평면 접합 형식의 터널 접합을 만들기가 아주 어렵기 때문이다. 따라서 아직 평면 접합 형식의 좋은 터널링 접합을 만들었다는 보고는 없으며 Jun Chen 등에 의해⁽¹⁶⁾ $\text{HgBa}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ ($T_c = 92\text{K}$)를 point contact 형식으로 실험하여 터널링 특성이 BCS 이론을 따른다는 것이 보고된 바 있다. 본 연구에서는 아직 잘 알려지지 않은 $\text{HgBa}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{8+\delta}$ 화합물의 터널링 특성을 조사하여 이 시료의 초전도 상태의 상태 밀도와 에너지 간격 등에 대한 정보를 얻도록 한다.

2. 실험

본 연구에서는 Hg 화합물 중 하나인 $\text{HgBa}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{8+\delta}$ ($T_c = 132\text{K}$) 다결정의 터널링 특성을 point contact spectroscopy에 의하여 측정하였다. 시료는 포항 공대의 초전도 연구실에서 만든 $\text{HgBa}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{8+\delta}$ 다결정을 이용하였다. 이 시료는 약 200 atm 정도의 높은 압력에서 만들어졌으며 X-ray 회절 실험은 아주 적은 BaCuO_2 의 불순물 상을 제외하고는 잘 정의된 회절상을 보여주고 있다. 4-probe 측정에 의한 전이 온도는 132K이다.

시료가 단결정이 아니므로 방향성은 중요하지 않으며 표면이 오염되었을 가능

성이 있으므로 실험하기 전에 시료의 표면을 끌을 이용하여 갈아내고 가능한 한 빨리 chamber에 넣은 후 rotary pump를 이용하여 약 1 mTorr가 될 때까지 pumping하고 He gas를 채운 후 다시 pumping 하는 과정을 수차례 반복하였다. 실제 실험은 rotary pump로 pumping 한 후 4.2 K 에서 실험하였다. 단결정이 아니고 표면을 끌로 긁어냈으므로 STM imaging은 시도하지 않았으며 전형적인 터널링 저항은 약 1 G Ω 정도로 하였다.

터널링 spectroscopy는 주사하면서 원하는 위치에서 spectroscopy를 하여 표면의 topography와 I-V특성을 동시에 측정할 수 있는 STS 모드와 어느 원하는 위치한 점에서 spectroscopy를 하는 두 가지 방법이 모두 가능하도록 하였다. STS 모드로 동작하는 방법은 되먹임을 켜고 주사하면서 topography를 기록하고 spectroscopy를 하는 위치가 되면 되먹임을 끄고 바이어스 전압을 변화시켜 그 때의 터널링 전류의 변화를 기록한다. 그 다음 다시 되먹임을 켜고 바이어스 전압을 일정한 값으로 바꾼 후 주사를 하는 것을 반복한다. 이 때 I-V 특성을 얻을 때는 신호 대 잡음비를 높이기 위하여 128번이나 256 번 되풀이한 다음 평균값을 저장한다.

한편 저온초전도체의 경우 에너지 간격이 약 1 meV이고 고온초전도체의 경우에도 터널링 특성을 보다 정밀하게 조사하기 위해서는 에너지 분해능이 좋고 잡음이 아주 작은 회로가 필수적이다. 12 bit DAC의 경우 에너지 분해능이 약 5 meV 정도이고, 신호 대 잡음비를 좋게 하려면 LockIn amplifier를 사용하는 것이 유리하므로 spectroscopy 회로를 만들어 DAC의 출력과 이 회로의 출력중 하나를 선택하여 탐침에 전압을 가하도록 하였다. 따라서 정확한 터널링 특성을 측정하고자 할 때는 STS 모드를 이용하지 않고 어느 한 점에 고정시켜놓고 하였다.

dI/dV는 보통의 Lock-In technique을 사용하였으며 이 때의 modulation 전압은 약 1.65 mV, sweep하는 시간은 약 10초로 하였다. 4.2K에서는 feedback을 끄더라

도 이 시간 동안 터널링 접합이 안정되게 있었다. 또한 터널링 컨덕턴스의 위치에 대한 의존도를 측정하기 위하여 약 $8000\text{\AA} \times 8000\text{\AA}$ 정도의 면적에서 PZT 튜브를 이용하여 tip의 위치를 바꿔가면서 실험하였으며 tip의 위치를 바꿀 때는 tip을 뒤로 빼고 위치를 바꾼 후 다시 터널링이 일어날 때까지 가까이하는 방법을 취하였다.

3. 결과 및 토의

그림 3-1-1은 $\text{HgBa}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{8.8}$ 에서 얻은 터널링 컨덕턴스 중 가장 BCS 모양과 가까운 것이다. Δ_{p-p} 는 약 54 meV이고 갭 부근의 broadening이 크다. 제로 바이어스 컨덕턴스는 정상 상태의 값의 5% 미만이며 갭 바로 바깥쪽에 오목한 모양이 보인다. $|eV| < \Delta$ 일때 컨덕턴스가 거의 제로인 것은 갭 부근에서의 dI/dV peak의 broadening이 갭의 이방성 때문이 아님을 보여준다. 그림에서 실선은 Dynes에⁽¹⁷⁾ 의해 처음 제안된 smeared 상태밀도

$$N_s(E) = \text{Re} \left\{ \frac{|E|}{\sqrt{E^2 - (\Delta + i\Gamma)^2}} \right\} \quad (1)$$

와 온도에 의한 broadening 효과를 고려한 계산값이며 에너지 간격 안쪽에서 잘 맞음을 보여주고 있다. 이 때 에너지 간격 $\Delta = 48$ meV, pair breaking parameter $\Gamma = 5$ meV ($\Gamma \cong 0.1 \Delta$)를 사용하였다. 에너지 간격 대 전이 온도의 비 $2\Delta/k_B T_C$ 는 8.5정도로 다른 고온초전도체에서 주로 받아들여지는 값보다 조금 크게 나왔다. pair breaking parameter Γ 는 초전도체의 쿠퍼쌍의 lifetime을 고려하여 넣은 것이며, $\Gamma = \hbar/\tau$ 로 해석하면 이 시료의 τ 는 약 $\sim 8 \times 10^{-13}$ s이다. 에너지 간격 바로 바깥쪽의 오목한 구조는 BSCCO와 같이 고온초전도체에서 많이 나타나는 특

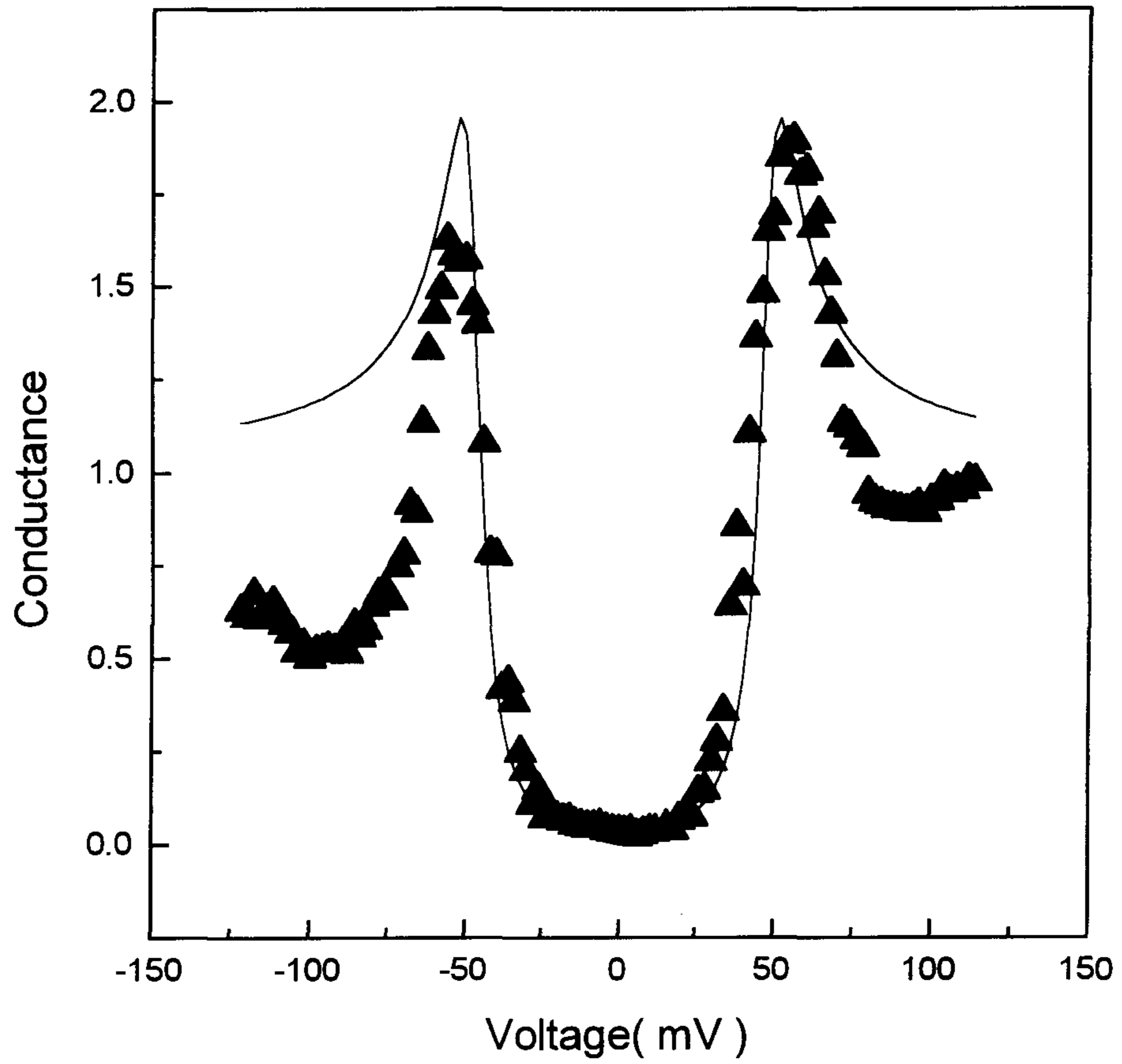


그림 3-1-1. 4.2 K 에서 측정한 Hg 초전도체의 터널링 컨덕턴스. 실선은 $\Delta = 48\text{meV}$, $\Gamma = 5\text{ meV}$ 일때의 BCS 이론에 의한 터널링 컨덕턴스이다.

정으로 아마도 고온초전도체의 본질적인 interaction과 관계 있는 것으로 생각된다. BSCCO 의 경우 주로 S-I-S 터널링에서 이러한 오목한 구조가 발견되었으나 이 시료의 경우에는 N-I-S 터널링에서도 이러한 구조가 발견되었다. 오목한 구조의 크기를 정량적으로 분석하기 위해서는 컨덕턴스 결과를 normalize할 필요가 있는데 고온초전도체의 경우 자기장에 의해 초전도 현상을 quench하기가 힘들고 normal background는 일반적으로 온도 의존성이 있으므로 정확한 분석은 힘들다.

그림 3-1-2는 약 $0.1\mu\text{m}$ 정도 떨어져 있는 각각 다른 위치에서 실험한 결과이다. (b),(c),(d)는 보기 편하도록 1씩 shift시켰다. (b),(c),(d)의 결과를 보면 (a)와는 아주 다른 특징을 보여주고 있다. (a)의 결과가 갭 안에서 BCS 이론에 잘 부합하는 결과가 나온 반면에 (b),(c),(d)는 고온초전도체의 일반적인 특징이 나타났다. 즉 dI/dV 가 전압의 극성에 따라 비대칭적인 구조를 가지고 있으며 V자 모양의 선형적인 background 컨덕턴스를 보이고 있다. 그 외에 갭 부근에 약간의 cusp이 있으며 갭 안에서 선형적인 컨덕턴스가 나타났다.

만일 그림 3-1-2의 (b)에 나타나는 cusp를 에너지 간격에 의한 것이라고 생각하면 위에서와 같은 방법으로 smearing 효과를 고려하여 simulation하였을 때 추론되는 에너지 간격은 약 40meV 이다. 이 값은 (a)에서 얻어진 값보다 20% 정도 작은 값이며 물론 dI/dV 가 에너지 간격 안에서 선형적인 모양을 갖는다는 것을 설명하지 못한다. (c)는 또다른 지점에서 얻은 결과로 dI/dV 의 기울기가 21mV 와 51mV 에서 급격한 변화를 보이며, 이것은 두 개의 에너지 간격을 측정하고 있다고 생각할 수 있다. (d)를 보면 (a)나 (b)보다는 작은 하나의 갭 모양을 보여준다. 만일 dI/dV 의 기울기의 급격한 변화가 이 시료의 에너지 갭에 의한 것이라고 생각하면 smearing 효과를 고려하여 추정되는 에너지 간격은 각각 $\Delta_1 = 19.7\text{ meV}$ 와 $\Delta_2 = 46\text{ meV}$ 이고 이 값은 (a)와 같이 BCS이론에 잘 맞는 결과에서 얻어진 값과 비

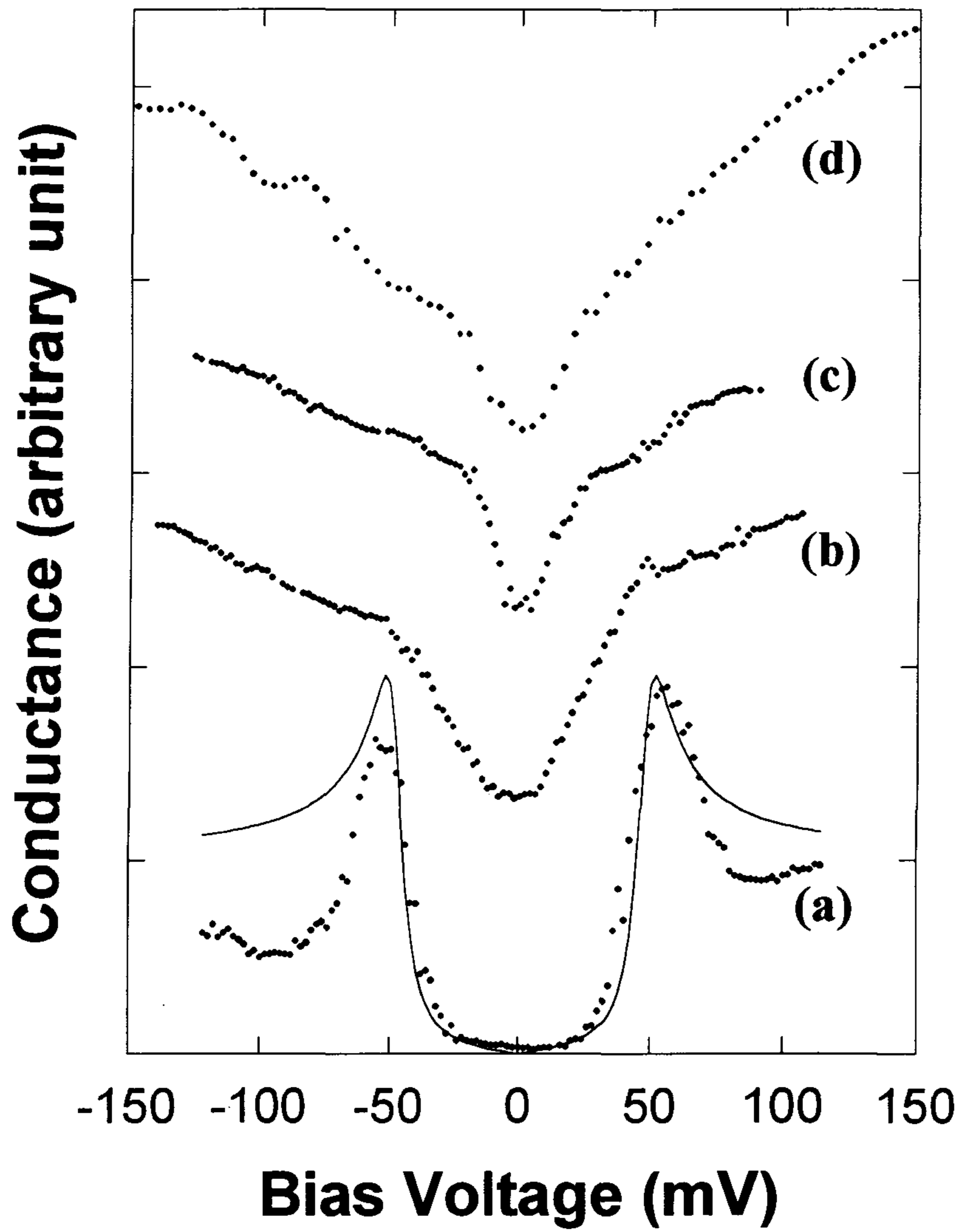


그림 3-1-2. 4.2 K 에서 각각 다른 4곳의 위치에서 얻은 결과이다. 점선은 실험 결과를 나타내고 있고 (b), (c), (d)는 1씩 윗쪽으로 이동시켰다.

슷하다. 따라서 우리가 측정한 시료는 최소한 두 개의 에너지 간격이 존재하는 것으로 생각되며 그 이유로는 에너지 간격의 이방성이나 다른 초전도상에 의한 것으로 생각할 수 있다. 그러나 이 시료의 에너지 간격이 두 가지라고 가정하더라도 (b),(c),(d)에서와 같이 에너지 간격 안쪽에서 선형적인 컨덕턴스를 갖는 것은 설명할 수 없다. 에너지 간격 안쪽에서 선형적인 컨덕턴스가 나오는 경우로는 터널링 접합을 이루고 있는 초전도체에 에너지 간격의 변화가 있는 경우와 p나 d-wave와 같은 대칭성을 가지고 있는 경우를 생각할 수 있다. 예를 들면 d-wave의 대칭성을 가지고 있는 경우 방향에 따라 에너지 간격이 다른 값을 가지므로 평균된 터널링 특성을 측정하면 위와 같은 선형적인 컨덕턴스가 나올 수 있으며, 만일 어느 특정한 한 방향으로 터널링이 일어나는 경우를 생각하면 그림 3-1-1와 같이 그 방향의 에너지 간격에 해당하는 결과가 나오게된다. 그러나 이런 경우라면 우리가 측정한 시료가 단결정이 아닌 다결정이므로 위치를 바꾸어가면서 실험을 하면 여러 가지 방향을 측정할 수 있고 따라서 위치를 변화시키면 두 가지의 에너지 간격이 아닌 여러 가지의 에너지 간격이 나와야한다. 그러나 실험 결과에 의하면 두 가지의 에너지 간격만이 측정되므로 이런 가능성은 적다고 생각할 수 있다. 또 하나는 터널링 접합을 이루고 있는 면적 내에 에너지 간격의 변화가 있는 경우이다. 이런 결과를 주는 요인으로는 시료의 불균일성 등 여러 가지를 생각할 수 있으나 여기서는 시료의 표면이 금속층으로 덮여있는 부분이 있고 이러한 금속층에 proximity 효과에 의하여 유도된 에너지 간격을 측정하고 있다고 가정하였다. 이러한 가정을 한 이유는 그림 3-1-1과 같이 BCS 이론에 잘 맞는 결과가 나온 때의 에너지 간격은 48 meV 이나 그림 3-1-2 와 같이 에너지 간격 안쪽에 선형적인 터널링 컨덕턴스가 나온 경우에는 에너지 간격이 약 40 meV 로 이보다 좀 작게 나왔다는데 있다. 이것으로부터 에너지 간격 안쪽에 선형적인 결과가 나오는 부분은

터널링 접합을 이루고 있는 초전도체에 금속층이 덮여있고 proximity 효과에 의하여 줄어든 에너지 간격을 보고 있다고 가정할 수 있다.

에너지 갭 안쪽에서의 선형적인 컨덕턴스를 설명하기 위하여 $\text{HgBa}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{8+\delta}$ 의 표면의 일부분이 두께가 x 인 금속에 의해 덮여있고 그 두께는 Gauss 분포 ($\propto \exp(-x^2/2\sigma^2)$) 을 따른다고 가정하였다. 즉 그림 3-1-3과 같은 모델을 생각하였다. 금속과 초전도체의 접합에서 de Gennes 의 boundary condition을⁽¹⁸⁾ 사용하면 금속의 두께가 x 인 곳에 proximity 효과에 의해 유도되는 에너지 간격은 다음과 같이 주어진다.

$$\Delta(x) = \Delta_0 \exp\left(-\frac{x}{\xi_N}\right) \quad (2)$$

이때 Δ_0 는 초전도체 표면에서의 에너지 갭이고 ξ_N 은 금속층에서의 coherence 길이이다. 이와 같은 모델에 의해서 금속층의 두께가 d 까지 존재한다고 생각하면 그 두께에 대해 평균된 상태밀도는 다음과 같다.

$$N_M(E) = 1/d \int_0^d \exp\left(-\frac{x^2}{2\sigma^2}\right) \text{Re}\left\{ \frac{|E|}{\sqrt{E^2 - (\Delta(x) + i\Gamma)^2}} \right\} dx \quad (3)$$

그림 3-1-4의 (a)는 윗식(3)에 의한 계산 결과와 실험 결과를 같이 그린 그림이다. 여기서 각각의 parameter는 금속층의 최대 두께 $d = 2000 \text{ \AA}$, 두께의 분포 상수 $\sigma = 700 \text{ \AA}$ 그리고 금속층의 coherence 길이 $\xi_N = 1000 \text{ \AA}$ 로 하였고 초전도체의 에너지 간격과 pair breaking 상수는 각각 $\Delta_0 = 48 \text{ meV}$ 와 $\Gamma = 0.1\Delta(x)$ 로 하였다. 이 값은 BCS like한 모양을 보인 실험결과에 의한 값이다. 비대칭적인 모양과 갭 바깥쪽에서의 선형적으로 증가하는 background 컨덕턴스를 제외하면 갭 안쪽에서는

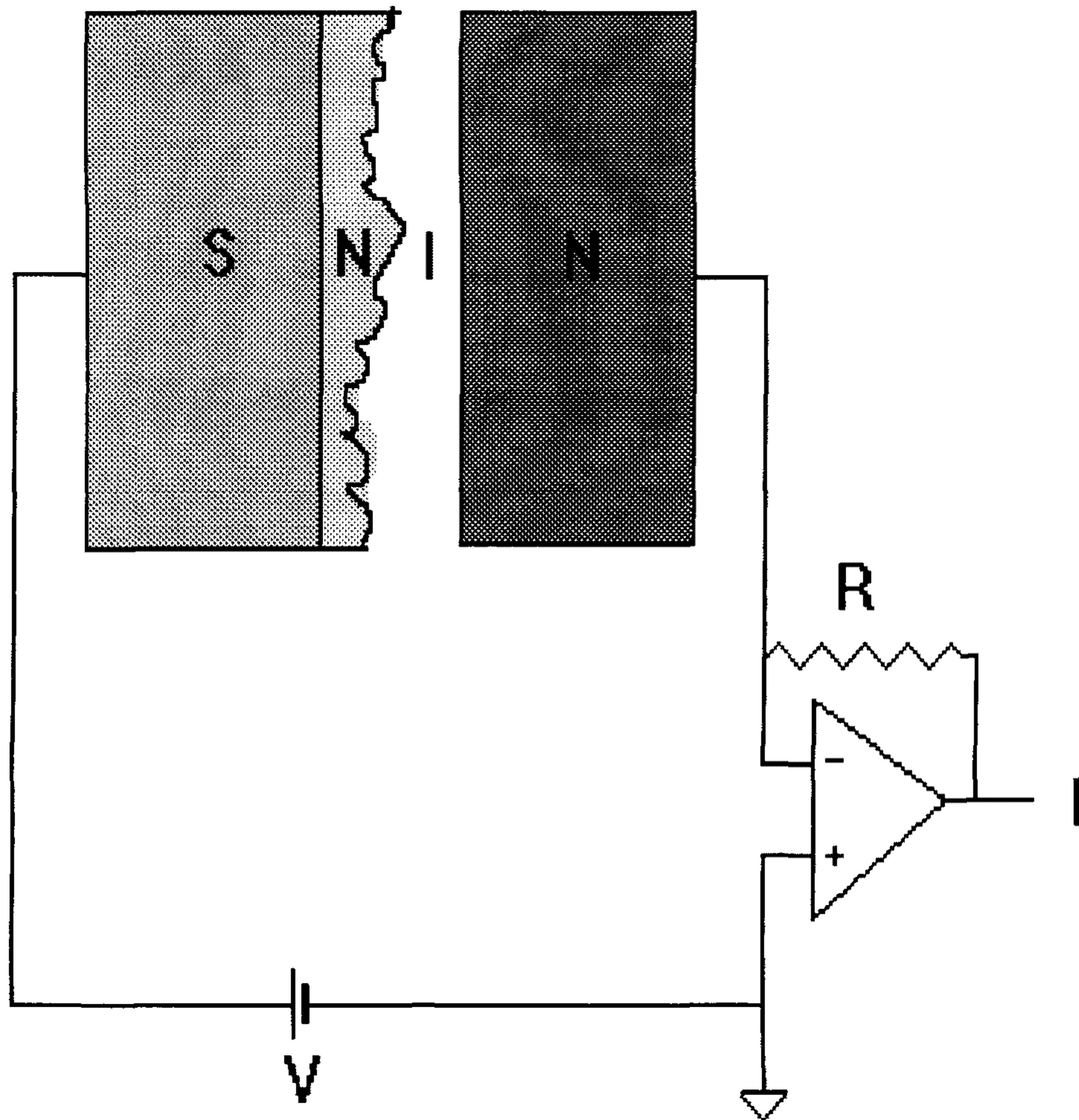


그림 3-1-3. 초전도체위에 금속층이 덮혀있고 그 위에 터널링 접합이 형성되어 있다고 생각한 모델.

실험 결과와 잘 맞는 것을 알 수 있다. dI/dV curve의 기울기 뿐만 아니라 peak의 위치도 실험 결과와 잘 맞는다.

한편 그림 3-1-1의 (c)와 같이 두 개의 peak가 보인 것을 설명하기 위하여 에너지 간격이 다른 두 지역이 동시에 터널링 접합을 형성하고 있다고 가정하였다. 즉 식(3)를 사용하되 r 의 비율만큼은 금속층 밑에 에너지 갭이 48 meV인 $\text{HgBa}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{8+\delta}$ 가 존재하고 나머지 부분인 $(1-r)$ 의 부분은 금속층이 에너지 갭이 22 meV인 초전도체 위에 덮여있다고 가정하였다. $r = 0.5$ 로 하여 두 지역이 같은 비율로 섞여있다고 생각하여 계산한 결과는 그림 3-1-4의 (b)로 역시 갭 바깥쪽을 제외하면 실험 결과와 잘 일치한다. 이와 같이 실험 결과와 잘 일치하는 것은 위의 가정을 뒷받침해주며 이로써 $\text{HgBa}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{8+\delta}$ 초전도체는 $\Delta_1 = 48$ meV와 $\Delta_2 = 22$ meV의 두 개의 에너지 간격을 가지고 있다고 생각할 수 있다.

이처럼 두 개 이상의 에너지 간격이 나오는 이유로는 에너지 간격의 이방성 혹은 전이 온도가 다른 초전도상에 의한 영향을 생각할 수 있으므로 전이 온도가 낮은 다른 초전도상이 존재하는가를 확인하기 위하여 시료의 magnetic susceptibility를 측정하였다. 그림 3-1-5는 Quantum Design SQUID magnetometer를 이용하여 측정한 결과이다. 그림 3-1-5에서 보는 바와 같이 전이 온도는 132 K이며 특히 다른 초전도상에 의한 영향을 볼 수가 없다. 이와 같은 실험 결과로부터 다른 두 개의 에너지 간격이 나온 것은 이방성에 의해 다른 에너지 간격을 가지고 있는 시료 위에 금속층이 덮여있는 것이라고 생각할 수 있다.

4. 결 론

저온 STM을 이용하여 헬륨 온도(4.2 K)에서 point contact spectroscopy 형식으로 $\text{HgBa}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{8+\delta}$ 다결정의 에너지 간격을 측정하였다. BCS 이론에 잘 맞

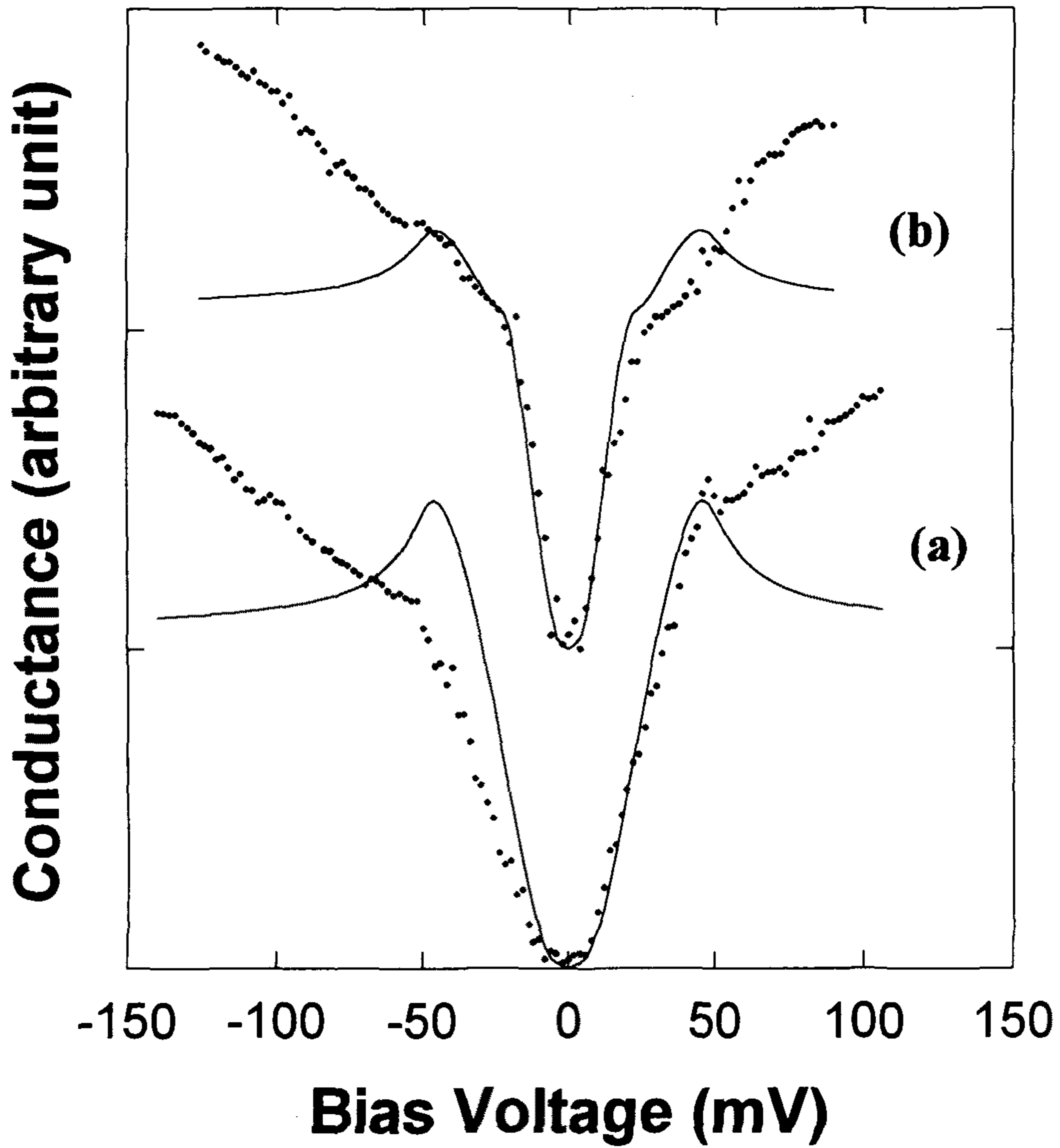


그림 3-1-4. 그림 3-1-2의 (b)와 (c)를(점선) proximity 모델로 계산한 결과(실선)와 비교한 그림. (a)에서 $\Delta = 48$ meV 이고 (b)에서는 $\Delta_1 = 48$ meV, $\Delta_2 = 22$ meV 이다.

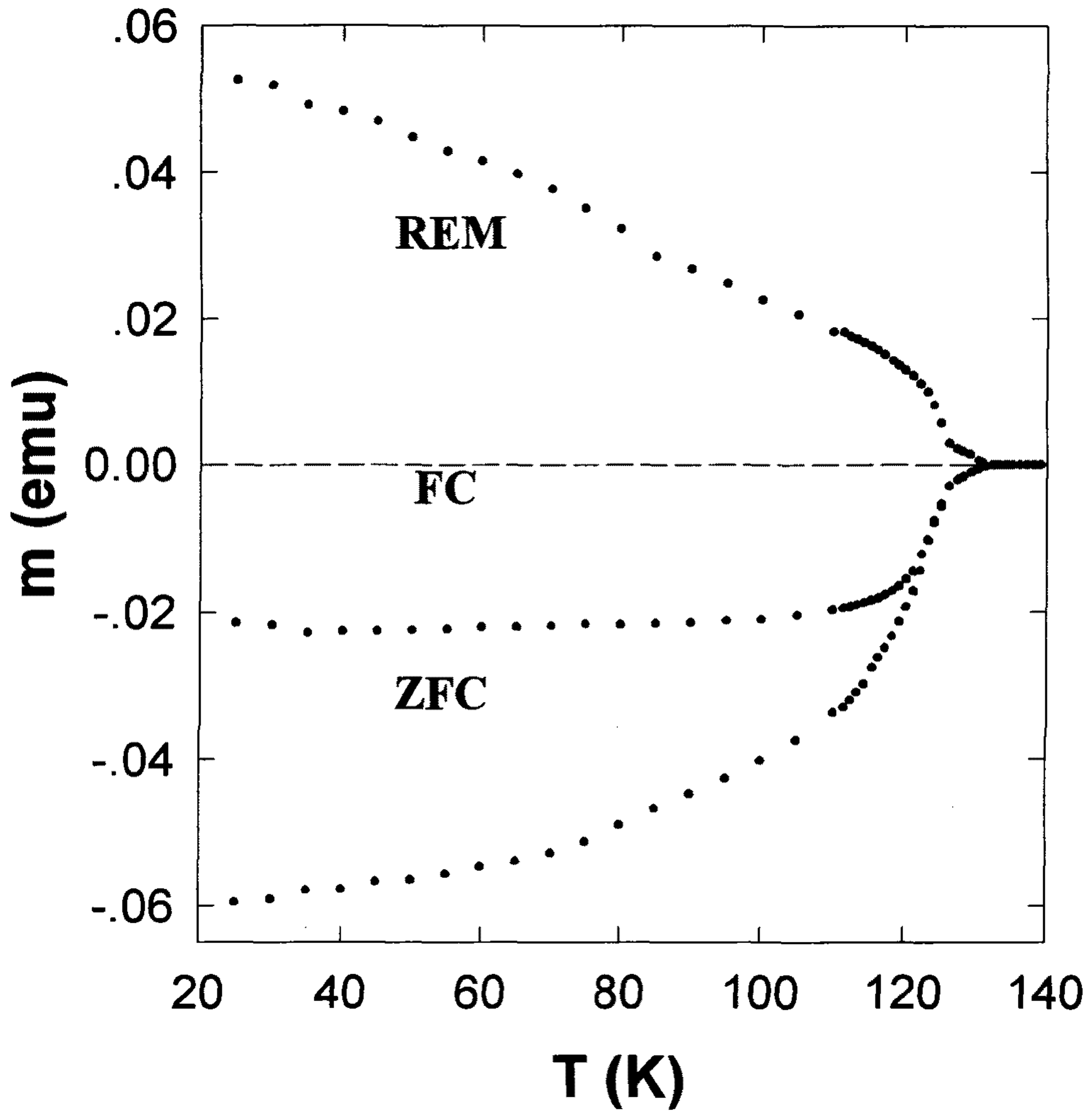


그림 3-1-5. Hg 초전도체에 대한 magnetic susceptibility 결과. 임계 온도는 약 132 K 이고 다른 초전도상은 보이지 않는다.

는 터널링 스펙트럼이 얻어졌으며 계산된 결과와 비교해보면 에너지 간격은 약 48 meV 이고 $2\Delta/k_B T_C = 8.5$ 이다. 위치를 변화시켜가면서 터널링 스펙트럼을 조사하면 에너지 간격 위치에 약간의 cusp이 있고 에너지 간격 안쪽이 거의 선형적인 모양을 가지는 등 BCS 와 다른 결과가 나오는 곳이 있고 적어도 두 개의 에너지 간격이 있는 것으로 생각된다. 이 시료의 표면이 금속층으로 덮여 있고 이 금속층의 두께가 일정한 분포를 하고 있다고 가정하면 에너지 간격 안쪽의 선형적인 터널링 특성을 설명할 수 있고 이러한 가정하에 얻은 에너지 간격은 각각 $\Delta_1 = 48$ meV 와 $\Delta_2 = 22$ meV ($2\Delta/k_B T_C = 8.5$ 와 3.9) 이다.

HgBa₂Ca₂Cu₃O_{8+δ} 초전도체 위에 덮여있다고 가정한 금속층에 대해서는 아직 알고 있지 못하며, 두 개의 에너지 간격이 나온 이유도 아직 에너지 간격의 이방성 때문인지 다른 초전도상에 의한 것인지 확실하지는 않다. 그러나 위의 실험 결과가 잘 일치하는 것을 보면 HgBa₂Ca₂Cu₃O_{8+δ} 초전도체는 두 개의 에너지 간격을 가진 s-wave 초전도체일 가능성이 크며, 이것에 대한 확실한 이해를 위해서는 단결정으로 방향에 따른 터널링 실험을 하는 것이 중요하다.

제 2 절 Borocarbide 계열의 에너지 간격 측정

1. 서 론

Nagarajan⁽¹⁹⁾ 등에 의해 Ni을 기본으로 하는 4원소 금속간 화합물(Y-Ni-B-C)에서 초전도성이 발견된 이후에 4원소 금속간 화합물에 대한 연구가 많이 진행되어 왔다. 최근에 Cava등에⁽²⁰⁾ 의해서 금속간 화합물인 Y-Pd-B-C에서 임계온도가

약 23K인 초전도 현상이 발견되었고 이와 비슷한 물질인 R-Ni-B-C(R = Y, Tm, Er, Ho, and Lu)^(21,22)에서도 초전도 현상이 발견되어(전이 온도는 약간 낮은 16.5K) 이 물질의 성분(RNi₂B₂C)과 구조 등이 잘 알려져 있다.

지금까지 금속간 화합물에 대한 연구는 많이 진행되어왔다. 2원소 금속간 화합물인 A15 초전도체(Nb₃Ge)에서 고온초전도체를 제외한 가장 높은 임계온도인 23K가 발견되었고, 3원소 금속간 화합물에서도 이 보다는 낮지만 대부분의 2원소 금속간 화합물보다는 높은 임계온도가 발견되었다. Boron은 질량이 작으므로 높은 phonon frequency와 높은 임계온도가 기대되어 많은 Boride가 만들어졌고 MRh₄B₄의 경우 M이 Y, Th, Nd, Sm, Er, Tm, Lu일 때는 초전도 현상을 보이고 M이 Gd, Tb, Dy, Ho일 때는 ferromagnetic임이 밝혀졌다. 특히 3원소 금속간 화합물의 경우 높은 임계온도와 높은 upper critical field외에 magnetic rare earth(RE) ion이 포함된 초전도체가 존재하여 초전도 현상과 magnetic long range order 사이의 관계를 연구하는데 많은 연구 대상이 되어왔다.

Cava등은 A15 초전도체와 임계온도가 비슷하고 ferromagnetic 물질인 Ni을 포함한 4원소 금속간 화합물(RNi₂B₂C)을 합성하였다. RNi₂B₂C는 body centered tetragonal구조이고 R-C 층과 Ni₂B₂ 층이 번갈아 가며 존재하는 층상 구조로 ThCr₂Si₂ 구조나 고온초전도체와 비슷하다. 이러한 유사성과 상대적으로 높은 임계온도로 인해서 이 물질이 전자-포논 상호작용에 의한 pairing을 하고 BCS 이론에 따르는 기존의 저온초전도체에 속하는 물질인지 아니면 고온초전도체와 같은 새로운 초전도체인지에 대해 관심이 집중되었다. 페르미 에너지에서의 상태밀도와 임계온도 등을 측정하면 이 물질이 BCS이론을 따르는가에 대한 추정을 할 수가 있는데 보통의 경우 페르미 에너지에서의 상태밀도가 이와 비슷한 임계온도를 가지는 저온초전도체의 그것과 비슷하거나 약간 작아서 기존의 전자-포논 상호작용에 의

한 BCS 이론으로 설명할 수 있다고 보고되어있다.⁽²³⁾ 그러나 아직은 실험하는 방법이나 측정된 그룹에 따라서 차이가 있어서 일반적으로 비열 측정에 의한 실험은 상대적으로 낮은 상태밀도가 얻어져 $\gamma = 8.9 - 22 \text{ mJ/mol K}^2$ 정도이고^(24,25), 수송 특성과 magnetic 성질의 측정에 의한 결과는 $\gamma = 35 \text{ mJ/mol K}^2$ ⁽²⁶⁾ 정도로 높은 상태밀도를 나타내고 있다. 비열 측정에서 구한 $\Delta C/k_B T_c$ 도 대략 1.8 에서 3.6 정도로 차이가 있으나 모든 실험 결과가 BCS weak coupling 값인 1.43보다는 커서 이 물질이 strong coupling 초전도체임을 나타내고 있다. 임계온도의 압력에 대한 의존성도 있어서 시료에 따라 부호도 다르고 크기도 다르지만 약 10^{-5} K/bar 정도의 변화를 보이고 있다. 그리고 층상 구조를 가지고 있는 것과 같이 실제로 이 시료가 2차원적인 성질을 가지고 있는가 혹은 3차원적인 성질을 갖는가에 대한 연구도 진행되었는데 고온초전도체와는 달리 구조적으로는 층상 구조를 가지고 있지만 전자 구조 계산 결과나 단결정에 대한 수송특성 등의 결과를 보면 3차원적인 특성을 가지고 있다고 알려져있다.

또한 R이 Y, Lu 등 nonmagnetic 원소 뿐만 아니라 Tm, Er, Ho 등 magnetic 원소 일 때도 초전도 현상이 존재하여 RRh_4B_4 나 RMo_6S_8 등과 같이 초전도 현상과 magnetism 사이의 관계를 밝히는데 좋은 시료가 될 수 있다.

지금까지 이 시료(RNi_2B_2C)의 많은 물리적 성질들(Photoemission spectroscopy⁽²⁷⁾, 비열 측정, 자기적 성질⁽²⁸⁾ 등)이 측정되었으나 이 시료의 임계온도나 critical field 에 가깝지 않은 초전도 상태에서의 물리적 성질은 비교적 적게 알려져 있다. 특히 초전도 현상의 메커니즘이나 특성을 이해하는데 중요한 전자의 상태밀도나 에너지 갭에 대해서는 아직 잘 알려져 있지 않다. 따라서 본 연구에서는 4원소 금속간 화합물의 하나인 YNi_2B_2C 와 $LuNi_2B_2C$ 의 4.2K에서의 터널링 특성과 그 온도 의존성에 대하여 조사하여 이 시료들의 에너지 갭과 초전도체의 상태

밀도를 알아보고 이것이 BCS 이론을 따르는가에 대해 연구하였다.

2. 실험 방법

본 실험에서는 Ames Lab.의 D. C. Johnston 그룹에서 만든 $\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$ 와 $\text{LuNi}_2\text{B}_2\text{C}$ 단결정을 시료로 사용하였다. $\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$ 와 $\text{LuNi}_2\text{B}_2\text{C}$ 단결정은 reference[29]에 나와있는 방법으로 Ni_2B flux로부터 만들어졌다.

실험 방법은 제 1 절에서와 같으나 시료의 표면은 아무런 작업을 거치지 않고 헬륨 분위기에서 실험하였다. 접합 저항은 약 $1 \text{ M}\Omega$ 정도로 하였으며 시료의 (001) 방향으로 터널링이 일어나도록 하였다. dI/dV 는 보통의 lockin technique를 사용하였으며 modulation 전압은 $50 \mu\text{V}$, sweep 시간은 약 50초가 되게 하였다. 온도 변화는 Oxford 사의 ITC4 temperature controller 와 되먹임이 없이 단순히 일정한 전류를 흘려주어 온도가 안정될 때까지 기다리는 두 가지 방법을 사용하였는데 되먹임 없이 일정한 전류를 흘려주는 방법이 오히려 잡음 특성이 더 좋았다. 온도는 상온에서의 저항이 100Ω 인 Ge 센서를 사용하여 측정하였다.

3. 결과 및 토의

그림 3-2-1은 2 Oe 의 자기장하에서의 $\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$ 와 $\text{LuNi}_2\text{B}_2\text{C}$ 의 Meissner 효과이다. 시료가 매우 얇으므로 demagnetization에 의한 보정을 무시하기 위하여 자기장은 c 축 방향에 수직하도록 하였다. 그림에서 보는 바와 같이 임계온도는 15.4K ($\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$)와 15.7K ($\text{LuNi}_2\text{B}_2\text{C}$)이고 Meissner 비율은 각각 18% ($\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$)와 22% ($\text{LuNi}_2\text{B}_2\text{C}$)이다. 전이 구간 δT_c 를 Meissner 효과가 각각 최고값의 10% 와 90% 에 이르는 온도의 차이로 정의하면, 전이 구간은 각각 $\delta T_c = 0.6\text{K}$ ($\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$) 와 0.5K ($\text{LuNi}_2\text{B}_2\text{C}$) 이다.

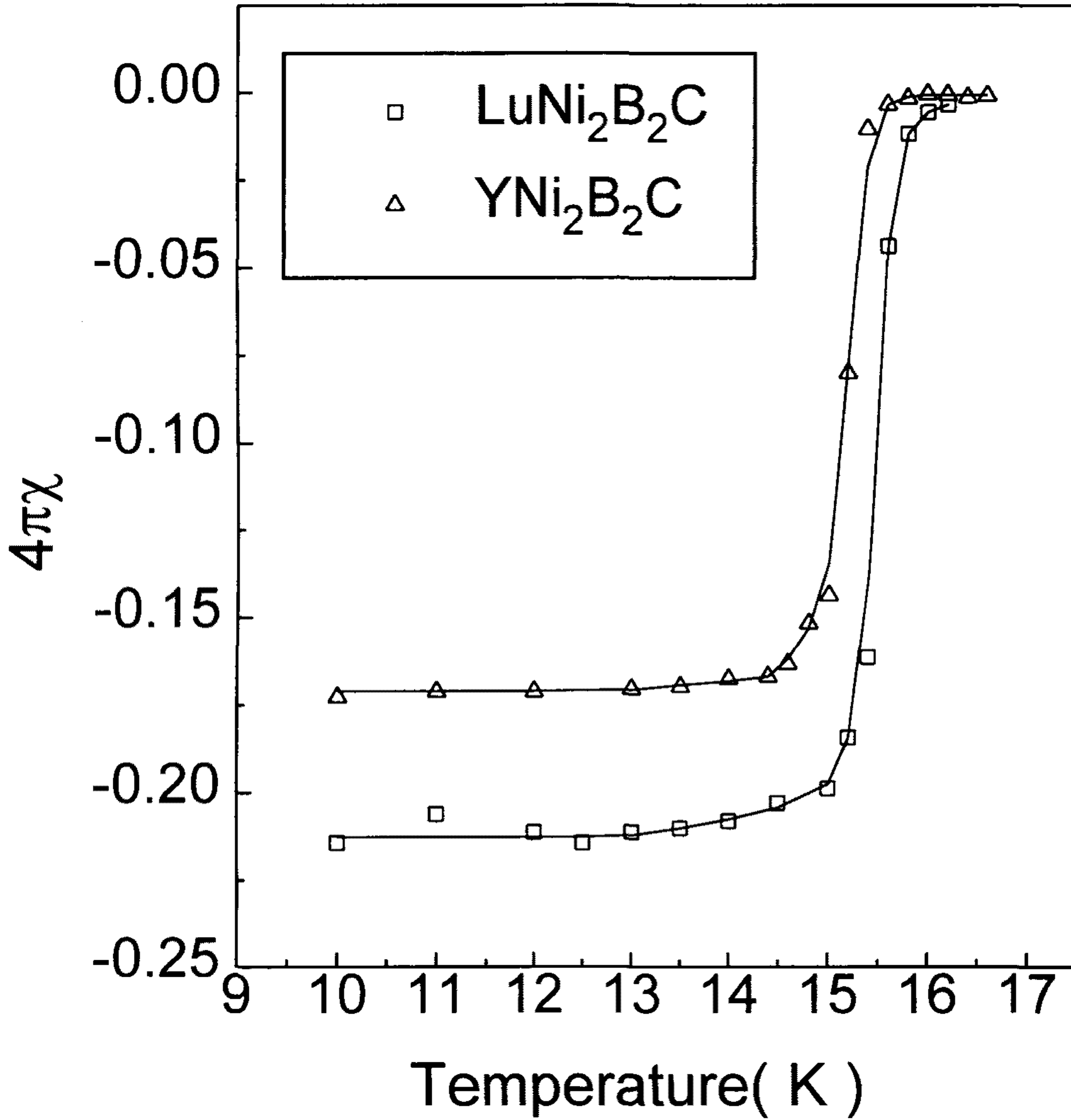


그림 3-2-1. YNi₂B₂C 와 LuNi₂B₂C 단결정에 대한 magnetic susceptibility 결과
임계 온도는 각각 15.4 K 와 15.7 K 이다.

그림 3-2-2는 4.2K에서 $\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$ 와 $\text{LuNi}_2\text{B}_2\text{C}$ 의 전형적인 터널링 컨덕턴스를 보여주고 있다. dI/dV curve를 보면 에너지 간격에 의한 구조를 명확하게 볼 수 있으며, 한 번 에너지 간격에 의한 구조가 관찰되면 안정되고 재현성 있게 나타났다. 경우에 따라 차이는 있으나 깨끗한 곳을 보는 경우 약 $8000\text{\AA} \times 8000\text{\AA}$ 정도의 면적에서 약간의 에너지 간격의 차이($0.1 - 0.2 \text{ meV}$)를 제외하고는 재현성 있게 관찰되었다.

4.2K에서 관찰한 $\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$ 와 $\text{LuNi}_2\text{B}_2\text{C}$ 에 대한 dI/dV curve의 특징은 다음과 같다.

a) 제로 바이어스 컨덕턴스가 크다. $\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$ 의 경우 normal 컨덕턴스의 약 70%이고 $\text{LuNi}_2\text{B}_2\text{C}$ 의 경우 약 30%이다.

b) dI/dV 가 전압의 극성에 대해 대칭적이고 20 meV까지 측정하더라도 고온초전도체와는 달리 background 컨덕턴스가 일정하다. 이로써 4원소 금속간 화합물 초전도체는 고온초전도체와는 달리 BCS와 같은 에너지 갭을 가지고 있을 것이라고 추정할 수 있다.

c) 그러나 에너지 갭 안쪽을 보면 고온초전도체와 같이 거의 선형적인 컨덕턴스가 나타나고 있다.

이와 비슷한 특징을 가지는 터널링 컨덕턴스가 3원소 금속간 화합물 초전도체인 PbMo_6S_8 와 $\text{Cu}_{1.8}\text{Mo}_6\text{S}_8$ 에서도 보고되었다.⁽³⁰⁾ 3원소 금속간 화합물 초전도체의 경우 $2\Delta/k_B T_C = 3.9 - 4.8$ 정도로 weak coupling 값보다 좀 크고 측정하는 온도를 고려하더라도 에너지 간격의 broadening이 크며 터널링 스펙트럼에서 에너지 간격에 의한 구조가 없어지는 온도로부터 추정한 임계온도는 약 3K 정도 차이가 있다. 3원소 금속간 화합물 초전도체에서 에너지 간격 안쪽의 심한 broadening이 생기는 이유로는 보통 두 가지를 생각하고 있는데 우선 첫번째로는 터널링 barrier의 형성

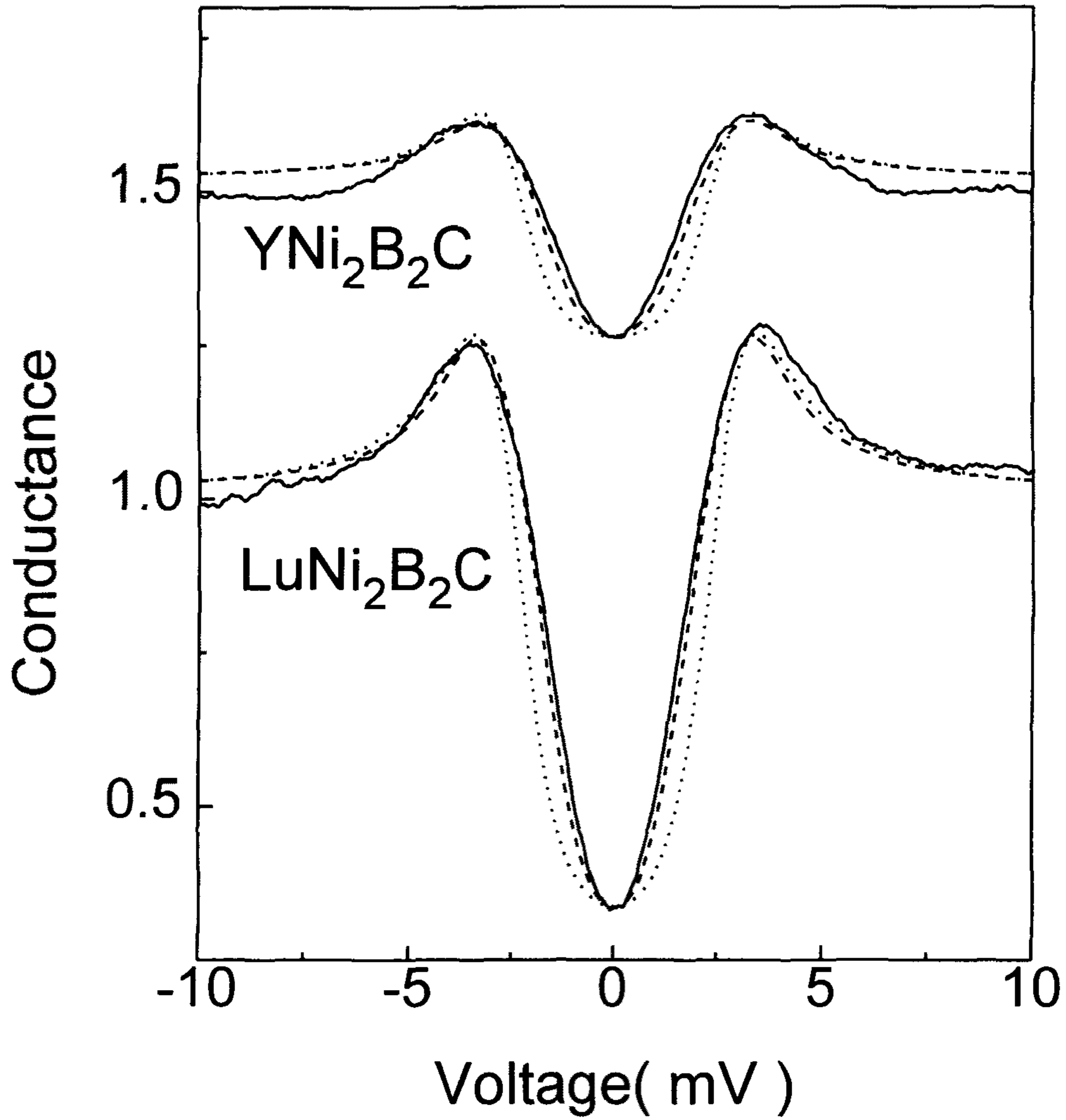


그림 3-2-2. $\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$ 와 $\text{LuNi}_2\text{B}_2\text{C}$ 단결정의 실험 결과와 BCS 이론에 의한 계산 결과, 그리고 proximity 모델에 의한 결과를 비교한 그림. 실선은 실험 결과, 점선은 BCS 이론에 의한 결과, broken line은 proximity 모델에 의한 결과이다.

이 좋지 않아서 완전한 터널링 barrier가 형성되지 않았을 경우이고 두번째는 tip이 접촉하는 면적에 압력을 가하는데 이 초전도체들은 압력에 대한 임계온도의 변화가 아주 크므로 가하는 압력이 일정한 분포를 가지고 있으면, 에너지 갭도 접촉 면적 내에서 일정한 분포를 가지게 되고 따라서 broadening이 심하게 나타난다는 것이다. 그리고 3원소 금속간 화합물의 경우 터널링 스펙트럼에서 임계온도를 측정하면 약 2 - 3 K 정도 실제의 임계온도와 차이가 나는데 이러한 차이도 압력에 의한 변화로부터 설명할 수 있다. 예를 들면 $\text{Sn}_{1.2}\text{Mo}_6\text{S}_8$ 의 경우 $dT_c/dP = 10^{-4}$ K/bar 로 매우 크나 우리가 측정한 4원소 금속간 화합물의 경우 압력에 따른 임계온도의 변화가 3원소 금속간 화합물에 비해 1/10 정도로 작으므로 압력의 분포에 의한 영향은 상대적으로 작을 것 같다. 그리고 우리가 사용한 시료가 단결정임을 감안하면 에너지 갭의 이방성이 갭의 broadening을 주었을 가능성은 작다고 할 수 있다. 에너지 갭 안쪽에 선형적인 컨덕턴스가 나올 수 있는 또 하나의 가능성은 이 시료가 s-wave 의 대칭성을 가지고 있지 않는 경우이다. 일반적으로 초전도체의 질서 상수가 어느 쪽으로 0이 되는 방향이 있는 경우 방향에 따라 평균된 터널링 컨덕턴스를 구하면 에너지 간격 안쪽에 선형적인 모양이 나올 수 있다. 그러나 터널링 컨덕턴스의 모양이 갭 안쪽의 broadening이 심하다는 것 외에는 이상적인 저온초전도체의 모양과 일치하고 s-wave가 아닌 대칭성을 지지하는 다른 실험 결과가 아직 없으므로 이것은 앞으로의 논의에서 제외하도록 한다. 따라서 에너지 간격 안쪽의 선형적인 컨덕턴스나 꽤 크게 나온 제로 바이어스 컨덕턴스는 4원소 금속간 화합물 초전도체의 표면이 금속층으로 덮여있을 가능성을 나타내고 있다.

이 시료의 에너지 간격을 추정하기 위하여 3장 2절의 식 (1)의 상태밀도와 시료의 표면에 금속층이 덮여있다고 가정한 식 (3)를 사용하여 dI/dV curve를 fitting 하였다. 그림 3-2-2의 결과를 보면 $\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$ 와 $\text{LuNi}_2\text{B}_2\text{C}$ 모두 제로 바이어스 컨덕

턴스가 크게 나왔는데 이 값이 터널링 접합에 따라 다르게 나오는 것을 보면 이것이 시료 자체의 특성이라기 보다는 터널링 접합이 완전하게 이루어지지 않아서 leakage 전류에 의한 영향이라고 생각한다. 따라서 fitting 할 때는 일정한 컨덕턴스가 금속적인 경로에 의한 컨덕턴스라고 가정하고 계산하였다. 그림 3-2-2의 실선은 실제 실험 결과이고 점선은 3장의 1절의 식(1)과 같이 Dynes의 smeared 된 상태밀도에 의한 계산 결과이며 broken line은 밑에서 계산할 proximity 모델에 의한 계산 결과이다. 그림 3-2-2를 보면 Dynes의 smeared된 상태밀도에 의한 터널링 컨덕턴스가 실험과 잘 일치하는 것을 볼 수 있다. 이때의 에너지 간격 Δ 와 pair breaking parameter Γ 는 각각 $\Delta = 2.55$ meV, $\Gamma = 0.26$ meV(YNi₂B₂C) 와 $\Delta = 2.65$ meV, $\Gamma = 0.27$ meV (LuNi₂B₂C) 이다. 이러한 BCS 상태밀도에 의해 얻어진 에너지 간격 대 임계온도의 비율 $2\Delta/k_B T_C$ 는 YNi₂B₂C와 LuNi₂B₂C 모두 약 3.9 정도로 BCS의 weak coupling limit보다 약간 크다. 또한 BCS이론에 의해 구한 이 에너지 간격은 Ames. Lab.의 D. C. Johnston 그룹이 비열 측정에 의해 얻은 에너지 간격과($\Delta(0) = 29$ K)와도 잘 일치한다. 그러나 그림 3-2-2에서 보는 바와 같이 온도에 의한 broadening효과나 pair breaking 효과를 고려하더라도 에너지 간격 안쪽에서는 실험 결과와 계산 결과가 큰 차이를 보인다. 즉 갭 안쪽에서의 선형적인 컨덕턴스는 pair breaking parameter Γ 를 크게 하더라도 단순한 BCS의 상태밀도로는 설명할 수 없다.

따라서 갭 안쪽에서의 거의 선형적인 컨덕턴스를 설명하기 위하여 3.1절의 HgCa₂Ba₂Cu₃O_{8.6} 와 같은 가정을 하였다. 즉 이 시료의 에너지 간격은 isotropic하고 이 시료 표면의 일부가 금속층으로 덮여있으며 그 두께는 Gauss 분포를 한다고 생각하였다. 여기에 온도에 의한 효과를 고려하고 금속층의 coherence 길이의 온도 의존성을 무시하면 다음과 같다.

$$\Delta(x) = \Delta_0 \exp\left(\frac{-x}{\xi_N}\right)$$

$$\frac{dI}{dV}(V) \propto 1/d \int_0^d \int_{-\infty}^{\infty} \exp\left(\frac{-x^2}{2\sigma^2}\right) \operatorname{Re}\left\{\frac{|E|}{\sqrt{E^2 - (\Delta(x) + i\Gamma)^2}}\right\} \left\{\cosh\left(\frac{E+V}{2kT}\right)\right\}^{-2} dE dx$$

이 식을 이용하여 계산한 결과가 그림 3-2-2의 broken line이다. 이 때 사용한 변수는 금속층의 두께 $d = 2000\text{\AA}$, 두께의 분포 변수 $\sigma = 700\text{\AA}$, 금속층의 coherence 길이 $\xi = 1000\text{\AA}$ 이다. 그림 3-2-2를 보면 실험 결과와 계산 결과가 에너지 간격 안쪽에서도 잘 일치하는 것을 볼 수 있다. 이러한 proximity 모델에 의해서 4.2K에서 얻어진 에너지 간격은 각각 $\Delta_0 = 3.2\text{meV}$ (YNi₂B₂C)와 $\Delta_0 = 3.3\text{meV}$ (LuNi₂B₂C)이다. 이때 pair breaking parameter Γ 는 $0.05\Delta(x)$ 를 취하였다. 이 에너지 간격의 값은 Dynes의 smeared된 상태밀도에 의한 값보다 훨씬 크며 $2\Delta/k_B T_c$ 는 4.9로 이 모델에 의하면 이 시료가 strong coupling 초전도체임을 나타내고 있다.

그림 3-2-3은 YNi₂B₂C의 온도에 따른 컨덕턴스의 변화를 보여주고 있다. 온도가 증가함에 따라 당연히 제로 바이어스 컨덕턴스가 커지고 있으나 터널링이 안정되게 일어나지 않아서 에너지 간격의 온도 의존성을 측정하기는 힘들다. 이와 같이 온도를 4.2K 이상으로 올렸을 때 터널링이 불안한 것은 시료와 tip등 STM의 본체가 열적으로 평형 상태가 되어 있지 않아서 터널링 barrier가 안정되게 형성되지 않기 때문이다. 보다 안정된 터널링 컨덕턴스의 온도 의존성은 LuNi₂B₂C의 경우에 얻어졌다. 그림 3-2-4는 LuNi₂B₂C 시료의 온도를 4.2K에서 13.5K까지 변화시키면서 터널링 컨덕턴스의 온도 의존성을 측정한 것이다. 비록 leakage 전류가 전혀

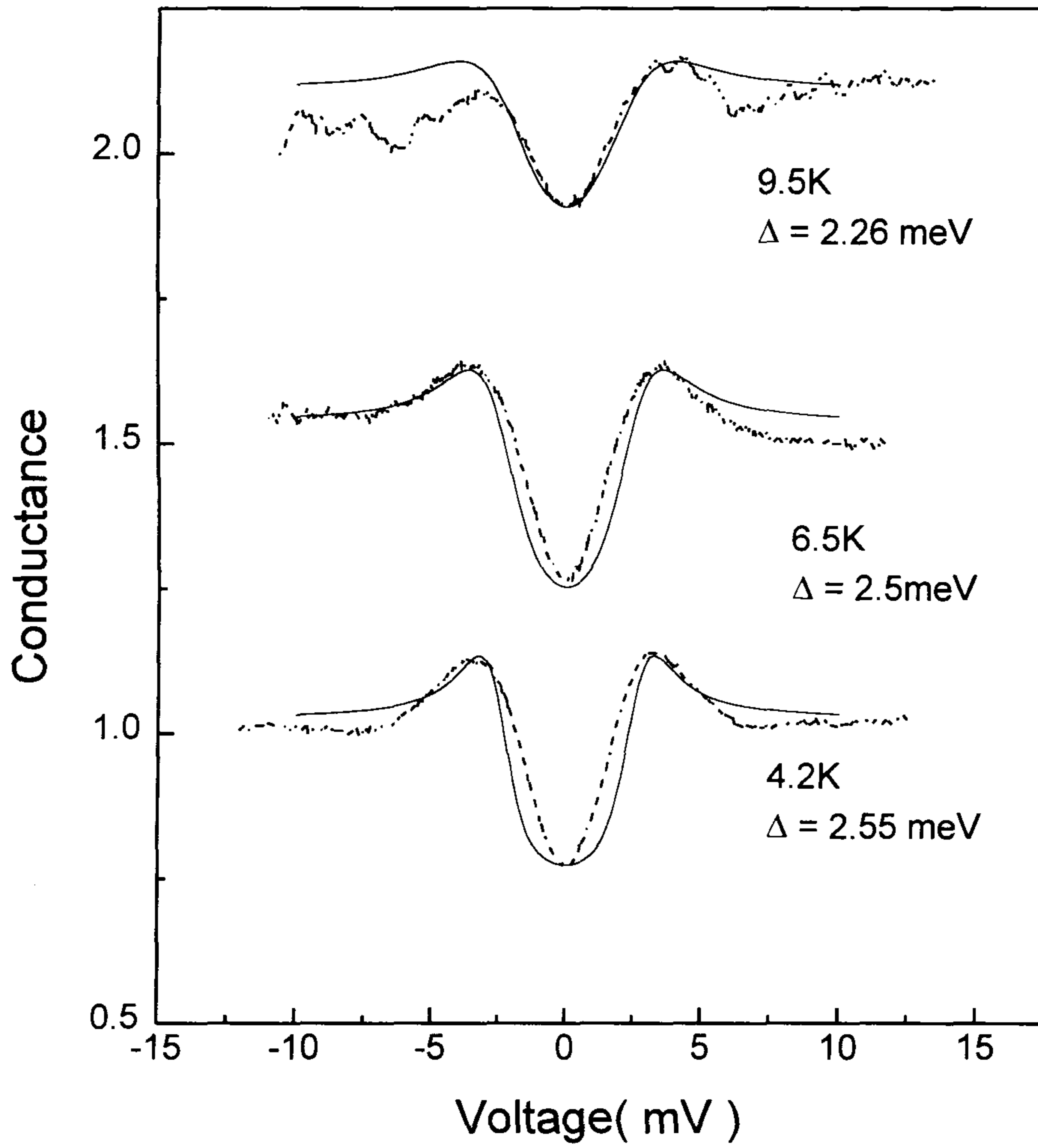


그림 3-2-3. YNi₂B₂C 단결정에 대한 터널링 컨덕턴스의 온도 의존성.

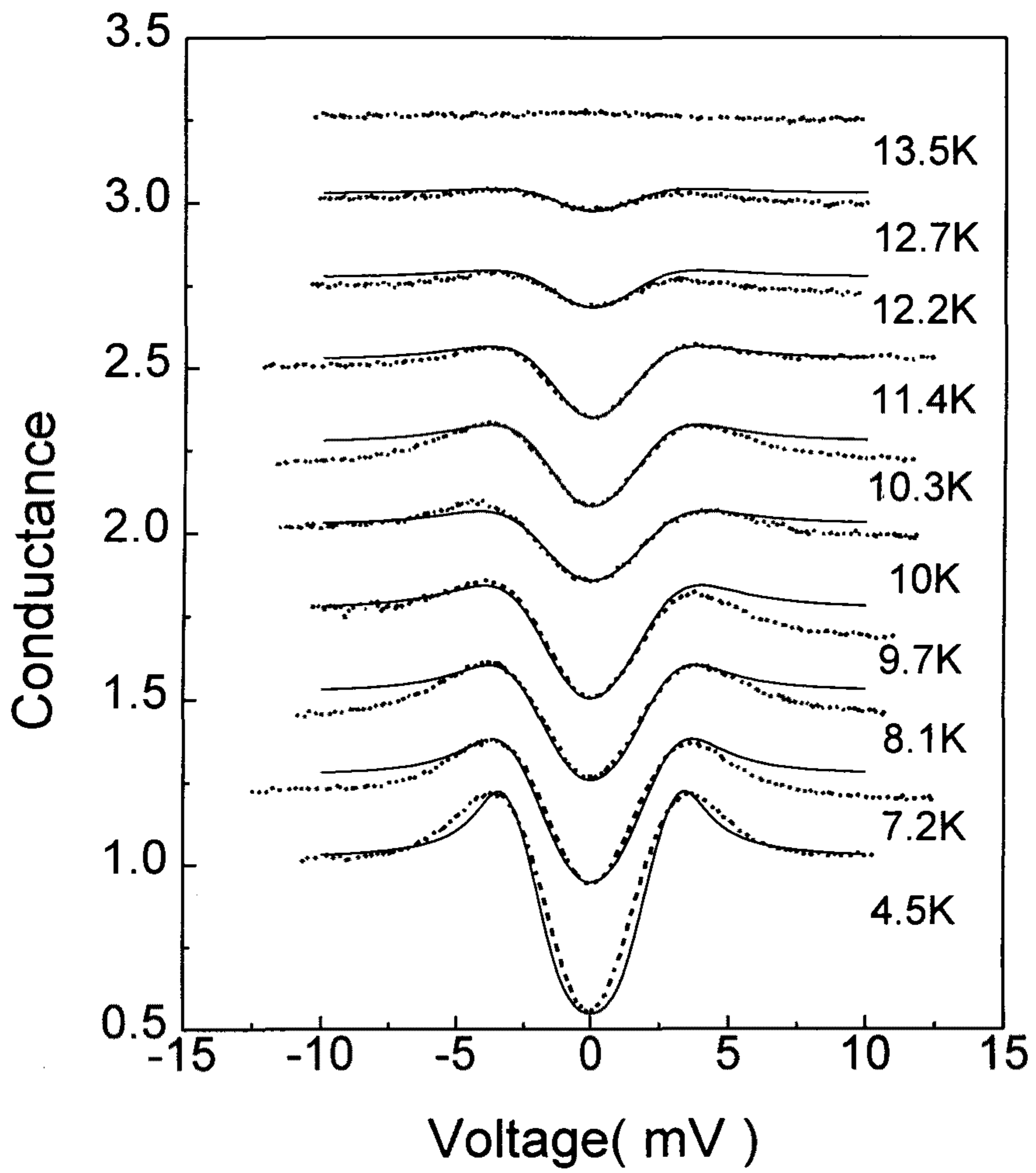


그림 3-2-4. LuNi₂B₂C 단결정에 대한 터널링 컨덕턴스의 온도 의존성

없다고 가정했을 때보다 제로 바이어스 컨덕턴스는 크게 나와서 leakage에 의한 전류는 어느 정도 있는 것으로 생각되지만 에너지 갭에 의한 구조는 명확히 관찰할 수 있다. 온도가 증가함에 따라 온도에 의한 broadening 이 점점 커지는 것을 관찰할 수 있다. 그림 3-2-4에서 점선은 실험 결과이고 실선은 위의 Proximity 모델에 의한 fitting 이다. 특이한 점은 13.5 K 이상의 온도에서는 에너지 갭에 의한 구조를 거의 볼 수가 없다는 점이다. 그림 3-2-1의 magnetic susceptibility 측정 결과를 보면 $\text{LuNi}_2\text{B}_2\text{C}$ 의 임계온도는 15.7K로 그 아래 온도에서는 초전도 상태인 것을 알 수 있으나 그림 3-2-4의 터널링 실험 결과는 온도가 13.5K를 넘으면 터널링 컨덕턴스가 거의 일정해서 에너지 간격에 의한 구조를 구별해내는 것이 거의 불가능해진다. 이것이 단지 온도가 높아지면서 broadening이 커져서 이 실험의 분해능으로 에너지 간격에 의한 구조를 관찰할 수 없었다고 생각하기에는 13.5 K 는 비교적 낮은 온도이다. 그러나 dI/dV curve를 자세히 살펴보면 제로 바이어스 근방에 약간의 broad한 peak가 있고 이것의 width가 대략 에너지 간격 정도 되는 것을 알 수 있다. 이것으로부터 13.5 K 이상에서 에너지 간격에 의한 모양이 보이지 않고 약간의 broad한 peak 가 보이는 것은 Andreev reflection⁽³¹⁾에 의한 것으로 생각할 수 있다. 이 실험은 완전한 진공 터널링이 아니라고 생각되며 온도에 따라 열팽창을 하게 되므로 barrier 크기의 변화가 있을 수 있고 13.5 K 이상에서는 barrier의 크기가 작아져서 Andreev reflection에 의한 영향이 커졌을 것이라고 생각한다.

그림 3-2-5는 온도에 따른 터널링 컨덕턴스를 위에서 사용한 proximity 모델을 써서 fitting하였을 때 에너지 간격의 온도 의존성이다. $\text{LuNi}_2\text{B}_2\text{C}$ 의 에너지 간격의 온도 의존성은 그림에서 보는 바와 같이 임계온도 근방을 제외하면 BCS 이론에 의한 에너지 갭의 온도 의존성과 거의 일치한다. 임계온도 근방에서 BCS 온도 의

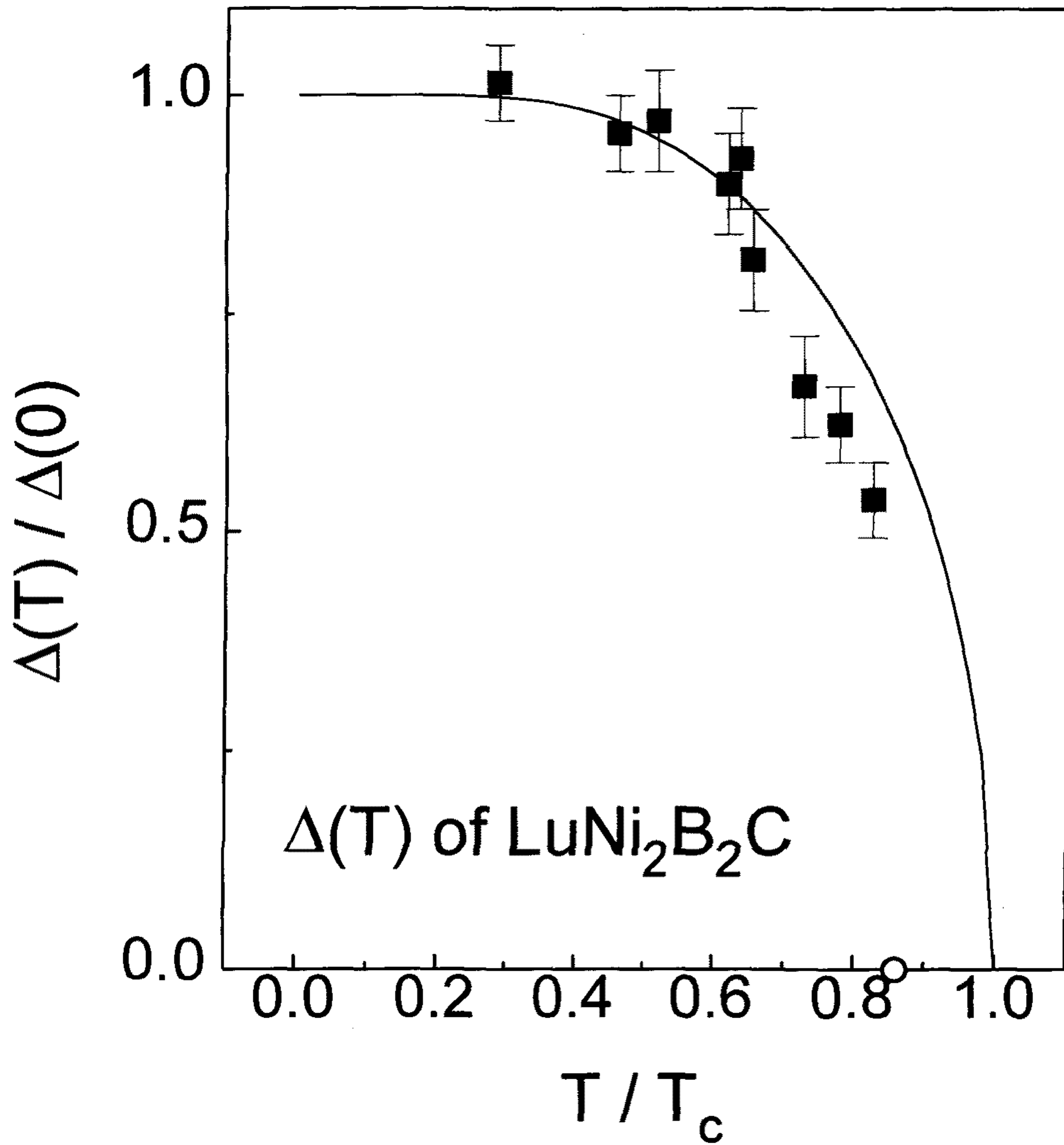


그림 3-2-5. $\text{LuNi}_2\text{B}_2\text{C}$ 단결정의 에너지 간격의 온도 의존성. 낮은 온도에서는 BCS 이론과 잘 맞지만 임계 온도 근처에서는 달라진다.

존성과 약간 차이가 나는 이유는 아직 확실히 알 수 없으나 fitting 할 때 고려하지 않은 여러 가지 요인에 의한 것으로 생각된다. 예를 들면 contact 압력의 온도 의존성이라든지 barrier 크기의 온도에 따른 변화를 고려하지 않았고, 또한 금속층의 coherence 길이가 온도에 대해 일정하다고 가정하였으나 실제로는 이러한 양들이 온도에 따라 차이가 난다. 금속층의 coherence 길이의 온도 의존성은 깨끗한 금속의 경우 $1/T$ 에 비례하고 더러운 금속의 경우 $1/T^{1/2}$ 에 비례하므로 온도가 증가함에 따라 감소한다. coherence 길이가 짧으면 같은 두께에 대해 금속층에 생긴 에너지 갭이 작아지므로 그림 3-2-5와 같은 온도 의존성이 나올 수 있다.

터널링 실험의 가장 큰 장점중의 하나는 실험 결과로부터 Eliashberg 함수인 $\alpha^2F(\omega)$ 를 계산해낼 수 있다는 것이다. 그러나 본 실험에서는 $\alpha^2F(\omega)$ 를 구하지 못했다. 그 가장 큰 이유로는 Point contact 접합이 저온에서 안정되기는 하지만 평면 접합만큼 안정되지는 못하므로 터널링 컨덕턴스의 작은 변화를 측정하기가 힘들기 때문이다. 따라서 기계적으로 보다 안정된 실험 장치를 만들거나 평면접합을 만들어 실험을 할 필요가 있다.

4. 결 론

저온 STM을 이용하여 point contact 형식으로 4원소 금속간 화합물인 YNi_2B_2C 와 $LuNi_2B_2C$ 단결정의 (001) 방향으로 터널링 실험을 하여 이 물질의 에너지 간격을 구하였다. 이 두 시료는 모두 하나의 갭 구조를 보여주고 있으며 에너지 간격 안쪽의 컨덕턴스가 선형적인 것을 제외하면 BCS 이론에 의한 결과와 잘 일치한다. 이 시료들이 단결정임을 감안하면 에너지 간격의 이방성이 이러한 선형적인 결과를 주었을 것이라고 생각하기는 힘들며, $HgBa_2Ca_2Cu_3O_{8+\delta}$ 와 마찬가지로 시료의 표면이 금속층으로 덮여 있다고 가정하면 실험 결과와 잘 일치한다. BCS 상태

밀도에 의해 얻어진 에너지 간격은 $\Delta = 2.55 \text{ meV}$ (YNi₂B₂C) 와 2.65 meV (LuNi₂B₂C) 이며, $2\Delta/k_B T_c = 3.9$ 이다. 한편 Proximity 모델에 의하여 구한 에너지 간격은 $\Delta = 3.2 \text{ meV}$ (YNi₂B₂C) 와 3.3 meV (LuNi₂B₂C) 로 $2\Delta/k_B T_c = 4.9$ 이다. 이와 같이 두 경우에 대해 에너지 간격의 차이가 크게 나므로 어느 값이 맞는 가를 알기 위해서는 시료의 성질을 변화시키지 않고 시료의 표면을 에칭하여 터널링 실험을 해볼 필요가 있다. 현재까지의 결과로 보면 BCS weak coupling 값보다 큰 것은 확실해 보인다. LuNi₂B₂C 단결정의 에너지 간격의 온도 의존성은 BCS 이론에 잘 맞으나 임계온도 근방에서 이론값보다 작게 나왔다. 이러한 차이는 금속층의 coherence 길이의 온도 의존성을 고려하지 않았기 때문인 것으로 생각된다.

제 3 절. Flux Dynamics 조사를 위한 MFM 제작

1. 서 론

Magnetic Force Microscope는 magnetic domain⁽³²⁾ 구조의 관찰에 많이 사용되어 왔던 Bitter pattern method와 달리 표면을 더럽히거나 손상을 주지 않고 손쉽게 100Å 정도의 분해능으로 시료를 관찰할 수 있다. 최근에는 지금까지 상온에 동작하는 Magnetic Force Microscope(MFM)를 이용한 연구에서 나아가 저온에서 작동하는 MFM을 제작하여 잘 알려지지 않은 고온 초전도체의 vortex의 구조와 동역학적 현상⁽³³⁾을 이해하는 데 이용하려는 시도가 나오고 있다. MFM에 앞서 Scanning Tunneling Microscope를 이용하여 고온초전도체의 vortex를 연구하려는 시도가 있었지만 나빠진 표면, Coulomb blockade, Schottky barrier, 표면에서 oder

parameter의 강하 때문에 쉽게 반복적으로 결과를 얻을 수 없었다. MFM은 STM을 이용한 표면관찰의 하나의 대안으로 관심을 끌고 있다.

시료와 탐침 사이의 상호작용은 10^{-10} N 정도로 약하기 때문에 Atomic Force Microscope처럼 cantilever의 휨을 직접 측정하는 대신 상호작용 때문에 변하는 공진 주파수 변화를 측정한다. 이제까지 알려진 측정하는 방법에는 Amplitude Modulation (AM 방식)⁽³⁴⁾과 Frequency Modulation (FM 방식)⁽³⁵⁾이 있다. AM 방식은 bimorph라고 불리는 PZT로 된 물질에 AC 전압을 가함으로서 그 밑에 붙어 있는 cantilever를 진동시킨다. 이 때 시료와 탐침 사이에 들어오는 상호작용 때문에 탐침과 시료로 이루어진 계의 고유진동수 변화를 가져오게 되고 이로 인한 진폭의 변화를 lock in amplifier을 이용하여 측정한다. 이와 달리 FM 방식은 외부에서 modulation을 주지 않고 cantilever를 Oscillator의 공진 주파수를 결정하는 element로 작동함으로 일정한 oscillation amplitude에서 상호작용 때문에 생기는 공진 주파수 변화를 측정한다.

공기 중에서는 AM방식과 FM방식의 차이는 없으나 진공에서는 data acquisition time이 AM방식에 비해 FM방식이 1/10정도로 작다. 본 연구에서는 AM 방식을 사용했으며 나중에 FM방식도 사용할 계획이다.

2. 실험 장치 및 동작 원리.

MFM를 크게 4부분으로 나누면 mechanical part, electronics part, software, MFM cantilever로 나눌 수 있다.

1) mechanical part.

그림 3-3-1(a)는 실온에서 동작하는 Magnetic Force Microscope의 mechanical

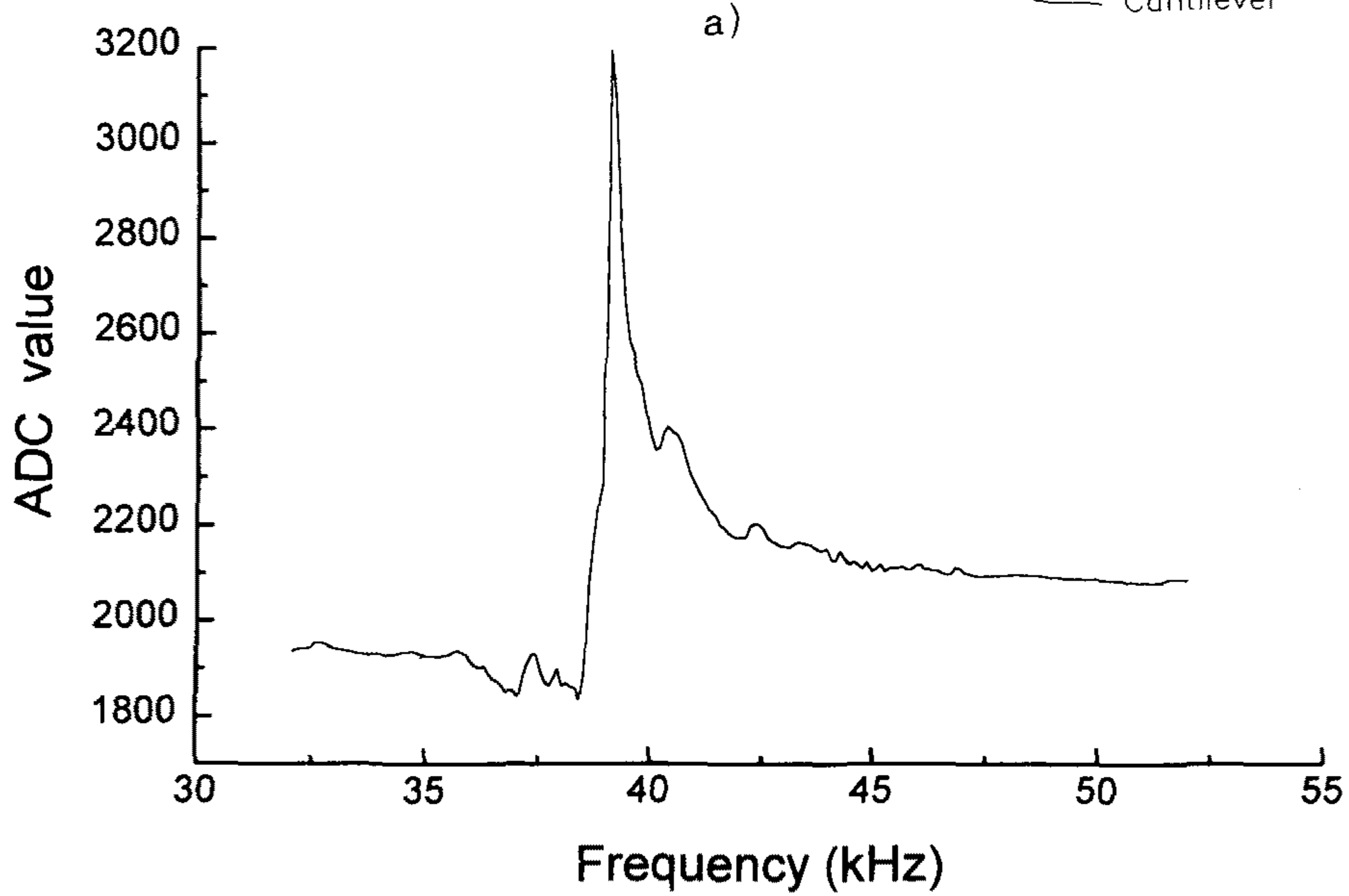
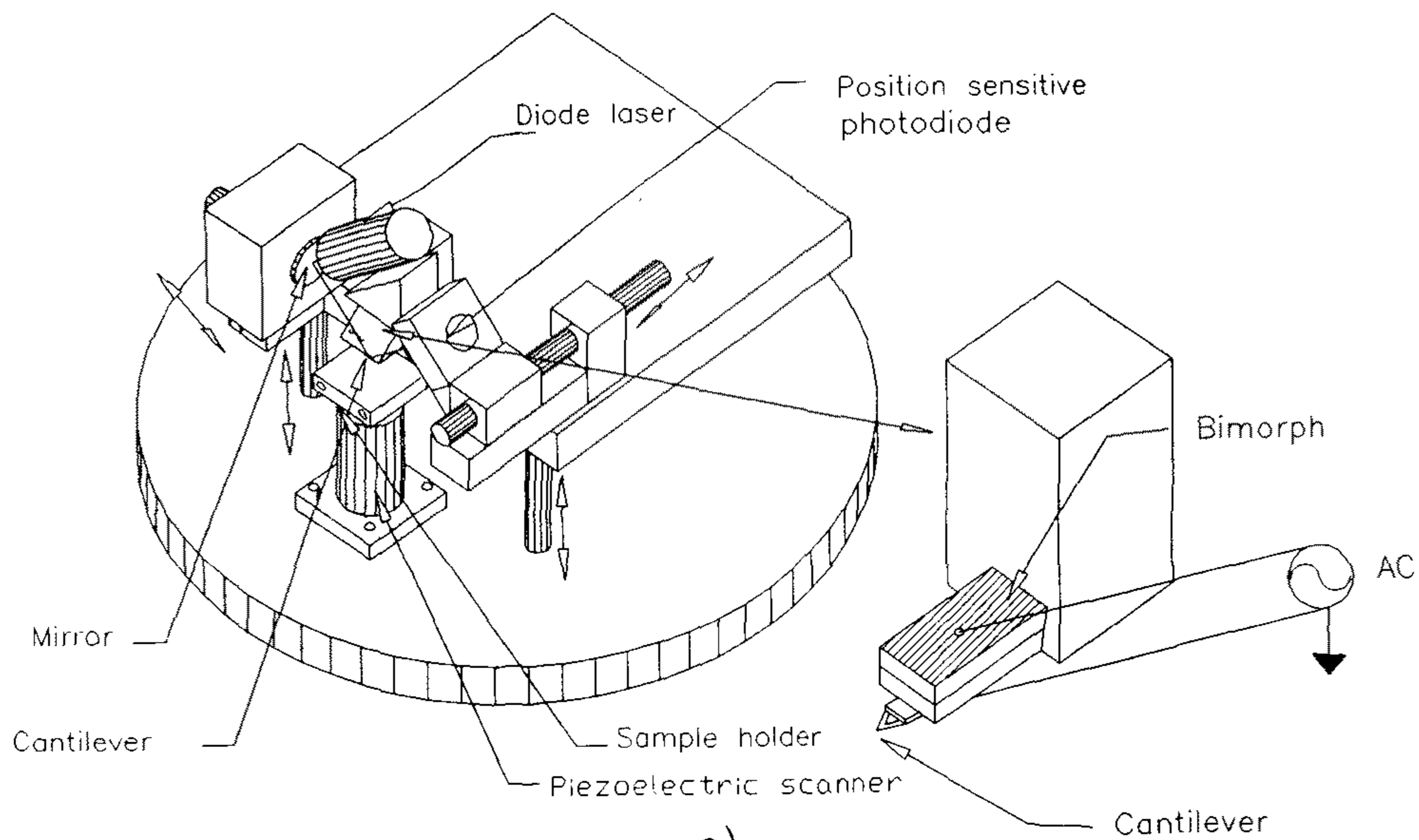


그림 3-3-1(a) MFM의 mechanical part. 확대한 그림에서처럼 bimorph를 부착함으로써 tip과 sample사이의 상호작용에 의한 공진 주파수의 변화를 측정할 수 있다. 그림 3-3-1(b)는 cantilever의 주파수에 따른 amplitude변화를 나타낸 곡선인데 39.3 kHz가 operating frequency로 된다.

head부분을 보여준다. 본 실험에는 파장이 675 nm, beam size는 1 μm 이고 출력은 3mW인 laser diode (Melles Griot)를 사용하였다. 그리고 PSD(Position Sensitive Detector)는 두 개의 photodiode(PD)로 구성되어 PD의 전류의 차가 cantilever의 휨에 비례하도록 되어있으며, PD의 responsivity는 0.5 A/W 이어서 cantilever의 휨이 1 nm 이면 PSD의 전류 변화는 1 μA 정도로 충분히 측정할 수가 있다.

cantilever와 시료의 접근은 differential lever, worm gear와 micrometer에 부착한 스텝핑 모터를 사용하여 이론적으로는 컴퓨터에서 나오는 펄스 당 40 \AA 움직이도록 설계되어 있으나 mechanical roughness 때문에 micron정도로 조절 가능하다. 사용된 PZT의 수평 방향의 감도는 14 nm/V, 수직 방향의 감도는 7 nm/V로써 최대 scan 영역은 10 μm x 10 μm 이다. 진동 방지를 위한 완충 장치는 이중 스프링과 magnetic damper를 사용하였다.

그림 3-3-1(a)의 확대된 그림에서 볼 수 있듯이 여기에는 cantilever를 진동시키기 위해 cantilever holder에 bimorph가 부착되어 있다. Bimorph를 진동시키지 않을 때는 정적인 contact AFM이 되고 bimorph가 동작할 때는 MFM이 되므로 topography와 magnetic structure를 동시에 관찰할 수 있으므로 이들 사이의 상호관계를 연구할 수 있다. 이제까지 MFM은 10^{-12}N 의 sensitivity를 가지고 25 - 50nm의 수평 분해능을 가지는 것으로 알려져 있다.

2) electronics part.

MFM의 회로는 detector, feedback circuit, AD/DAC 및 computer interface part, scan control part, 고압 전원 제어부, stepping motor controller 회로로 나눌 수 있는데 AFM과 달리 Magnetic tip과 sample사이의 상호작용에

의한 frequency shift를 측정하기 위한 회로가 필요하다. Detector는 두 개의 photodiode로 구성된 PSD의 전류를 전압 신호로 변환, 증폭하는 회로로 Diode에 흐르는 전류는 4.7×10^4 V/A로 증폭된다. 두 diode에 의해 증폭된 각 전압의 차를 Lock in Amplifier의 input 신호로 사용한다.

AM방식으로 실험할 때는 scanning을 하기 전에 operating frequency를 선택해야 한다. 이를 위해서 DAC를 통하여 voltage controlled oscillator(VCO)에 전압을 가함으로서 frequency를 sweep하면서 lock in amplifier를 이용해 측정한 amplitude로부터 resonance peak를 찾고 그 peak의 오른쪽으로 대략 81.6%되는 주파수를 bimorph driving frequency로 선택한다. 여기서 81.8%되는 점이 이론적으로 주파수 변화에 따른 amplitude 변화가 가장 민감한 지점으로 알려져 있으며 resonance frequency의 오른쪽을 선택한 이유는 auto approach할 때 편리하기 때문이다. 그림 3-3-1(b)는 실제로 그림 3-3-1(a) 장치를 이용하여 측정한 cantilever의 주파수에 따른 진폭의 변화를 보여주고 있다. 여기서 계산되어진 동작 주파수는 39.3 kHz이다.

선택된 주파수에서 Scanning 하는 동안 상호작용 때문에 생기는 amplitude의 변화가 lock in Amplifier를 통해 측정되고 그 값이 feedback loop의 input이 된다. 이때 두 개의 독립적인 비례형 feedback을 결합하였는데 하나는 scanning할 때 빠르게 변화하는 굴곡을 따라가게 하고 (fast feedback), 또 다른 하나는 시료 전체의 큰 굴곡을 따라가기 위한 것이다(slow feedback). Slow feedback의 시상수는 10 sec로 고정되어 있고, fast feedback의 시상수는 1 ~ 10 ms로 가변할 수 있다. tip이 sample의 magnetic potential contour를 보다 정확히 따라가도록 하기 위해서는 feedback 회로의 gain과 time constant를 잘 맞추는 것이 중요하다.

Stepping motor를 이용하여 tip을 sample에 접근하고 멀어지게 했으며 시료의 접근이 끝난 후의 tip-sample 거리의 미세 조정은 tube형 PZT의 z 방향의 전압을 이용하여 조정하였다.

computer로 아날로그 물리량을 읽고, 필요한 전압 신호를 내보내기 위해 ADC/DAC 제어부와 computer interface part가 필요한 데 본 연구진은 ADC/DAC 카드를 직접 제작하였고 컴퓨터가 서로 통신하기 위한 I/O 인터페이스 회로는 INTEL사의 프로그램이 가능한 범용 8255 PIO(programmable input/output) 2개와 프로그램이 가능한 8253 타이머 3 개가 내장된 범용 카드를 사용하였다. ADC는 12 bit 분해능(전압 분해능은 4.88mV)을 갖는 AD774를 사용하였고 MPC16S multiplex를 이용하여 cantilever의 휨, Z-piezo에 걸리는 전압, X와 Y 두 방향의 scan 크기(scan range), X와 Y scan 위치(X, Y offset), cantilever에 인가된 힘(loading force)등 읽고자 하는 data를 선택하였다. DAC는 12 bit 분해능을 가진 AD565를 사용하여 X와 Y방향으로 scanning하기 위한 삼각파를 발생시켰다.

그리고 scanning하는 동안 이 삼각파는 X 와 Y 방향으로 PZT를 구동하기 위해 -400 V에서 +400 V 까지 가해줄 수 있는 high voltage 회로의 input으로 들어간다. High voltage 회로의 또 다른 하나의 input은 Z 방향으로 PZT에 가해주기 위해 feedback에서 들어온 신호이다. Z 방향으로는 0에서 300 V 까지 가해 줄 수 있다. High voltage 트랜지스터로 MJ10025를 사용하였다. Tip에 Bias를 걸어주기 위한 DAC channel과 Frequency를 sweep할 때 VCO에 input으로 사용되는 DAC channel이 있다.

3) Software

소프트웨어를 살펴보면 하나의 image file을 얻는 데 256 line을 scan 하게 되고 한번 scan할 때 256개의 데이터가 버퍼에 저장되게 했기 때문에 image file 하나에 256 × 256개의 데이터 어레이가 필요하다. Scan하는 동시에 gray scale image를 동시에 볼 수 있고 완전히 끝난 뒤에는 필요하면 곧바로 디스크 드라이버에 저장할 수 있도록 되어있다. Image file과 동시에 scan size, scan 주파수, scan mode를 기록하는 comment file도 저장된다. 이렇게 저장된 파일은 필요하면 곧바로 불러올 수 있도록 되어 있다. 본 실험결과에서 나타나는 모든 데이터는 ADC에서 직접 읽은 데이터(raw data)이다. 직접 소프트웨어적으로 scan 주파수 값과 feedback의 ON과 OFF를 조절할 수 있도록 하였다. 그 외에도 ,3차원 image와 단면을 보는 프로그램, filtering 등 다양한 image processor를 갖추고 있다. 그 외에 스테핑 모터 회전에 필요한 펄스와 방향을 제어하는 부분이 있다.

4) MFM cantilever

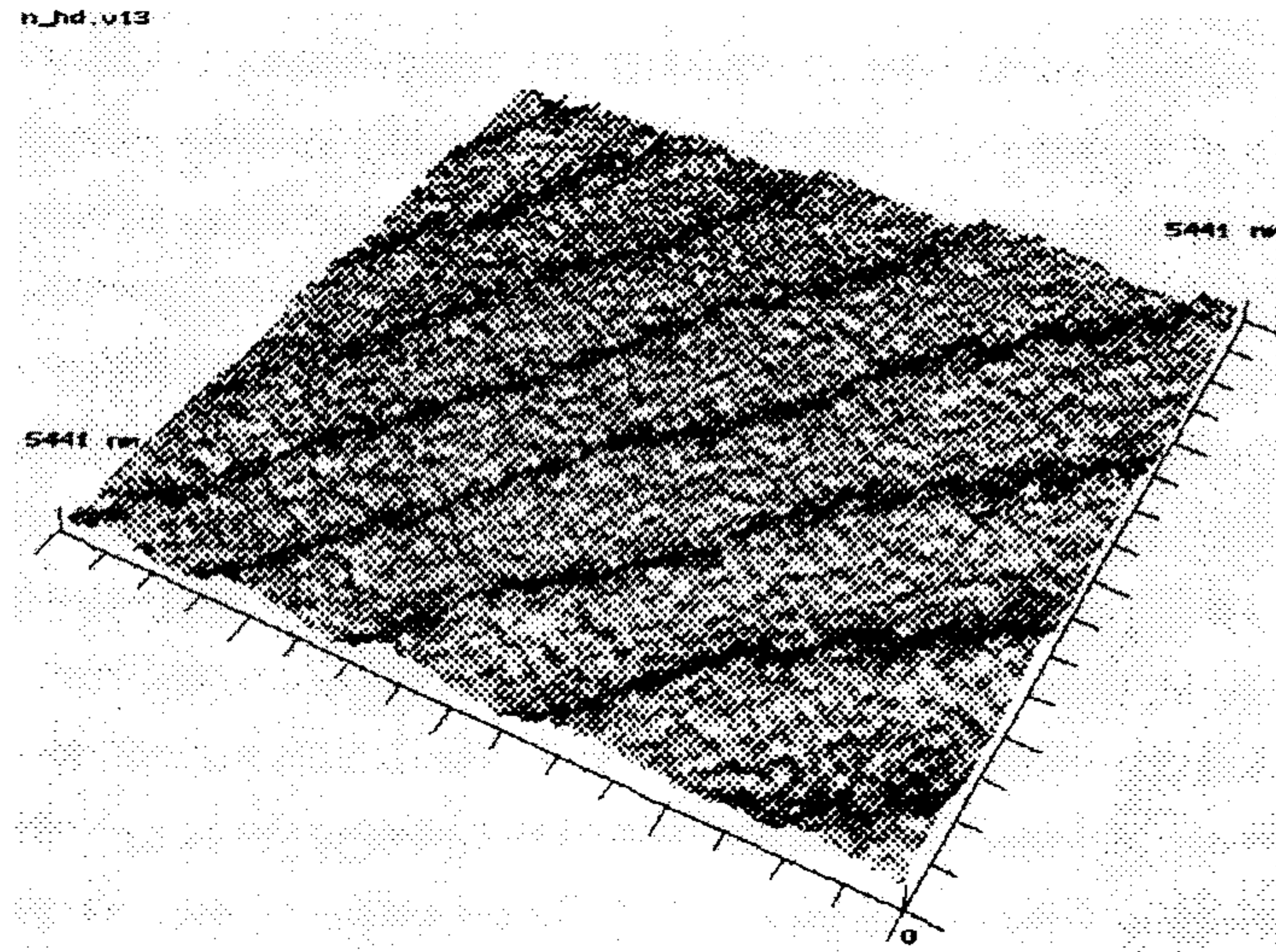
MFM에 사용된 tip들은 초기에는 주로 Fe wire 또는 Ni wire 같은 Ferromagnetic material을 전기적으로 etching하여 만들었으나 강한 stray field 때문에 Bloch wall 같은 magnetic structure의 움직임을 유도 할 수 있는 것으로 알려져 있다. 이러한 sample에 미치는 tip의 효과를 줄이기 위해 기존에 Si₃N₄로 만들어진 AFM cantilever의 tip 위에 Co, CoPtCr, NiFe등의 magnetic material을 coating하여 MFM tip을 제작한다. 본 연구진은 Park Scientific Instrument에서 제작한, tip 끝의 표면에 대략 600Å 두께 정도로 Cobalt coating되어 있는 MFM cantilever를 사용하였다.

전체 모양은 “V” 형태이며 스프링 상수 $k = 0.032 \text{ N/m}$ 이며 측정할 공

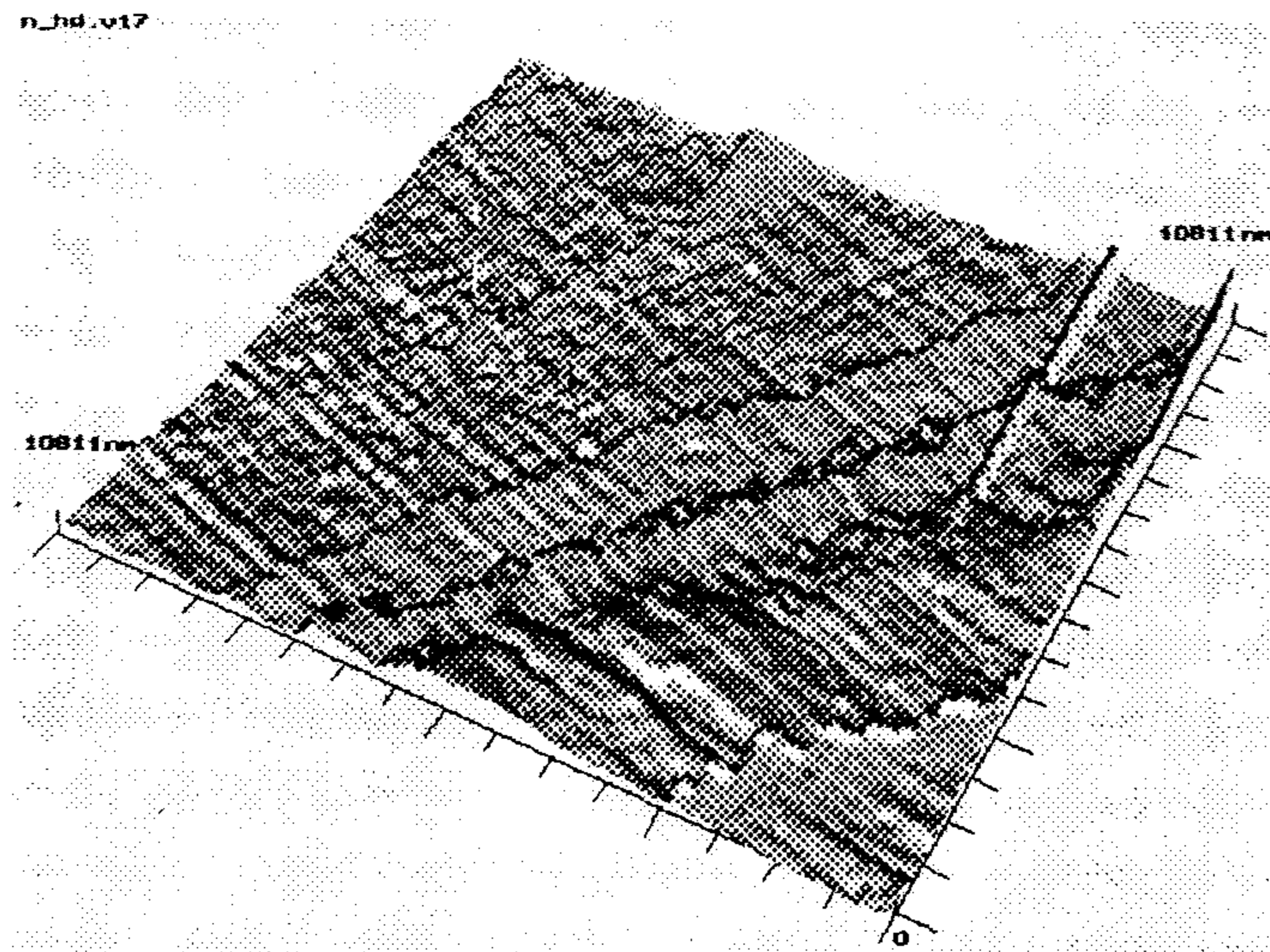
진 주파수는 위의 그림 3-3-1(b)와 같이 $\omega_0 = 39 \text{ kHz}$ 이다. 그리고 tip의 반대 쪽은 laser 빛의 반사가 잘 되게 하기 위하여 Au로 코팅되어 있다. 그리고 tip의 기하학적인 모양은 pyramid형으로 끝의 각도는 대략 60° 정도로 곡률 반경은 400 \AA 이하이며 길이가 200 \mu m , 두께가 0.6 \mu m , 폭이 18 \mu m 정도이다.

3. 실험 결과

MFMM을 시험 작동하기 위해 magnetic sample로서 hard disk를 이용하였다. 이 때 X 방향의 scanning frequency 2.3 Hz 로 하였고 piezo tube에 들어가는 Z high voltage input을 image data로 취하였다. 그림 3-3-1(b)처럼 bimorph를 30 kHz 에서 50 kHz 까지 sweep하면서 operating frequency를 찾았다. 그 결과 39.3 kHz 가 bimorph driving로 사용되었다. 그림 3-3-2(a)는 hard disk 위를 MFMM으로 image한 magnetic structure를 보여 주고 있다. 여기에서 볼 수 있듯이 높은 부분과 낮은 부분이 주기적으로 배열되어 있음을 볼 수 있다. X 대신에 Y 방향으로 scanning 방향을 바꾸었을 때 magnetic structure의 배열 방향이 따라 변하였다. scanning area를 줄였을 때 똑 같이 주기적인 배열 구조가 줄어들고 있음을 관찰할 수 있었다. 또한 cantilever의 위치를 옮겨서 scanning하였을 때도 이와 비슷한 image를 관찰할 수 있었다. 더욱이 tip과 sample 사이의 거리를 1 mm 정도 멀리했을 때는 이러한 구조를 전혀 관찰할 수 없었다. 이상의 결과로부터 이것은 electronics 또는 mechanical part에 의 artifact때문에 나타나는 효과가 아니라 hard disk의 내부에 있는 구조임을 알 수 있다. 그런데 이 구조가 Hard disk의 topography의 효과인지를 알아보기 위해 tip을 sample쪽으로 stepping motor를 이용하여 30 nm 씩 접근하면서 imaging을 하였다. 그 결과 그림 3-3-2(a)에 나타난 magnetic structure가 보이기 시작한 지점부터 20 \mu m 만큼 더 접근하였을 때 그림



a)

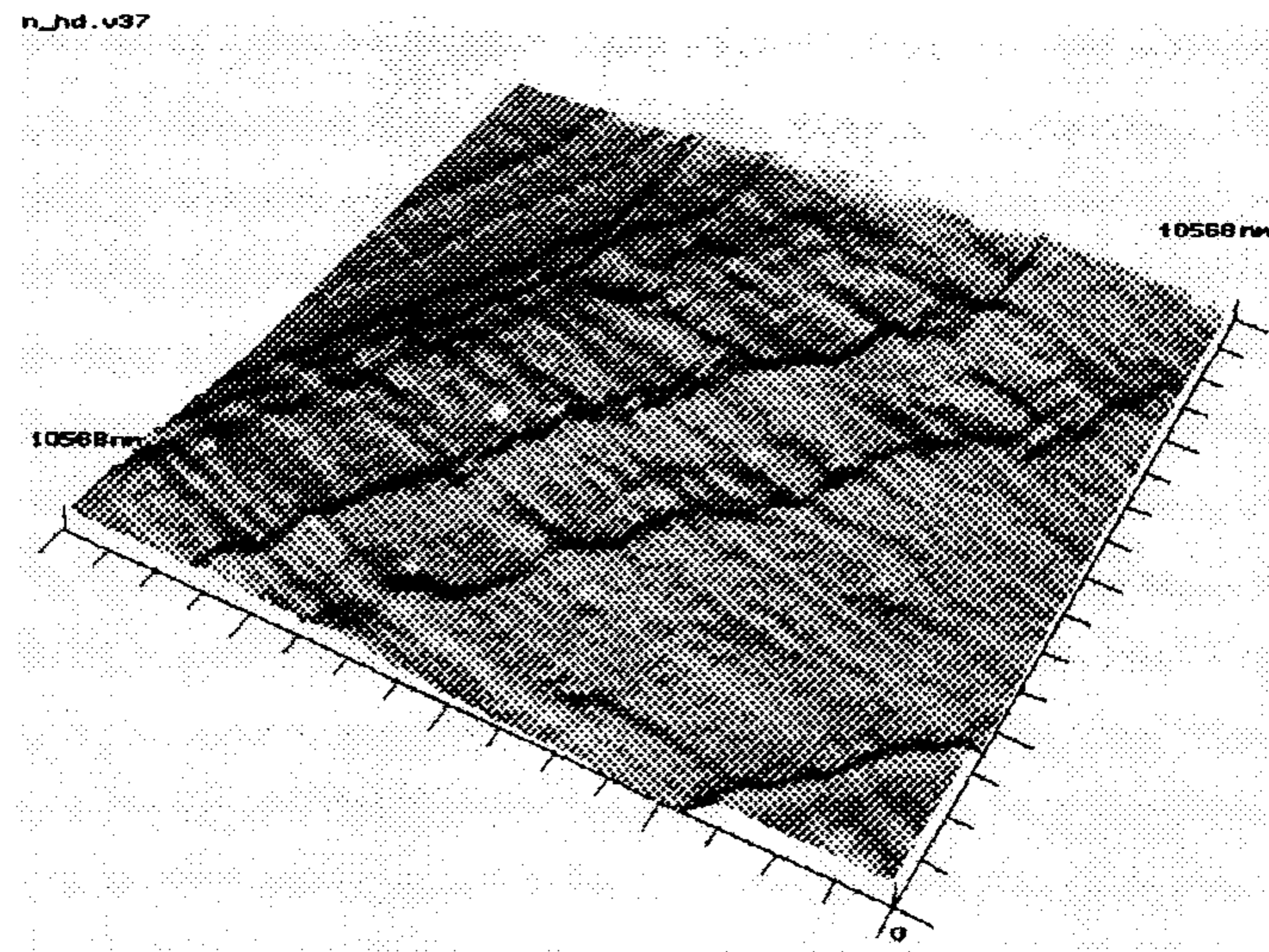


b)

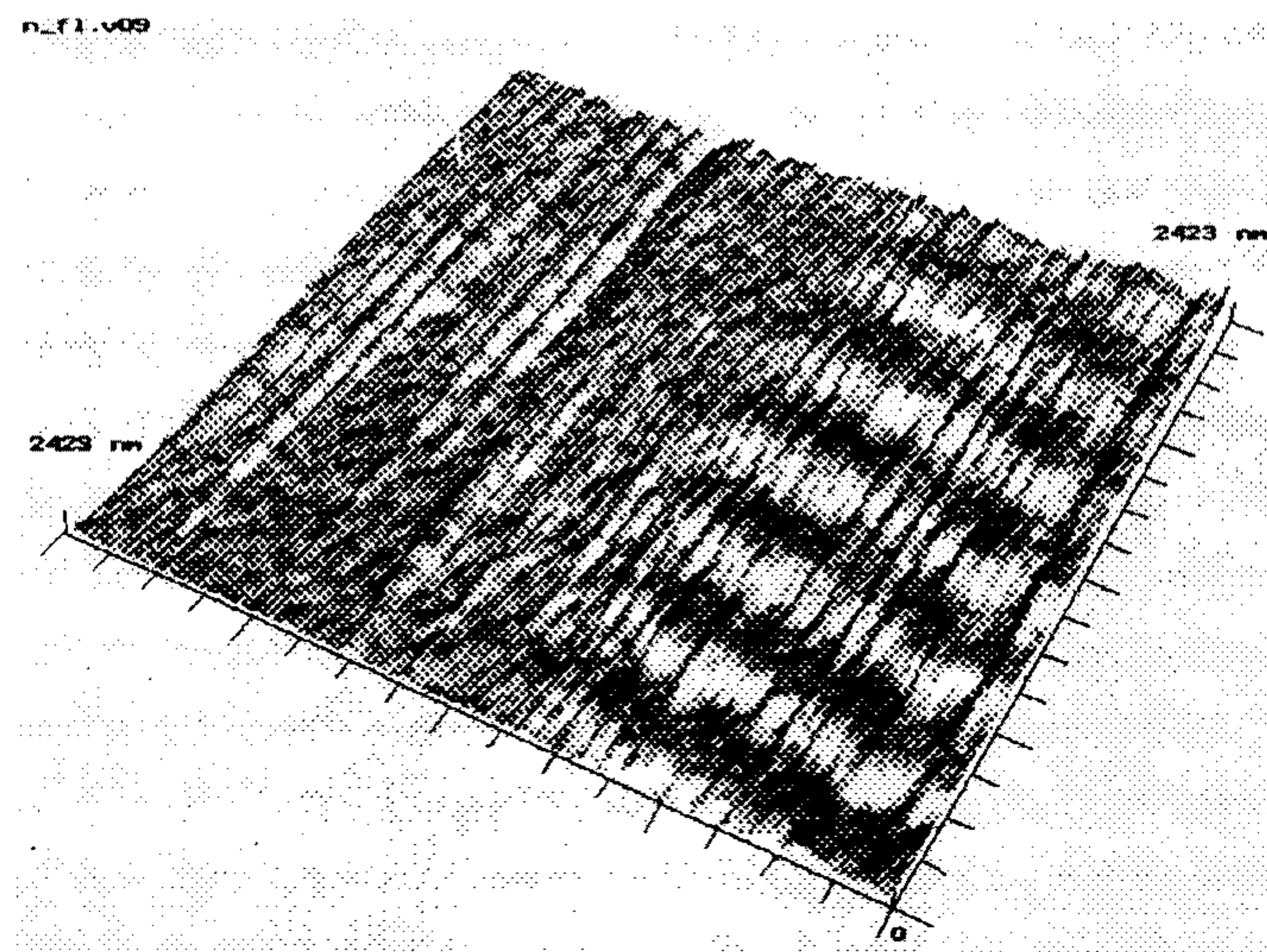
그림 3-3-2(a)는 MFM tip을 hard disk표면에서부터 수 μm 거리 정도 가져간 다음 관찰하여 얻은 magnetic structure이다. 어떤 track위에 기록된 $1.7\mu\text{m}$ 정도 주기를 갖는 magnetic bit로 예상되어진다. 그림 3-3-2(b)는 image (a)를 얻은 위치에서 magnetic tip을 hard disk에 수 nm까지 가까이 접근하여 noncontact mode로 얻은 Hard disk의 topography image이다.

3-3-2(b)에 나타난 구조가 보이기 시작하였다. 이러한 사실은 자기적 상호작용이 noncontact AFM에 사용되었던 Van der Waals force나 contact mode의 Linnard Jones potential보다 더 long range oder 상호작용임을 이야기한다고 하겠다. 그림 3-3-2(b)의 상이 완전히 나타나기 직전에 feedback이 unstable 한 부분이 있었다. 이것은 magnetic에서 topography로 넘어갈 때 존재하는 cross over⁽³⁶⁾ 때문에 생기는 효과일 것으로 추측된다. 이 image가 van der Waals force에 의한 topography image임을 확인하기 위해 contact mode로 image하였더니 그림 3-3-3(a)의 결과를 얻을 수 있다. 더욱이 tip을 sample로부터 멀어지게 하면서 위의 과정을 반복하였을 때도 그림 3-3-2(a)의 magnetic structure를 얻을 수 있었다. 이 때 전체적인 image가 접근할 때보다 조금 흐려짐을 볼 수 있었는데 아마도 contact mode로 scanning할 때 tip 끝이 손상을 받았기 때문에 생기는 효과일 것으로 예상된다. 본 실험에 사용된 하드 디스크의 사양(specification)에 의하면 트랙밀도와 비트 밀도는 각각 938 tpi (track per inch)와 14479 bpi(bit per inch)로 되어 있다. 이것을 track 중심 사이의 간격으로 환산하면 26 μ m이고 bit사이의 간격으로 환산하면 1.75 μ m정도이다. 본 시스템에 사용된 scanner의 maximum scan area가 10 μ m \times 10 μ m임을 고려할 때 전체적인 track은 관찰할 수 없으므로 이 data는 track 내부에 있는 magnetic bit를 관찰되어진 결과로 생각되어진다. 더욱이 bit 사이의 간격이 본 image에 나타난 결과와 거의 유사하다는 사실은 이러한 사실을 뒷받침한다 하겠다. 이상의 결과를 종합해 볼 때 MFM으로 관찰된 magnetic structure는 hard disk상에 있는 어떤 track에 기록된 대략 1.7 μ m정도 주기를 갖는 magnetic bit들임을 알 수 있다.

그림 3-3-3(b)는 플로피 디스크의 표면을 MFM을 이용하여 관찰한 image이다. 이 magnetic structure도 scanning area의 의존성을 명확히 보였고 반복하여도 똑



a)



b)

그림 3-3-3(a)는 magnetic tip을 hard disk 표면에 contact하여 얻은 topography image이다. 그림 3-3-3(b)는 플로피 디스크의 표면을 MFM을 이용하여 관찰한 image이다.

같은 상을 관찰할 수 있었다. 여기에서 볼 수 있듯이 비트 형태의 구조가 있는 부분은 data가 기록되어진 부분이고 그렇지 않은 부분은 기록되어 지지 않은 부분일 것으로 추측되어 진다.

4. 결 론

초전도체의 vortex dynamics를 관찰하기 위해서 저온 Magnetic Force Microscope(MFM)가 좋은 도구로써 주목받고 있다. 본 연구진은 이를 위한 전단계로서 상온, 공기 중에 작동하는 Magnetic Force Microscope를 제작하여 1.7 μ m정도 주기를 갖는 hard disk의 magnetic bit 구조와 플로피 디스크의 표면을 관찰하였다. 이러한 구조들에 대해 보다 정량적으로 이해하기 위해서 비교적 잘 알려져 있지 않은 magnetic tip과 sample사이의 상호작용에 대한 보다 많은 연구가 요구된다. 그리고 본 실험과정을 통하여 얻은 지식을 기초로 하여 저온 MFM을 제작하려고 하고 있다. 이것이 실현된다면 vortex의 다양한 현상들의 이해에 많은 도움이 될 것으로 예측된다.

참 고 문 헌

1. Ch. Renner, ϕ . Fischer, A. D. Kent, D. B. Mitzi, and A. Kapitulnik, *Physica* **B194-196**, 1689 (1994).
2. D. Mandrus, L. Forro, D. Koller, and L. Mihaly, *Nature* **351**, 460 (1991).
3. G. M. Eliashberg, *JETP* **11**, 696 (1960).
- E. L. Wolf, *Principles of Electron Tunneling Spectroscopy*. (Oxford Univ. press, New York, 1985)
4. W. L. McMillan and J. M. Rowell, *Phys. Rev. Lett.***14**, 108 (1965).
5. J. Kane, Q. Chen, K. -W. Ng, and H. -J. Tao, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 128 (1994).
6. H. F. Hess, R. B. Robinson, and J. V. Waszczak, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 2711 (1990).
7. see T. Hasegawa, H. Ikuta, and K. Kitazawa, in *Physical Properties of High Temperature Superconductors III*, edited by D. M. Ginsberg (World Scientific Publishing, Singapore, 1992).
8. J. M. Valles, Jr., R. C. Dynes, A. M. Cucolo, M. Gurvich, L. F. Schneemeyer, J. P. Garno, and J. V. Waszczak, *Phys. Rev.* **B44**, 11986 (1991).
9. S. Martin, E. S. Hellman, A. Kussmaul, and E. H. Hartford, Jr., *Phys. Rev.* **B47**, 14510 (1993).
10. A. P. Fein, J. R. Kirtley, and M. W. Shafer, *Phys. Rev.* **B37**, 9738 (1988).
11. M. Gurvich, J. M. Valles, Jr., A. M. Cucolo, R. C. Dynes, J. P. Garno, L. F.

- Schneemeyer, and J. V. Waszczak, Phys. Rev. Lett. **63**, 1008 (1989).
12. F. Sharifi, A. Pargellis, and R. C. Dynes, Phys. Rev. Lett. **67**, 509 (1991).
 13. J. F. Zasadzinski, Q. Huang, N. Tralshawala and K. E. Gray, in *Proc. 5th Annual Conf. New York State Institute for Superconductivity*.
 14. S. N. Putilin, E. V. Antipov, O. Chmaissem, and M. Marezio, Nature **362**, 226 (1993).
 15. L. Gao, Y. Y. Xue, F. Chen, Q. Xiong, R. L. Meng, D. Ramirez, C. W. Chu, J. H. Eggert, and H. K. Mao, submitted to Phys. Rev. Lett.
 16. J. Chen, J. F. Zasadzinsky, K. E. Gray, J. L. Wagner, and D. G. Hinks, to be published in Phys. Rev. B.
 17. R. C. Dynes, V. Narayanamurti, and J. Pm Garno, Phys. Rev. Lett. **41**, 1509 (1978).
 18. P. G. de Gennes, *Superconductivity of Metals and Alloys*(Benjamin, New York, 1966).
 19. R. Nagarajan, C. Mazumdar, Z. Hossain, S. K. Dhar, K. V. Gopalakrishnan, L. C. Gupta, C. Godart, B. D. Padalia, and R. Vijayaraghavan, Phys. Rev. Lett. **72**, 274 (1994).
 20. R. J. Cava, H. Takagi, B. Batlogg, H. W. Zandbergen, J. J. Krajewski, W. F. Peck, Jr., R. B. van Dover, R. J. Felder, T. Siegrist, K. Mizahashi, J. O. Lee, H. Eisaki, S. A. Carter, and S. Uchida, Nature(London) **367**, 146 (1994).
 21. R. J. Cava, H. Takagi, H. W. Zandbergen, J. J. krajewski, W. F. Peck, Jr., T. Siegrist, B. Batlogg, R. B. van Dover, R. J. Felder, K. Mizuhashi, J. O. Lee, H. Eisaki, and S. Uchida, Nature(London) **367**, 252 (1994).

22. H. C. Ku, C. C. Lai, Y. B. You, J. H. Shieh, and W. Y. Guan, Phys. Rev. B50, 351 (1994).
23. L. F. Mattheiss, Phys. Rev. B49, 13 279 (1994).
24. C. Godart. *et. al.*, Phys. Rev. B51, 489 (1995).
25. S. A. Carter, B. Batlogg, R. J. Cava, J. J. Krajewski, W. F. Peck, Jr., and H. Takagi, Phys. Rev. B50, 4216 (1994).
26. H. Takagi, R. J. Cava, H. Eisaki, J. O. Lee, K. Mizuhashi, B. Batlogg, S. Uchida, J. J. Krajewski, and W. F. Peck Jr., Physica C228, 389 (1994).
27. A. Fujimori, K. Kobayashi, T. Mozokawa, K. Mamiya, and A. Sekiyama, H Eisaki, H. Takagi, S. Uchida, R. J. Cava, J. J. krajewski, and W. F. Peck, Jr., Phys. Rev. B50, 9660 (1994).
28. T. E. Grigereit, J. W. Lynn, Q. Huang, A. Santoro, R. J. Cava, J. J. krajewski, and W. F. Peck, Jr., Phys. Rev. Lett. 73, 2756 (1994).
29. Ming Xu, P. C. Canfield, J. E. Ostenson, D. K. Finnemore, B. K. Cho, Z. R. Wang, and D. C. Johnston, Physica C227, 321 (1994).
30. F. Pobell, D. Rainer, and H. Wuhl, in *Superconductivity in Ternary Compounds I*, edited by ϕ . Fisher and M. B. Maple(Springer-Verlag Berlin Heidelberg, New York, 1982).
31. G. E. Blonder, M. Tinkham, and T. M. Klapwijk, Phys. Rev. B25, 4515 (1982).
32. H.J.Mamin, D.Rugar, J.E.Stern, R.E.Fontana, Jr., P.Kasiraj; Appl. Phys.Lett. 55, 318(1989).
33. A. Moser, H. J. Hug, I. Parashikov, B.Stiefel, O. Fritz, H. Thomas, A.

Baratoff, and H.-J. Guntherodt, Phys. Rev. Lett. 74, 1850(1995).

34. H. -J. Guntherodt R. Wiesendanger: Scanning Tunneling Microscopy
I-II(Springer - Verlag, Berlin Heidelberg,1992).

35. T. R. Albrecht, P. Grutter, D. Horne, and D. Rugar, Appl. Phys. Lett.69,
668(1991).

36. D. Sarid: Scanning Force Microscopy(Oxford University Press, New York
Oxford 1991).

제 4 장 고온초전도체의 수송현상

제 1 절 Hall 효과

1. 서론

2종 초전도체의 초전도 전이구간에서 자기장이 걸려 있을 때의 수송현상은 자속의 움직임에 의해 주로 좌우된다. 이러한 자속의 운동에 의해 생기는 저항은 기존의 Barden-Stephen 모델⁽¹⁾이나 Nozières-Vinen 모델⁽²⁾에 의해 잘 설명되지만, 자속의 운동에 의한 Hall 효과는 설명하기 힘들다. 따라서 Hall 효과를 통하여 자속의 운동을 설명하는 여러 이론들을 시험할 수 있다.

고온 초전도체가 발견된 이후, 전이구간에서의 Hall 효과를 측정된 결과 대부분의 고온초전도체의 전이구간에서의 Hall 전압이 정상상태의 Hall 전압과 반대의 부호를 갖는 것이 알려져서 많은 관심을 모았는데⁽³⁻⁶⁾ 이러한 현상은 고온초전도체만의 특별한 현상이 아니라 기존의 2종 저온초전도체에서도 나타나는 것으로 알려졌다.⁽⁶⁾ 이방성이 매우 큰 것으로 알려진 Bi 계열이나 Tl 계열의 고온초전도체에서는 전이구간에서 Hall 전압의 부호변화가 두번 나타나는 것도 특이한 점이다.^(4,5) 초전도체의 전이구간에서 나타나는 Hall 효과의 부호변화는 자속의 운동에 관한 기존의 표준이론인 Bardeen-Stephen 또는 Nozières-Vinen 모델로는 설명할 수가 없어서, 이를 설명하기 위해 많은 모델들이 제시되었다. 두 가지 에너지 밴드를 이용한 설명⁽⁷⁾, 열자기적인 현상을 이용한 설명⁽⁸⁾, KT transition을 이용한 설명⁽⁹⁾, Josephson vortex를 이용한 설명⁽¹⁰⁾, 자속의 pinning을 이용한 설명⁽¹¹⁾, 시간의존성을 갖는 Ginzburg-Landau 계산을 이용한 설명⁽¹²⁾, pinning된 자속격자에서 빈자리의 이동을 고려한 설명⁽¹³⁾, 자속중심에서 외부와 전하밀도가 다른 경우를 고려한

설명⁽¹⁴⁾ 등 Hall 효과의 부호변화를 설명하려는 많은 모델들이 나왔음에도 불구하고 아직 뚜렷하게 맞다고 인정되는 모델은 없다.

고온초전도체의 전이구간에서 Hall 효과를 측정했을 때 보이는 또 한가지 특이한 현상은 온도 변화에 따른 longitudinal resistivity ρ_{xx} 와 Hall resistivity ρ_{xy} 의 변화가 $\rho_{xy}(T) \propto [\rho_{xx}(T)]^\beta$ 와 같은 scaling 관계를 보이는 것이다⁽¹⁵⁾. $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 초전도체의 경우에 $\beta \sim 1.7$ 정도이고 이방성이 큰 Bi 계열이나 Tl 계열의 초전도체에서는 $\beta \sim 2.0$ 정도의 값을 보이는 것으로 알려져 있다. 이러한 현상은 vortex glass transition 또는 일반적인 pinning을 고려하여 설명할 수 있으며 Hall 전압의 부호변화와는 직접적인 관련이 없는 것으로 알려져 있다.

$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 초전도체에서 산소가 빠짐에 따라 전하운반자인 정공의 밀도가 감소하고, 임계온도는 산소결핍량이 $\delta \sim 0.1$ 정도일 때 최고점을 지나고 산소가 더 빠지면 임계온도는 계속하여 감소하는 것으로 알려져 있다⁽¹⁶⁾. 또한 이방성도 점차 증가하여서 산소 결핍이 거의 없을 때에는 질량 이방성 비율 Γ 가 40 정도이지만, 산소 결핍량이 $\delta \sim 0.5$ 정도일 때에는 Γ 가 4000 정도로 증가하는 것으로 알려져 있다⁽¹⁷⁾. 본 실험에서는 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 박막 초전도체에서 산소 함량의 변화가 Hall 효과에 미치는 영향을 알아보기 위하여, 여러 가지 산소함량을 가진 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 박막에서 온도와 자기장의 변화에 따른 Hall 효과를 측정하였다. 또한 자기장의 방향을 바꾸면서 Hall 효과를 측정하여서 자속의 pinning과 이방성의 변화가 어떤 영향을 미치는지 조사하였다.

2. 이론적 배경들

(i) pinning center가 없는 2종 초전도체에서 자속이 움직이고 있을 때, 온도 T 의 변화에 따른 Hall resistivity $\rho_{xy}(T)$ 와 longitudinal resistivity $\rho_{xx}(T)$ 의 변화간

에는 $\rho_{xy}(T) \propto [\rho_{xx}(T)]^\beta$ ($\beta \sim 1.7-2$) 와 같은 scaling 법칙이 성립한다. Vinokur⁽¹⁸⁾ 등은 pinning과 자속의 운동간의 관계를 현상론적으로 고려하여 이러한 현상을 설명하였다. 이들에 의하면 pinning force의 평균은 자속의 평균속도 v 에 비례하여 $\langle \mathbf{F}_{pin} \rangle = -\gamma(v)\mathbf{v}$ 와 같이 쓸 수 있어서 자속에 대한 운동방정식은 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$[\eta + \gamma(v)] \mathbf{v} + \alpha \mathbf{v} \times \mathbf{n} = \phi_0 \mathbf{j} \times \mathbf{n}$$

여기서 η 는 자속의 운동에 의한 에너지 소모에 관련된 마찰 계수이고, \mathbf{j} 는 수송 전류 밀도, \mathbf{n} 은 자기장 방향의 단위 벡터이며 α 는 pinning이 없을 때 Hall 효과의 크기와 부호를 결정해준다. pinning의 효과는 결국 마찰 계수를 $\eta \rightarrow \eta + \gamma(v)$ 로 바꾸어 주는 것이다. 위 식의 계산 결과에서

$$\rho_{xy} = \rho_{xx}^2 \frac{\alpha}{B\phi_0}, \quad \sigma_{xy} \simeq \frac{\rho_{xy}}{\rho_{xx}^2} = \frac{\alpha}{B\phi_0}$$

와 같은 관계식이 성립한다. 따라서 Hall 전도도 σ_{xy} 는 pinning에 영향을 받지 않으며, 자속 운동의 본질적인 성질을 나타낸다. 온도가 내려가면서 pinning이 중요해지기 시작하면 저항은 온도에 대하여 지수적인 의존성을 보이기 때문에 α 의 온도 의존성을 무시할 수 있을 때 $\rho_{xy}(T)$ 가 $[\rho_{xx}(T)]^2$ 에 비례하게 된다.

(ii) 이방성이 있는 초전도체의 물리적 특성을 계산하기 위하여 Blatter⁽¹⁹⁾ 등은 길이와 자기장의 축척 변환을 이용하여 등방성계로 변환시킨 다음에 등방성 계에서의 계산결과를 이용하여 이방성 계에서의 물리적 성질들을 계산하였다. 이 결과에 따르면 ab 평면과 자기장의 각도 θ 에 따른 ab 평면의 저항은 다음과 같이 등방성 계에서의 유효 자기장에 의하여 결정된다.

$$\rho_{xx}(\theta, B) = \rho_{xx}\left(\frac{\pi}{2}, \tilde{B}\right), \quad \tilde{B} = \left(\sin^2\theta + \frac{1}{\Gamma} \cos^2\theta\right)^{\frac{1}{2}} B$$

여기서 Γ 는 c 축 방향과 ab 평면 방향의 질량 이방성 비율이다. 자기장의 각도 θ 에 따른 ab 평면의 Hall 전도도는 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$\sigma_{xy}(\theta, B) = \frac{B_z}{\hat{B}} \sigma_{xy}\left(\frac{\pi}{2}, \hat{B}\right) = \left(1 + \frac{1}{\Gamma} \cot^2 \theta\right)^{-\frac{1}{2}} \sigma_{xy}\left(\frac{\pi}{2}, \hat{B}\right)$$

(iii) time-dependent Ginzburg-Landau (TDGL) 식을 이용한 계산결과⁽¹²⁾에 따르면 초전도 전이구간에서의 Hall 전도도는 자속의 core에 있는 normal carrier에 의한 성분과 order parameter의 dynamics에 의해 생기는 성분으로 나누어질 수 있다. 이 결과에 따르면 Hall 전도도의 자기장에 대한 의존성은, 자기장이 매우 작을 경우에는

$$\sigma_{xy}(B) = c_1 \frac{\sigma_{xy}^{(n)}}{B} + c_2 \frac{\zeta}{B}$$

자기장의 세기가 임계 자기장 H_{c2} 에 가까울 때는

$$\sigma_{xy}(B) = \sigma_{xy}^{(n)} + c_3 \zeta (H_{c2} - B)$$

와 같이 나타낼 수 있다. 여기서 $\sigma_{xy}^{(n)}$ 은 정상 상태에서의 Hall 전도도이고, ζ 는 페르미 에너지에서 상태밀도의 에너지에 대한 기울기에 비례하는 양이다. c_1, c_2, c_3 는 온도 의존성은 있지만 자기장에 대한 의존성은 없는 양이다.

3. 실험 방법

실험에 사용된 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 박막은 스퍼터링 방법으로 MgO기판 위에 1500-2500 Å 의 두께로 입혔으며 이 박막은 c 축 방향으로 에피 성장한 것임을 확인하였다. 박막을 Hall 효과를 측정하기에 적합한 모양으로 만들기 위하여 사진식각방

법을 이용하여 200 μm 폭의 bridge와 50 μm 폭의 lead를 만들었다. 그리고 lead를 연결할 때 접촉저항을 줄이기 위하여 각 lead의 끝에 금을 수천 \AA 의 두께로 입힌 다음 산소 분위기에서 450 $^{\circ}\text{C}$ 로 한시간 가량 열처리하였다.

산소가 결핍된 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 박막을 얻기 위하여, 박막을 산소 결핍도에 따라 결정된 산소 압력에서 400-500 $^{\circ}\text{C}$ 로 2-5 시간동안 열처리한 다음 상온으로 급격히 식혔다. 이렇게 열처리된 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 박막의 산소함량은 대부분 박막의 임계온도를 이용하여 추정하였으며, 임계온도가 90 K plateau에 있을 경우에는 비저항의 상대적인 변화를 이용하여 추정하였다. $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 고온 초전도체의 임계 온도가 90 K plateau에 있을 때 비저항의 변화와 산소결핍량 δ 간에는 다음과 같은 관계가 성립함이 알려져 있다⁽²⁰⁾.

$$\delta \approx 0.45 \left| \frac{\Delta\sigma}{\sigma_0} \right|$$

여기서 σ_0 는 산소 결핍이 없을 때의 전기 전도도이고 $\Delta\sigma$ 는 산소 결핍에 의해 생긴 전기 전도도의 변화이다.

Oxford사의 cryostat에서 variable temperature insert(VTI)의 needle valve를 이용하여 시료가 있는 공간으로 유입되는 헬륨의 양을 조절하고 ITC4 온도 조절기를 이용하여 VTI 와 시료가 달려있는 구리 블록에 있는 히터의 파워를 조절하여 시료의 온도를 맞추었다. 시료의 온도는 carbon glass 온도센서를 이용하여 읽었다. 자기장은 초전도 자석을 이용하여 7 T 까지 걸어 주었다.

시료에 걸어주는 자기장의 방향을 바꾸면서 실험하는 경우에는 Oxford사의 split magnet system에서 스텝 모터를 이용하여 시료와 자기장 사이의 각도를 조절하였다. 스텝모터에 펄스 신호 하나를 넣었을 때 시료는 125분의 1도 회전하기 때문에 각도를 정밀하게 맞출 수 있었다. 시료의 회전 방향이 바뀔 때 기어의 부정

확성 때문에 2도 가량 헛돌지만 한쪽 방향으로만 움직일 때는 이러한 문제점이 없었다.

Hall 전압 V_{xy} 를 측정할 때 열기전력 또는 패턴의 부정확성 때문에 실제 Hall 전압과 상관없는 전압이 읽히는 것을 막기 위하여 다음과 같이 전류의 방향과 자기장의 방향을 바꿀 때 부호가 바뀌는 전압성분만을 취하였다.

$$V_{xy} = \frac{1}{4} [V_{xy}(I+, H+) - V_{xy}(I-, H+) - V_{xy}(I+, H-) + V_{xy}(I-, H-)]$$

여기서 I와 H의 \pm 부호는 방향을 나타낸 것이다.

4. 결과 및 토의

$YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ 박막에서 산소함량의 변화에 따른 저항의 변화를 그림 4-1-1에 나타내었다. 온도에 무관한 성분인 잔류 비저항은 불순물이나 낱알 경계면의 저항 등에 의하여 생기는데, 산소가 결핍된 시료에서도 잔류 비저항이 비교적 작고, 시료의 균질성을 나타내는 전이구간의 온도 폭이 5 K 이하인 것을 볼 수 있다.

그림 4-1-2는 산소결핍량이 $\delta \sim 0$ 인 시료의 비저항과 Hall 계수를 나타낸 것이다. 시료에 걸어준 자기장의 세기가 커짐에 따라서 비저항과 Hall 계수의 전이온도 폭이 커지는 것을 볼 수 있다. 전이구간에서 Hall 계수의 부호가 바뀌고 Hall 계수의 최소점이 보이는데 자기장이 커질수록 최소점의 깊이가 감소함을 볼 수 있다.

산소 결핍량이 좀 더 증가하여 $\delta \sim 0.1$ 일 때에는(그림 4-1-3) 대부분의 자기장 영역에서 Hall 계수의 부호 변화를 볼 수 없고, 1 T 의 자기장이 걸렸을 경우에 아주 작은 음의 Hall 계수를 볼 수 있다.

산소 결핍량이 $\delta \sim 0.25$ 일 때에 Hall 계수의 자기장에 대한 의존성(그림 4-1-4)

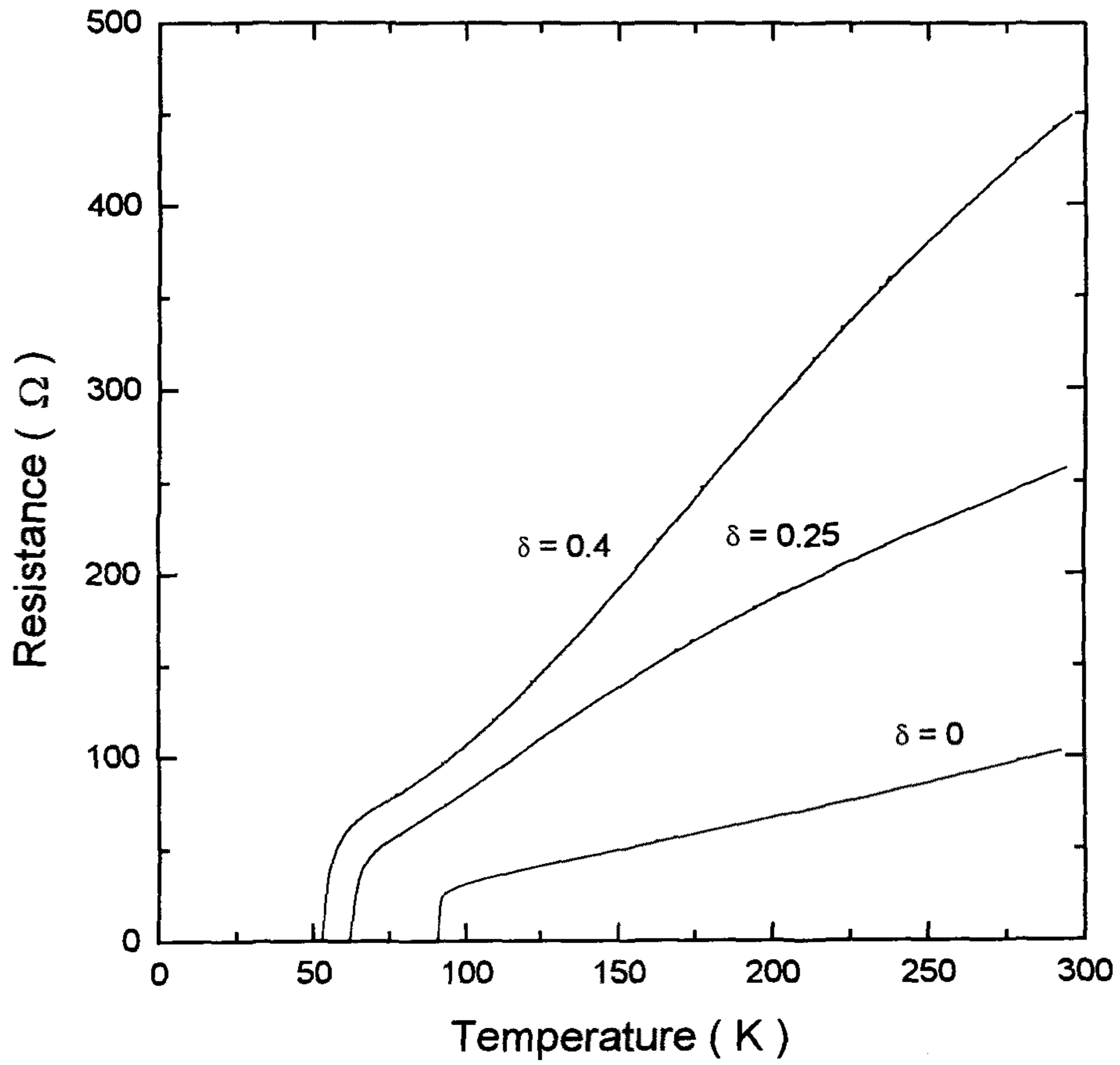


그림 4-1-1. $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 박막의 산소함량 변화에 따른 저항의 변화.

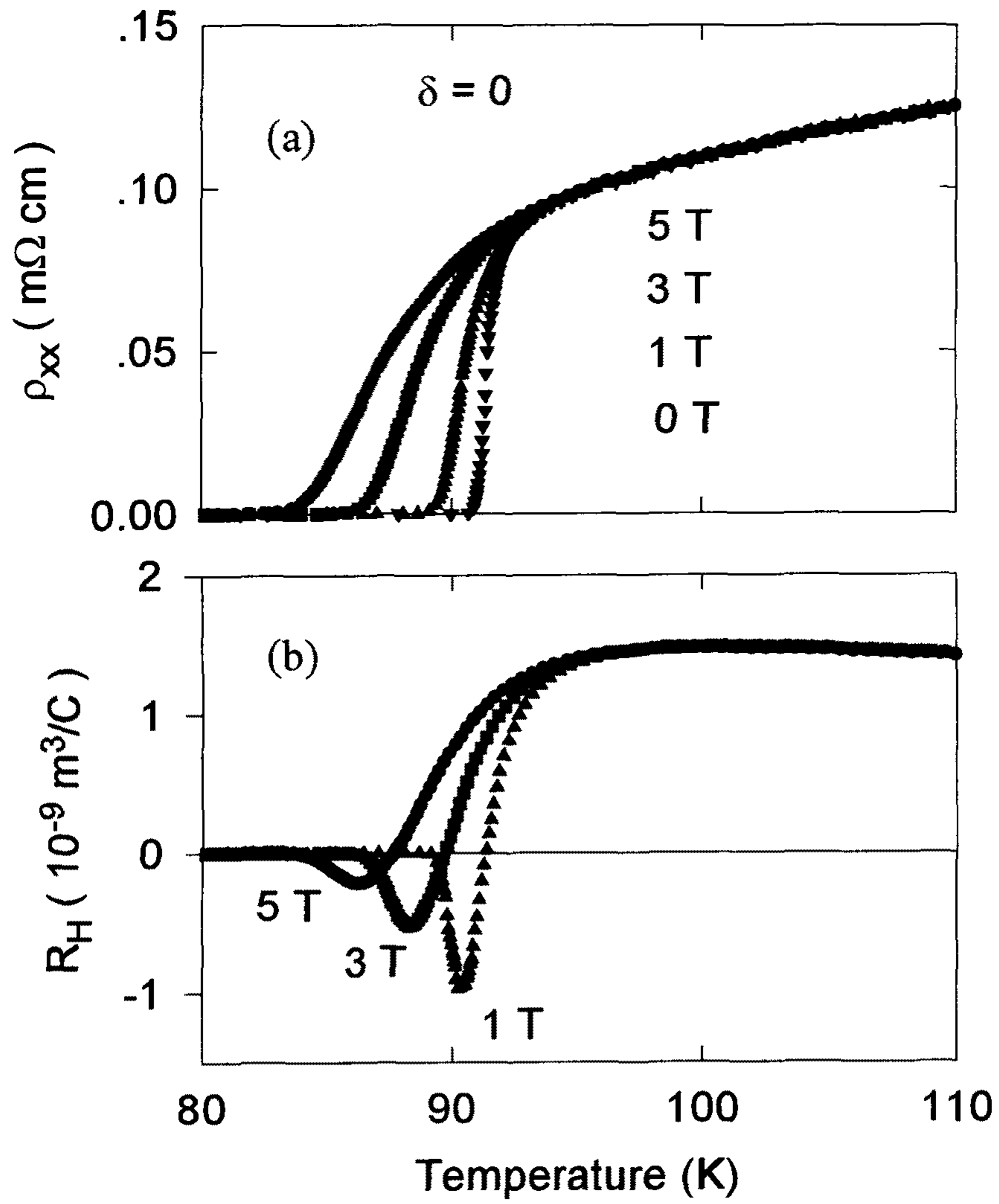


그림 4-1-2. 산소 결핍이 거의 없는($\delta \sim 0$) $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 박막의 (a) 비저항과 (b) Hall 계수.

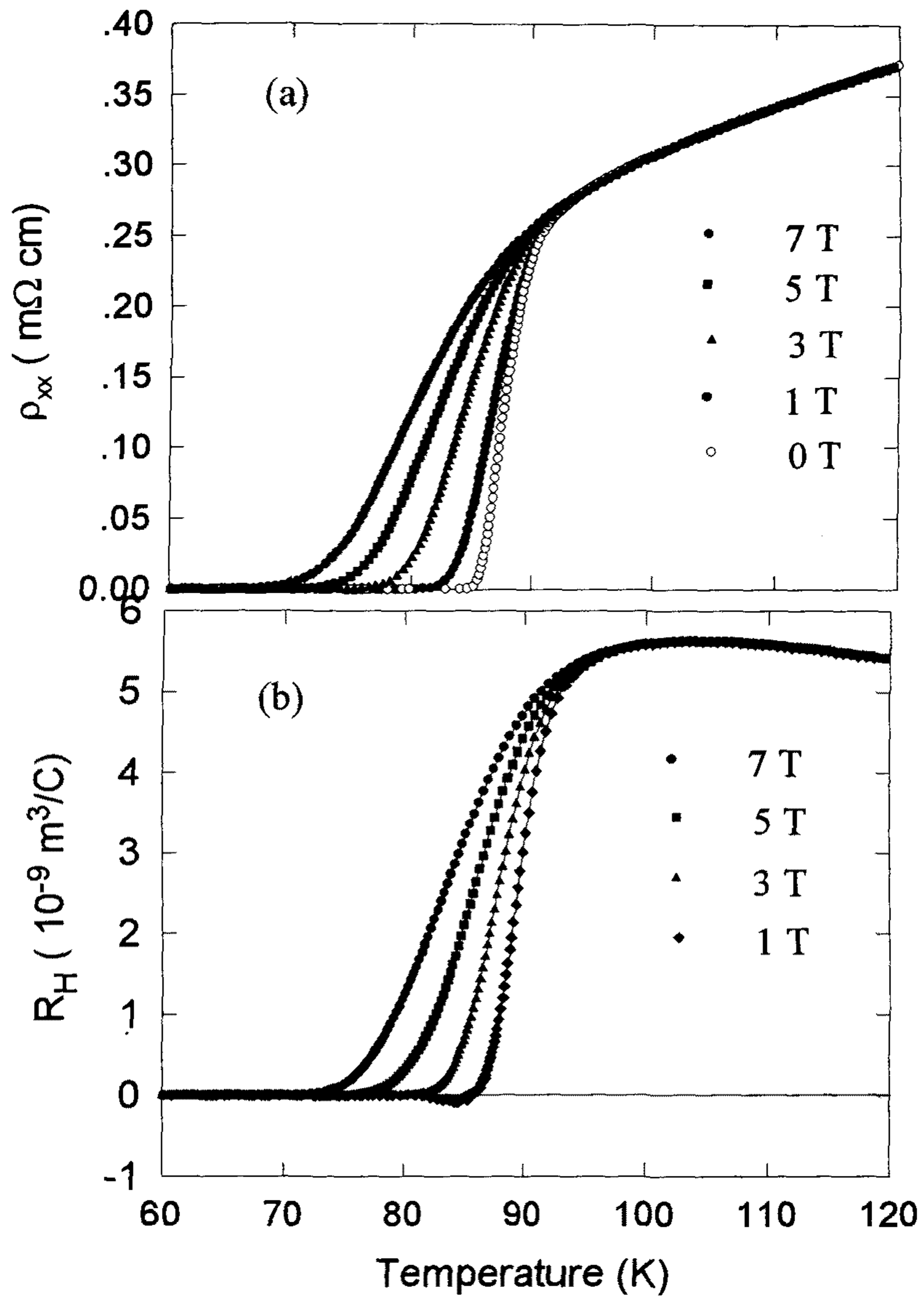


그림 4-1-3. 산소 결핍량이 $\delta \sim 0.1$ 인 $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ 박막의 (a) 비저항과 (b) Hall 계수.

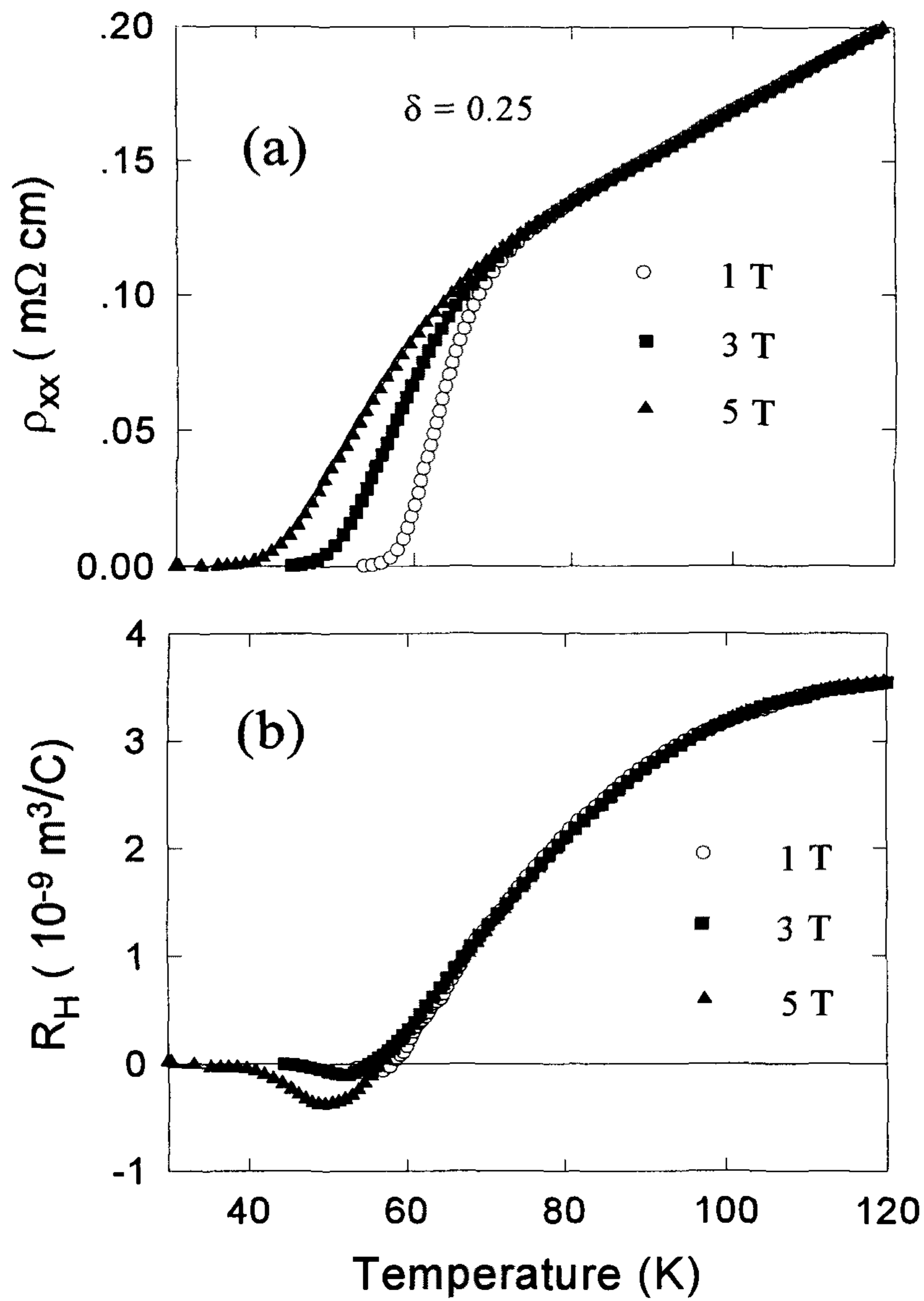


그림 4-1-4. 산소 결핍량이 $\delta \sim 0.25$ 인 $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ 박막의 (a) 비저항과 (b) Hall 계수.

은 앞의 두 시료에서 보이던 경향과는 아주 다른 특성을 보이고 있다. 앞의 경우와는 달리 자기장이 증가할수록 Hall 계수의 최소점의 깊이가 증가함을 볼 수 있다. 또한 전이구간내에 Hall 계수가 양의 부호를 갖는 곳에서, 자기장의 세기가 증가함에 따라 저항곡선은 점차 낮은 온도쪽으로 이동하고있는 반면에 Hall 계수의 곡선은 거의 변화가 없는 것으로 보인다.

그림 4-1-5는 산소 결핍량이 $\delta \sim 0.4$ 인 경우의 비저항과 Hall 계수의 온도의존성을 나타낸 것이다. Hall 효과의 부호변화가 보이지 않고 있다.

그림 4-1-6(a)는 산소 결핍량이 $\delta \sim 0.4$ 인 시료의 Hall 전도도를 여러 온도에서 자기장의 세기를 바꾸면서 측정한 것이다. Hall 전도도는 측정한 모든 온도와 자기장의 범위에서 양의 값을 가지며 부호변화는 없다. 임계온도에 가까울수록 정상상태의 Hall 효과와 같이 Hall 전도도가 자기장의 세기에 비례하는 성분이 두드러지며, 온도가 낮아질수록 자기장의 세기에 반비례하는 성분이 두드러지는 것을 볼 수 있다. 그림 4-1-6(b)는 산소결핍이 거의 없는($\delta \sim 0$) 시료의 Hall 전도도를 나타낸 것이다. 자기장의 세기에 비례하는 성분은 산소 결핍량 $\delta \sim 0.4$ 인 시료의 경우와 마찬가지로 양의 부호를 갖지만, 자기장의 세기에 반비례하는 성분은 산소 결핍량 $\delta \sim 0.4$ 인 시료의 경우와 반대의 부호를 갖는다. 두 결과를 비교해 볼 때 Hall 효과의 부호변화는 TDGL계산에서 말한 것처럼 Hall 전도도에서 자기장의 세기에 반비례하는 성분의 부호 변화에 의해 좌우되는 것을 알 수 있다. TDGL 계산결과에 따르면 Hall 전도도에서 자기장의 세기에 반비례하는 성분은 페르미 에너지에서 상태밀도의 에너지에 대한 기울기에 비례한다. $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ 초전도체의 경우에 산소 결핍량 δ 가 0.1 정도에서 페르미 표면이 상태밀도의 최고점을 지난다는 주장이 있다. 따라서 $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ 초전도체에서 산소가 빠짐에 따라 페르미 에너지에서 상태밀도의 에너지에 대한 기울기의 부호가 변한다면 앞에서 말한

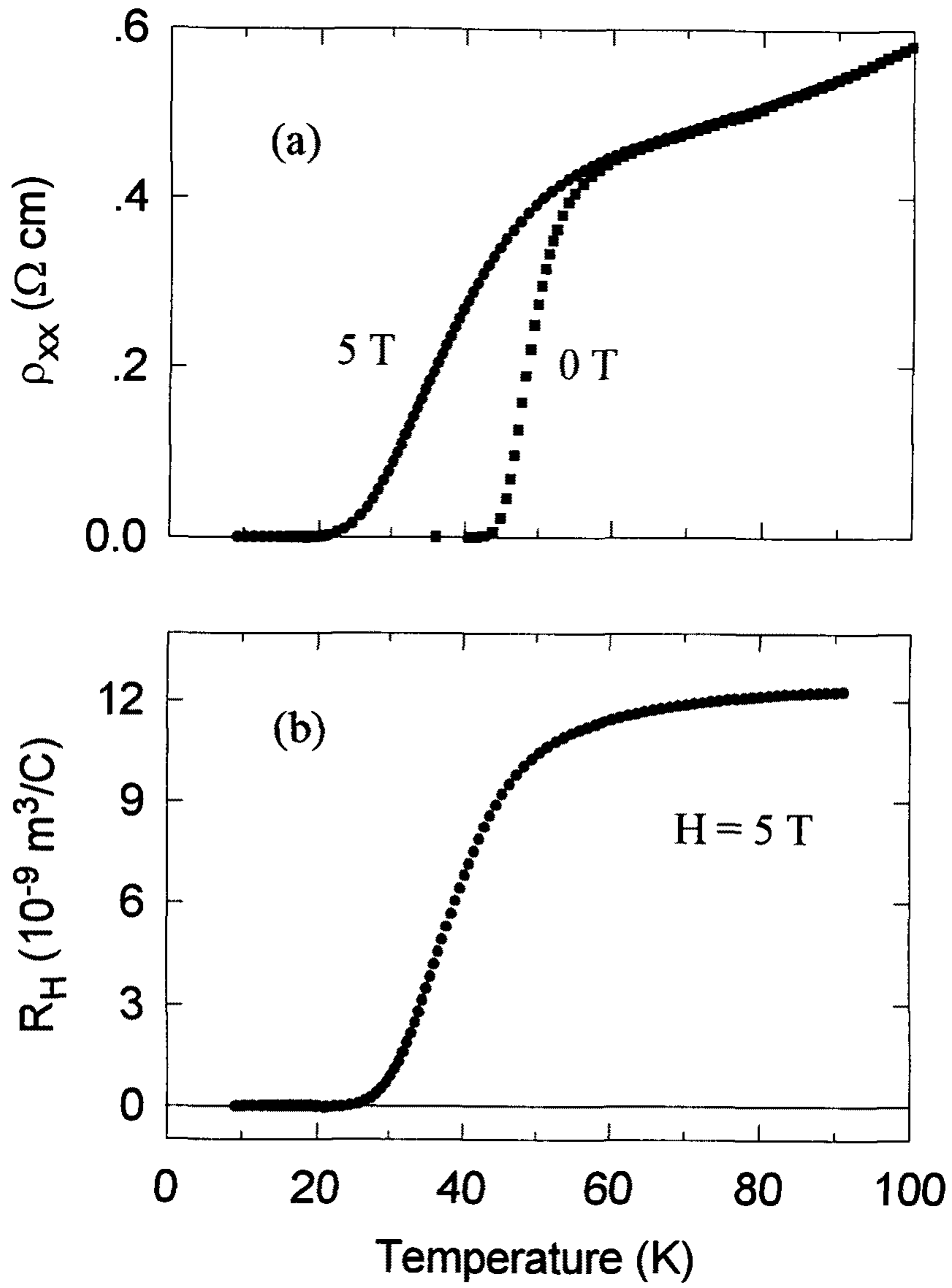


그림 4-1-5 산소 결핍량이 $\delta \sim 0.4$ 인 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 박막의 (a) 비저항과 (b) Hall 계수.

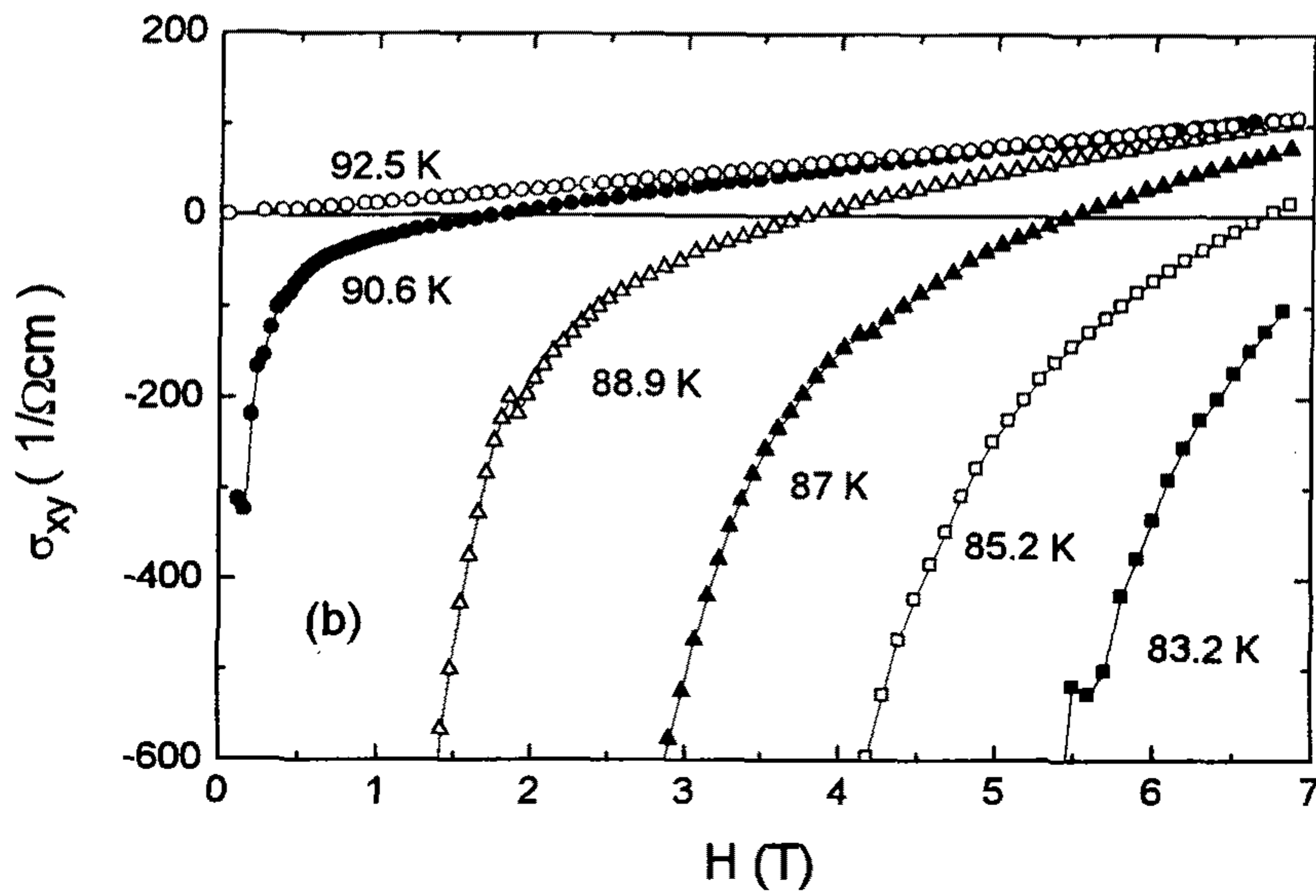
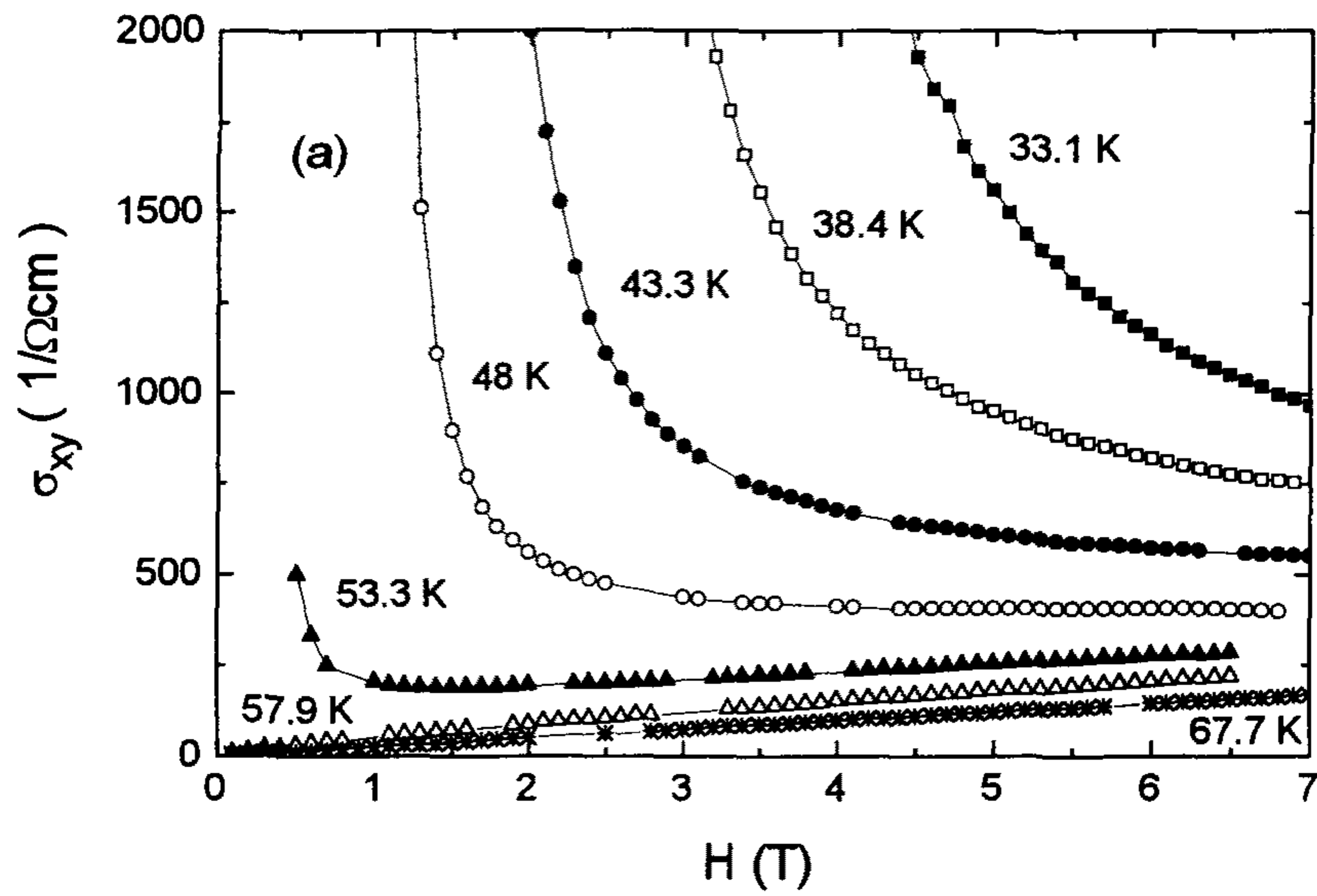


그림 4-1-6. 산소 결핍량이 (a) $\delta \sim 0.4$, (b) $\delta \sim 0$ 인 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 박막에서 온도를 바꾸면서 측정한 Hall 전도도의 자기장 의존성.

TDGL 계산결과와 잘 일치하게 된다.

$H_{c1} \ll H \ll H_{c2}$ 인 중간 크기의 자기장에 대하여도 TDGL 계산결과를 적용하기 위해 $\sigma_{xy} = aH + b/H$ 와 같은 형태의 interpolation formula 를 사용한다. Hall 전도도의 자기장 의존성이 이와 같은 형태로 나타난다면, $H\sigma_{xy} = aH^2 + b$ 의 형태로 만들어 a와 b를 구할 수 있다. 산소 결핍량 $\delta \sim 0.4$ 인 시료와 산소결핍이 거의 없는 ($\delta \sim 0$) 시료의 Hall 전도도를 $H\sigma_{xy} = aH^2 + b$ 의 형태로 만들어 각각 그림 4-1-7(a)와 그림 4-1-7(b)에 나타내었다. 두 경우 모두 자기장의 세기가 클 때에는 TDGL 계산결과에서 보인 바와 같이 $\sigma_{xy} = aH + b/H$ 의 형태로 나타나지만 자기장의 세기가 작을 때에는 이러한 형태에서 벗어나서 훨씬 급하게 Hall 전도도의 크기가 증가하고 있다. 이렇게 Hall 전도도가 $\sigma_{xy} = aH + b/H$ 의 형태에서 벗어나기 시작하는 자기장의 값은 각 온도에서 vortex pinning이 중요해지는 자기장의 값과 일치하는 것으로 보인다. 그림 4-1-8에 보인바와 같이 $\log V_{xx}$ 가 $1/H$ 에 비례하는 것을 알 수 있다. 온도가 일정할 때 기울기는 자속의 activation energy에 비례하는데 자기장의 세기가 어느 정도 감소했을 때 기울기가 급해져서 자속의 activation energy가 급격히 증가하는 것을 볼 수 있다. 그림에서 자기장이 계속 증가할 때 저항 값이 측정한 모든 온도에서 한 점으로 수렴함을 알 수 있는데 이것은 pinning force가 상대적으로 약하여 자속이 자유롭게 움직이는 flux flow 영역에서 예상되는 현상이다. 그림 4-1-8의 결과와 그림 4-1-7의 결과를 비교해 볼 때 자속의 pinning이 강하지 않은 온도와 자기장 영역에서는 Hall 전도도가 TDGL 계산결과처럼 $\sigma_{xy} = aH + b/H$ 의 형태에 잘 맞지만 자속의 pinning이 중요해지는 영역에서는 잘 맞지 않음을 알 수 있다. Vinokur 등은⁽¹⁸⁾ Hall 전도도는 자속의 pinning에 의하여 영향을 받지 않고 자속 본래의 성질에 의해 좌우된다고 하였다. 따라서 이 말이 맞다면 자속의 pinning을 고려하지 않은 TDGL 계산과

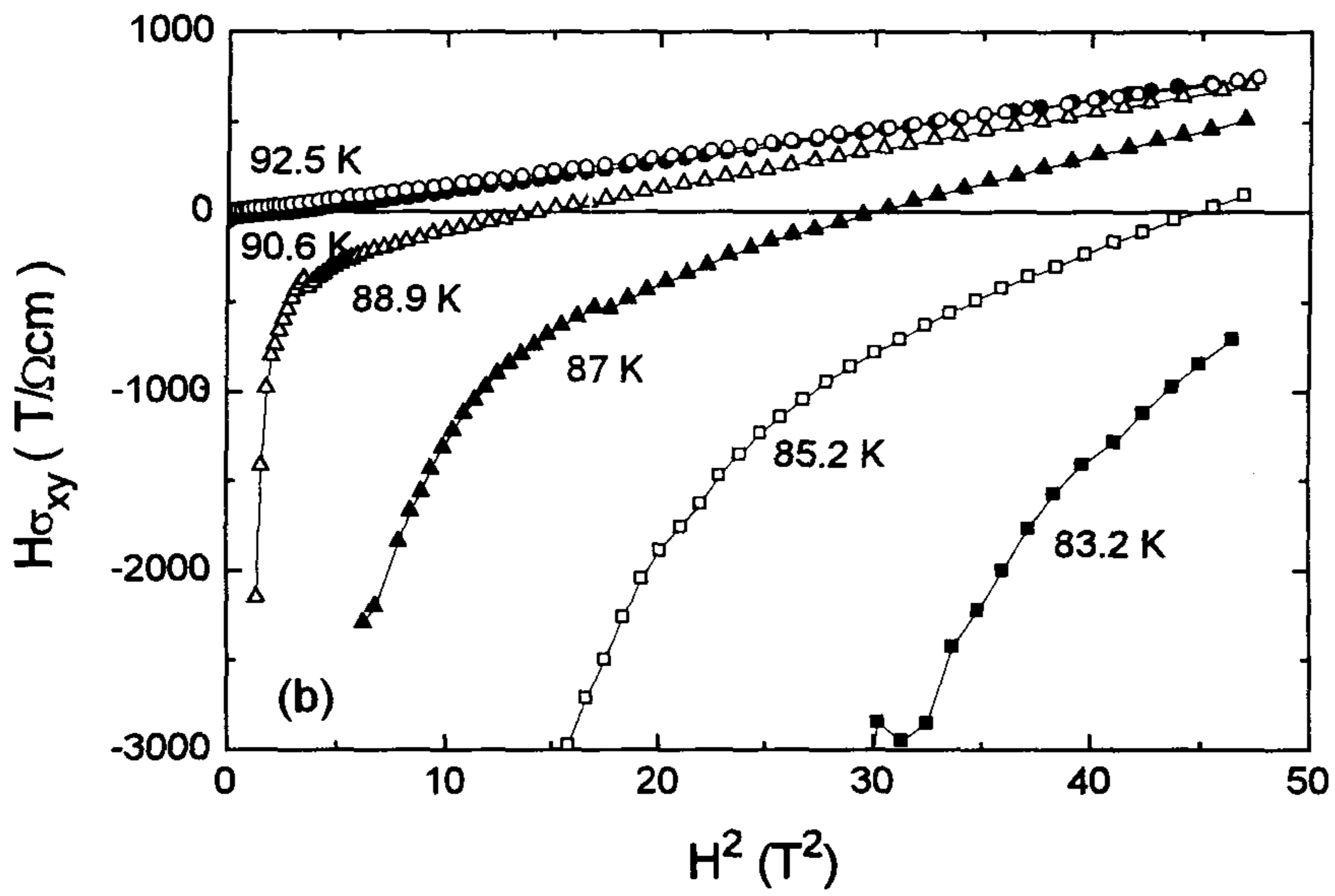
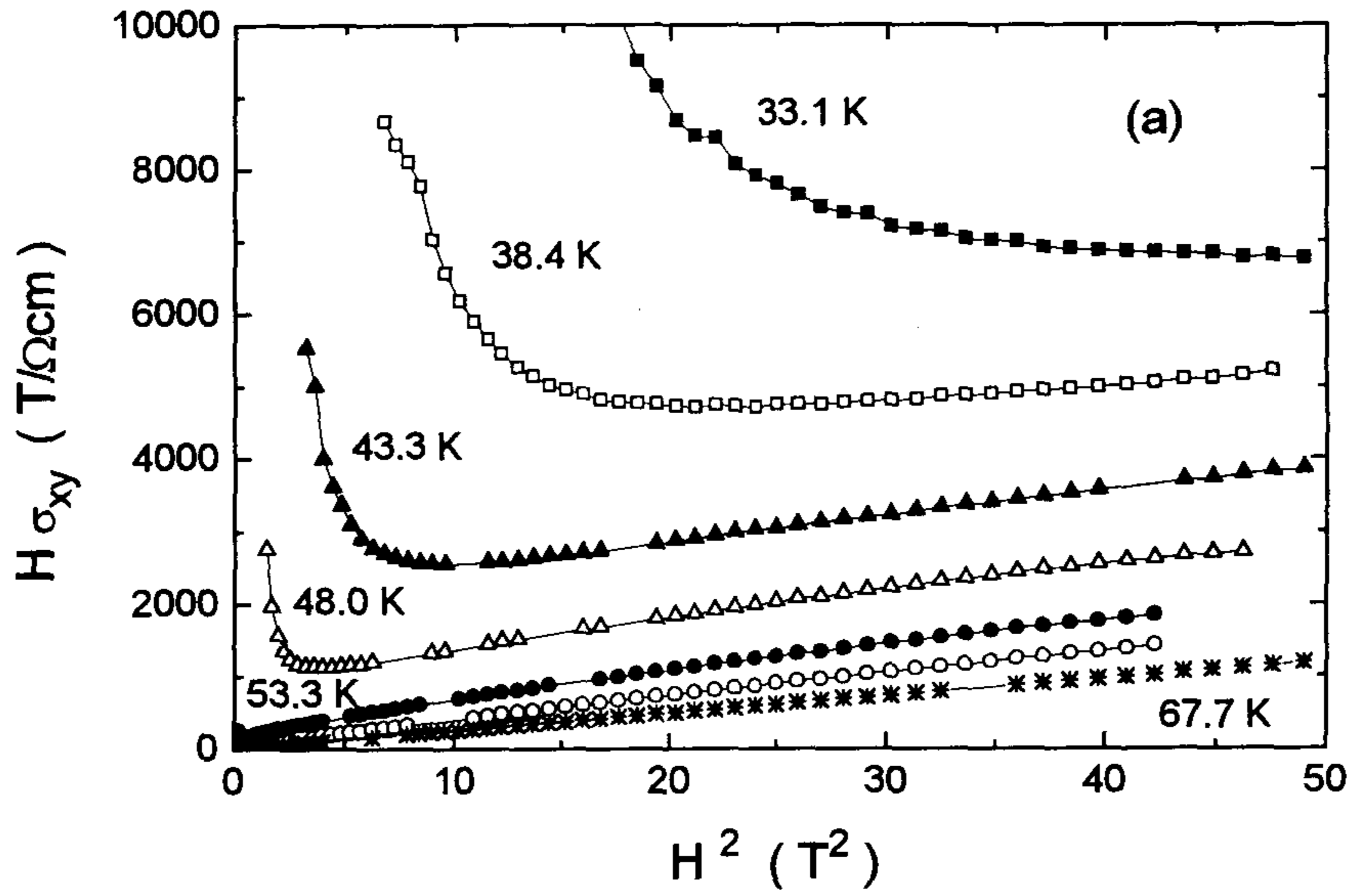


그림 4-1-7. $H\sigma_{xy}$ 를 H^2 에 대하여 그린 그림. (a) $\delta \sim 0.4$ (b) $\delta \sim 0.4$ 인 $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ 박막임.

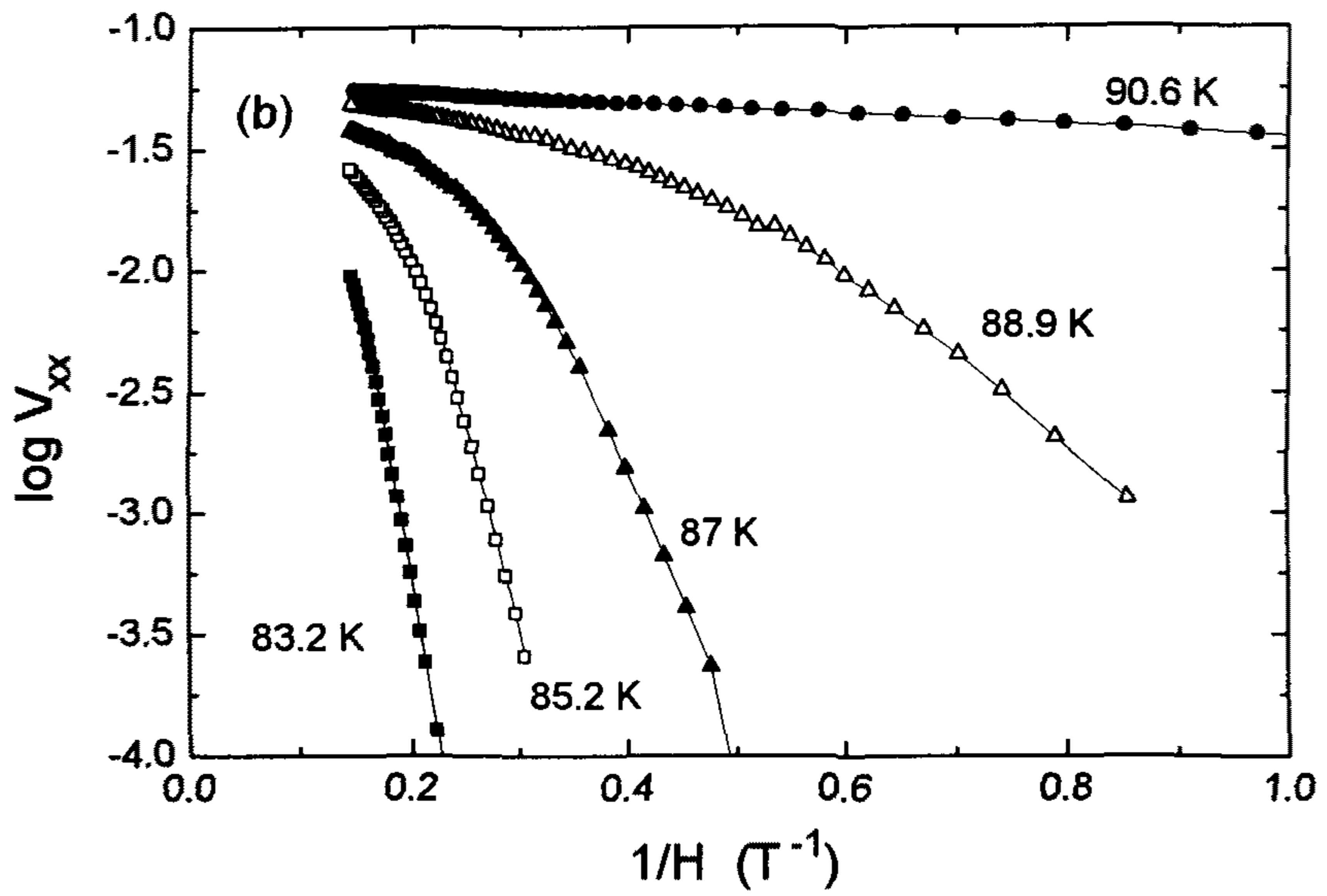
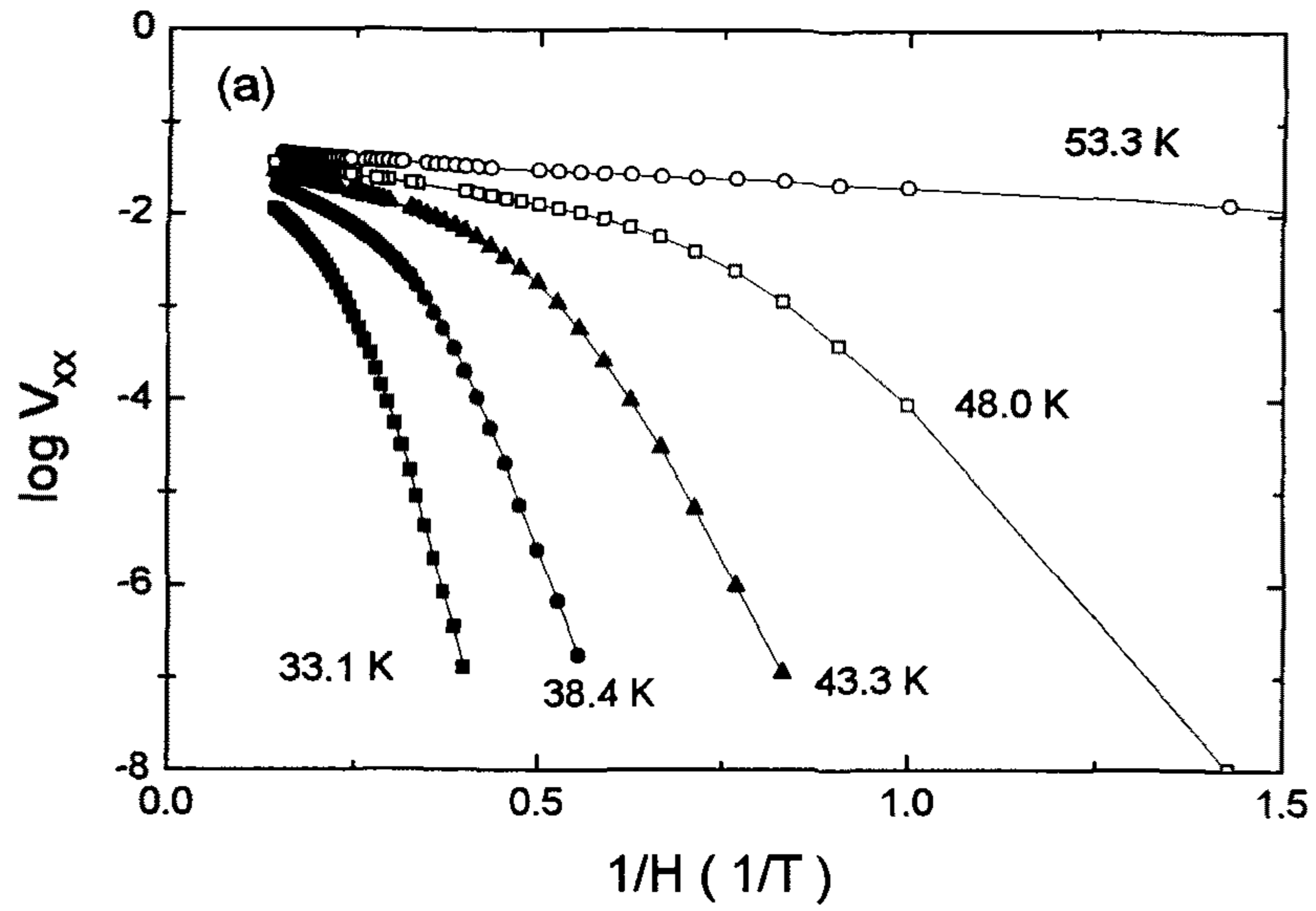


그림 4-1-8 산소 결핍량이 (a) $\delta \sim 0.4$, (b) $\delta \sim 0$ 인 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 박막에서 $\log V_{xx}$ 를 $1/H$ 에 대하여 그린 그림.

같은 경우도 자속의 pinning 이 있는 Hall 전도도를 계산하는데 사용할 수 있다. 하지만 앞의 실험 결과에서 보듯이 pinning 중요해지는 영역에서는 잘 맞지 않으므로, Hall 전도도가 실제로는 자속의 pinning에 의해 영향을 받을 가능성이 있다.

그림 4-1-9는 그림 4-1-7에서 구한 두 가지 성분의 온도 의존성을 나타낸 것이다. 그림 4-1-7에서 저온으로 갈수록 선형구간이 감소하기 때문에 두 성분의 계수를 구할 때의 오차가 커진다. 자기장에 반비례하는 성분인 b 는 두 경우 모두 부호에 상관없이 $b \sim (1-T/T_c)^2$ 와 같은 온도의존성을 보인다. 여기서 T_c 는 $T_{c,onset}$ 을 사용하였다.

산소결핍량 $\delta \sim 0.25$ 인 $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ 박막은 임계온도가 $T_{c,onset} \approx 70$ K 로서 90 K plateau와 60 K plateau 사이에 존재한다. 이 경우에는 앞의 경우와 달리 Hall 전도도에서 자기장에 반비례하는 성분이 측정 가능한 영역에서는 보이지 않는다(그림 4-1-10). 낮은 온도에서의 Hall 전도도는 음의 기울기를 갖고 자기장에 비례하는 성분과 자기장에 무관한 성분의 합으로 나타낼 수 있다. 저온으로 갈수록 기울기는 음의 방향으로 증가하고 자기장에 무관한 성분은 음의 방향으로 이동하고 있다. 온도가 증가하여 임계온도에 근접하면 자기장에 대하여 양의 기울기를 갖는 성분이 점차 나타나는 것처럼 보인다. 이러한 특성은 다른 고온초전도체에서는 보이지 않았는데 이러한 특성이 $\delta \sim 0.25$ 인 $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ 초전도체의 본질적인 성질을 나타내는 것인지 아니면 서로 다른 산소함량을 가진 $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ 가 섞여서 나타나는 효과인지 현재로서는 확실하지 않다.

그림 4-1-11(a)는 $\delta \sim 0.4$ 인 $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ 박막에서 자기장과 박막의 평면사이의 각도 θ 를 바꿀 때 전압의 자기장에 대한 의존성 변화를 나타낸 것이다. 자기장의 방향이 평면에 수직일 때 저항이 가장 크고 자기장과 평면사이의 각도가 작아질수록 저항이 작아지는 것을 볼 수 있다. 그림 4-1-11(b)는 앞의 결과를 평면에

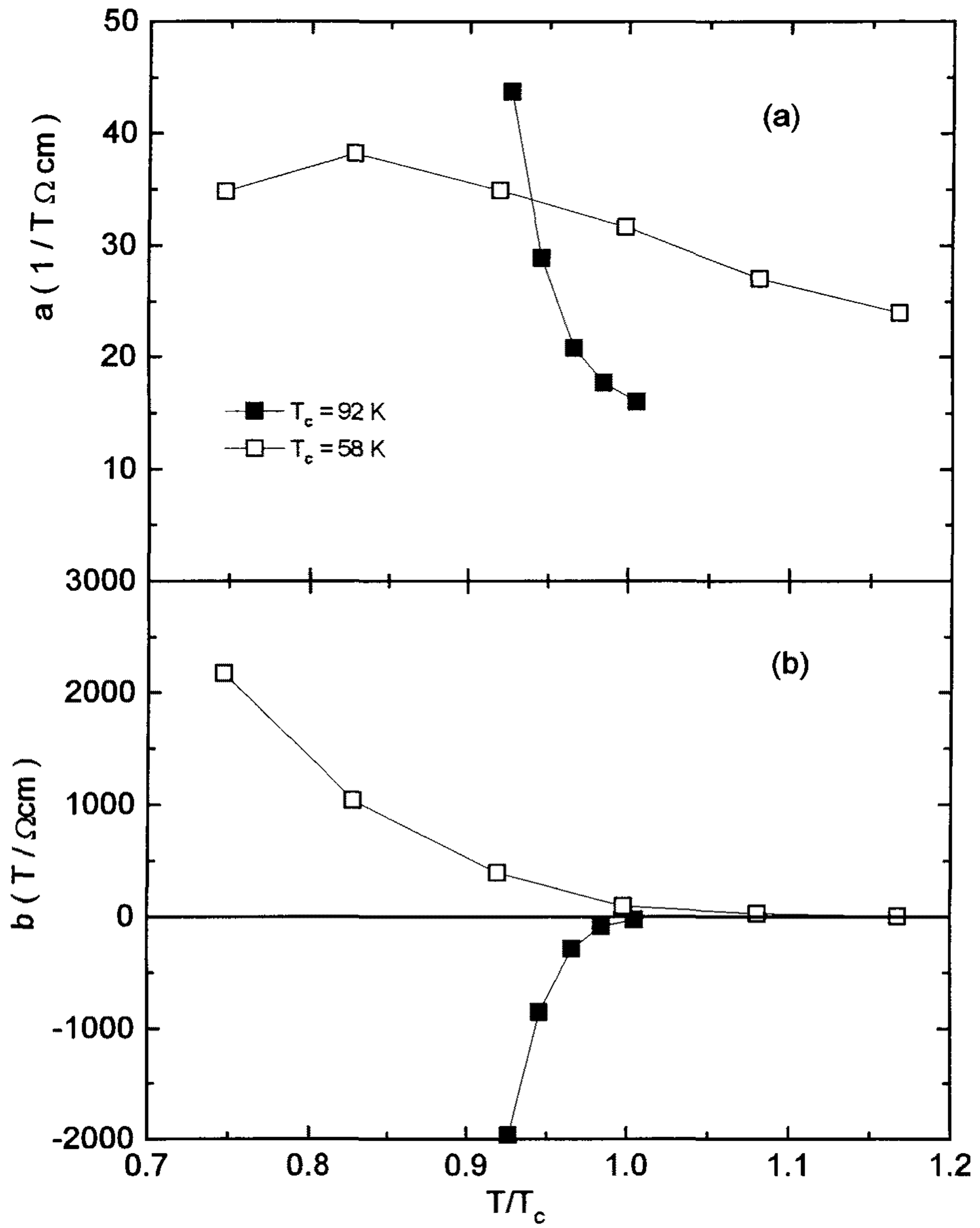


그림 4-1-9. $H\sigma_{xy} = aH^2 + b$ 의 식으로 Hall 전도도를 fitting해서 여러 온도에서 계수 (a) a 와 (b) b 를 구함.

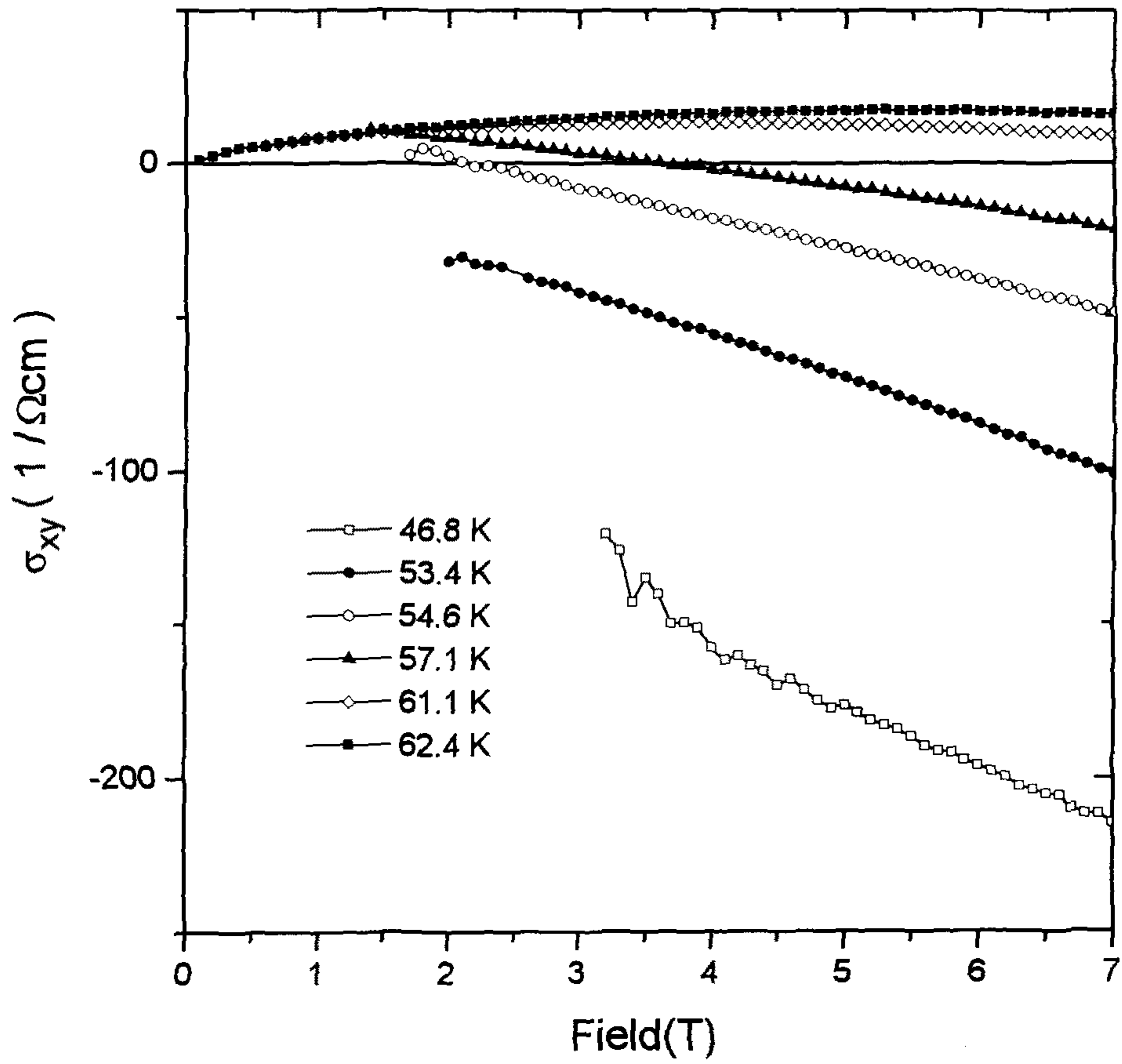


그림 4-1-10. $\delta \sim 0.25$, $T_{c,onset} = 65$ K인 $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ 박막에서 온도를 바꾸면서 측정한 Hall 전도도의 자기장 의존성.

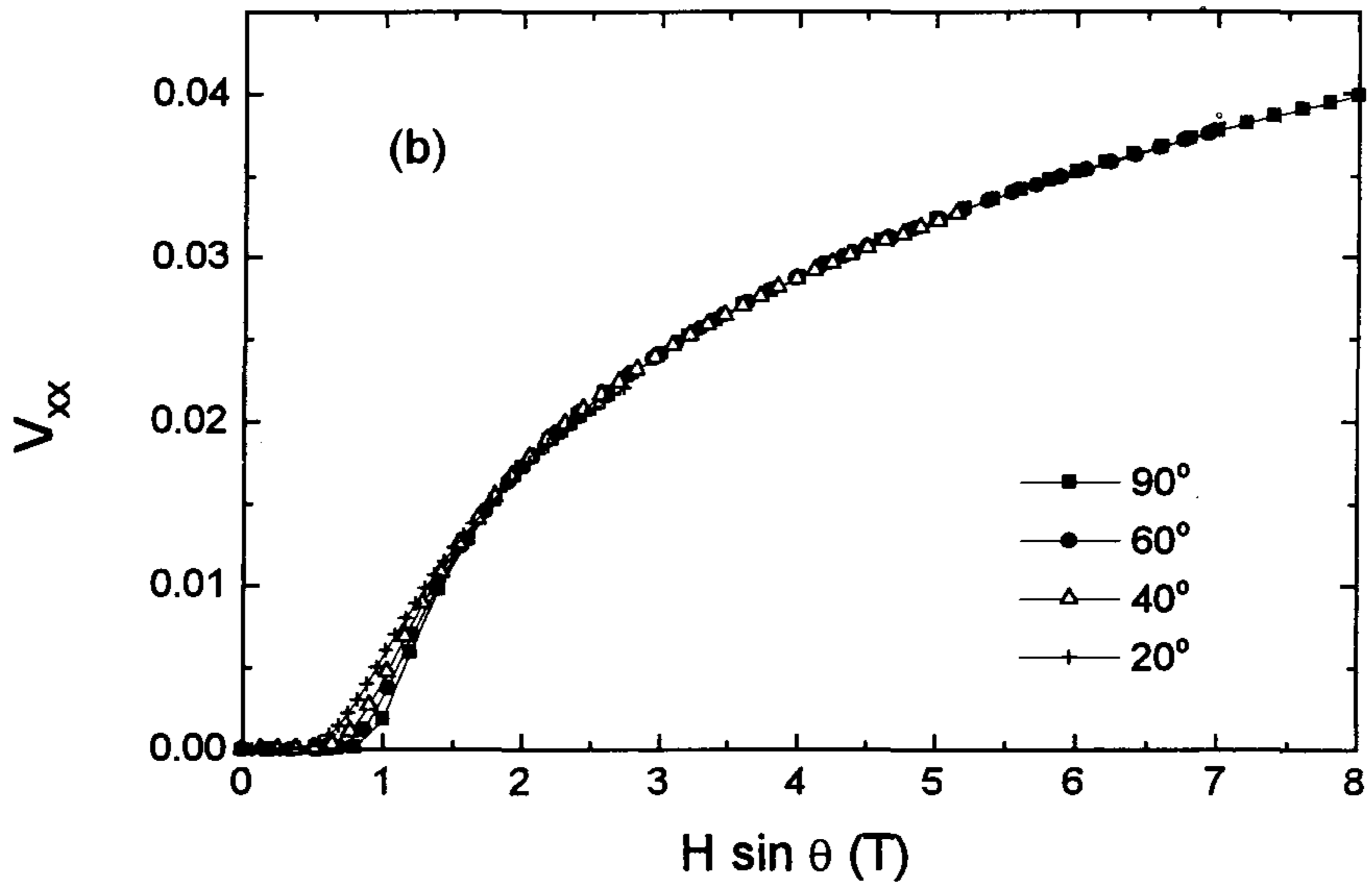
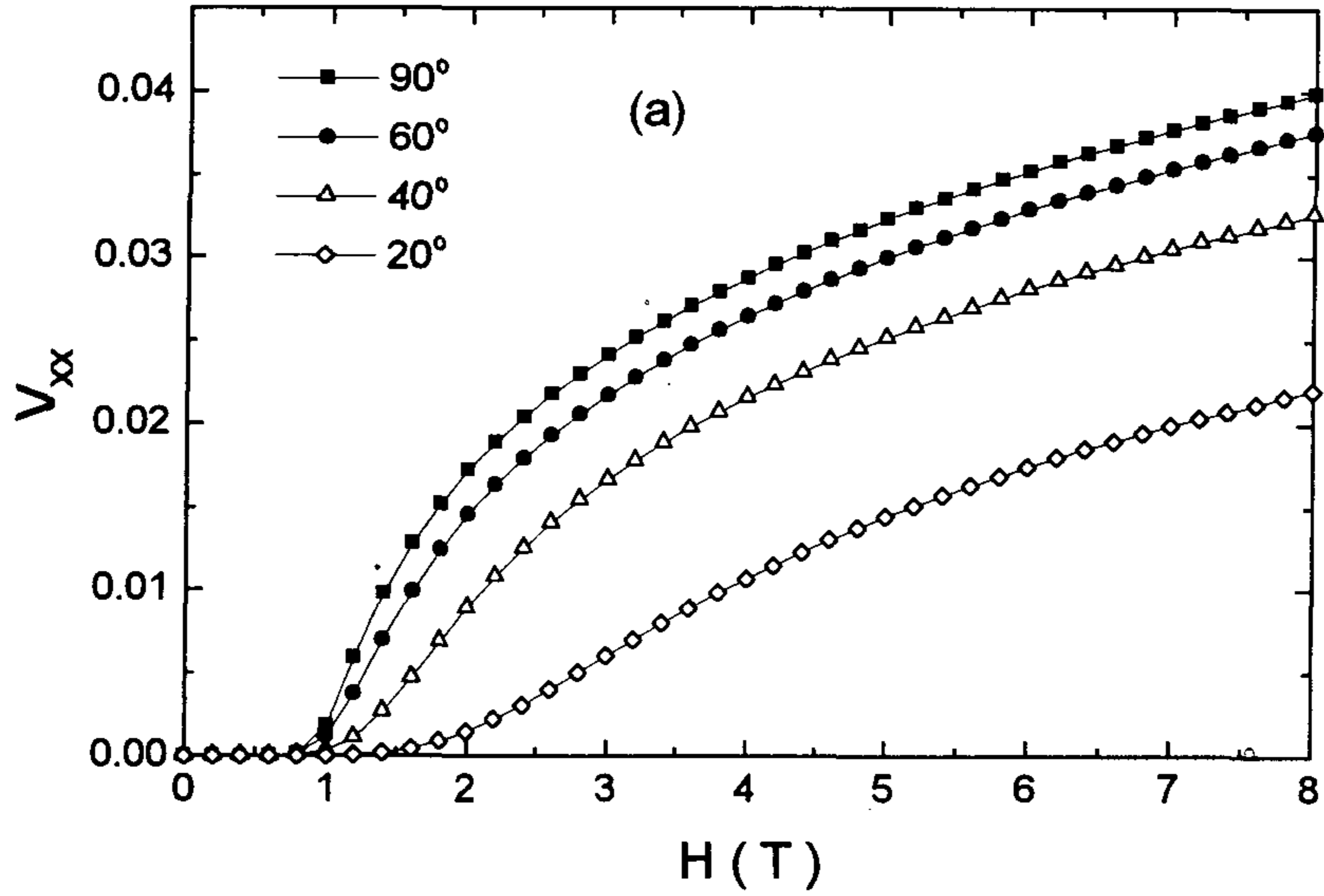


그림 4-1-11. $\delta \sim 0.4$, $T_{c,onset} = 58$ K인 $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ 박막에서 온도가 50 K 일 때 자기장의 각도를 여러가지로 바꾸면서 측정한 전압의 (a)자기장 H (b) c 축 방향의 자기장 성분 $H \sin \theta$ 에 대한 의존성.

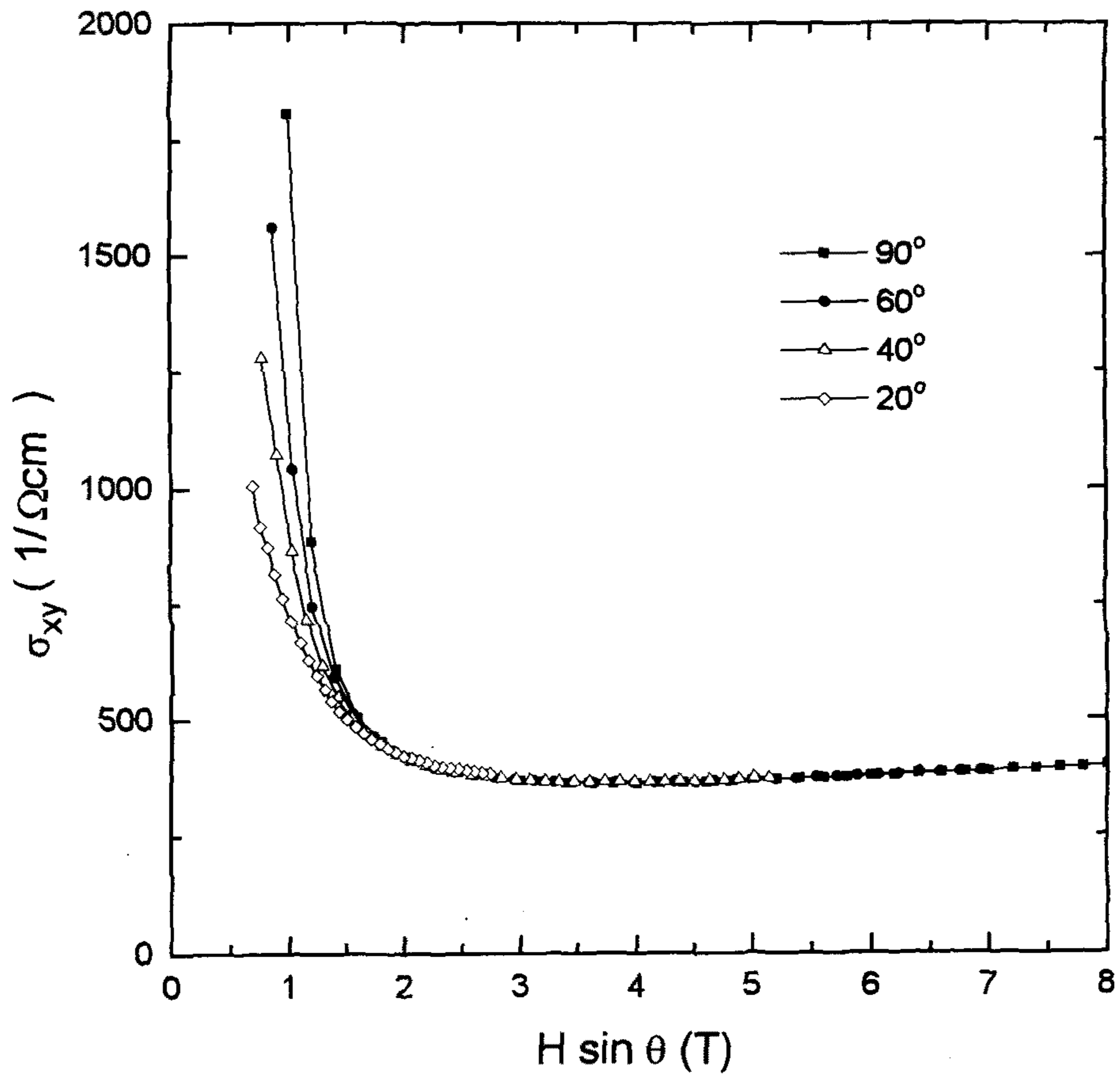


그림 4-1-12. $\delta \sim 0.4$, $T_{c,onset} = 58$ K인 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 박막에서 온도가 50 K 일 때 자기장의 각도를 여러가지로 바꾸면서 측정한 Hall 전도도의 c 축 방향의 자기장 성분 $H \sin \theta$ 에 대한 의존성.

수직 방향의 자기장 성분인 $H\sin\theta$ 에 대하여 그런 것이다. 자속의 pinning 이 중요해지는, 자기장이 작은 영역을 제외하면 측정된 모든 각도에서의 전압이 하나로 잘 합쳐지는 것을 볼 수 있다. Blatter 등⁽¹⁹⁾의 방법을 사용하여 질량 이방성 비율이 $\Gamma = 1/\varepsilon^2 = m_c/m_{ab}$ 인 이방성 계를 등방성 계로 변환하여 생각할 때, c축 방향의 길이는 $1/\varepsilon$ 배로 늘어나고 평면방향의 자기장 성분의 크기는 ε 배로 감소한다. 점과 같은 형태의 결함에 의한 pinning center는 c축 방향으로 길쭉한 모양이 된다. 따라서 변환된 등방성 계에서 같은 크기의 유효 자기장이라도 c축 방향으로 향할수록 자속의 pinning이 강해져서 저항이 감소하게 된다. 그림 4-1-11(b)는 이와 같은 경향을 보여주고 있다. 앞의 설명을 따르면 이방성이 큰 계에서는 $\theta > \varepsilon$ 일 때 평면에 수직 방향의 자기장 성분만이 중요해지므로 실제적으로 대부분의 각도에서 평면에 수직 방향의 자기장 성분만으로 전압이 결정된다. 그림 4-1-11(b)에서 자기장이 세어져서 자속의 pinning이 중요하지 않은 영역에서는 평면에 수직 자기장 성분인 $H\sin\theta$ 만으로 저항이 결정되는 것을 보여주는데, 이로부터 우리가 예상한 바와 같이 산소가 많이 빠져서 $\delta \sim 0.4$ 인 $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ 박막의 경우에 이방성이 매우 커서 이차원 계와 같은 특성을 보임을 알 수 있다. 질량 이방성 비율 Γ 를 고려한 3차원 계의 각도에 대한 scaling을 사용하여 앞의 결과를 맞춘 경우에 Γ 가 대략 500을 넘으면 $H\sin\theta$ 를 사용한 이차원 특성과 구분할 수 없었다. 따라서 $\delta \sim 0.4$ 인 $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ 박막의 경우 질량 이방성 비율 Γ 가 최소한 500 이상임을 알 수 있다.

그림 4-1-12는 자기장의 각도변화에 따라 Hall 전도도의 자기장 의존성을 평면에 수직 자기장 성분에 대해 나타낸 것이다. 앞의 저항의 각도 의존성과 비슷하게 대부분의 자기장 영역에서 측정된 모든 각도에서의 값이 일치하여 이차원 특성을 보이고 있다. 하지만 자속의 pinning이 중요해지는 작은 자기장 영역에서는 각

도 의존성을 보이고 있다. 앞에서 살펴본 바와 같이 이방성이 강한 계에서는 점과 같은 형태의 pinning center라 하더라도 pinning force가 각도 의존성을 보이게 되는데, 그림에서 보는 바와 같이 여러 각도에 대한 Hall 전도도가 하나로 합쳐지지 않고 각도 의존성을 보이는 것은 Hall 전도도가 pinning에 의하여 영향을 받을 수 있음을 시사하고 있다.

Blatter⁽¹⁹⁾ 등에 의한 이방성 계의 각도에 대한 scaling 이론에서, 이방성 계를 등방성 계로 변환시켰을 때 유효자기장에 의해 저항이 결정되게 되는데, 산소결핍이 거의 없는($\delta \sim 0$) $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 박막에서 자기장의 각도변화에 따른 저항의 자기장 의존성을 이러한 유효 자기장에 대하여 그림 4-1-13에 나타내었다. 질량 이방성 비율 Γ 를 100으로 해서 유효 자기장을 계산했을 때, 자기장이 큰 영역에서 여러 각도에 대한 저항곡선이 하나로 일치했다. 하지만 이 시료의 경우에도 작은 자기장 영역에서는 곡선이 하나로 합쳐지지 않고, 같은 크기의 유효 자기장에서 자기장이 방향이 평면에 수직할수록 저항이 작아지는 각도 의존성을 보인다.

그림 4-1-14에서는 Blatter의 방법에 따라 scale된 Hall 전도도와 유효자기장의 관계를 나타내었다. 저항의 경우와 마찬가지로 질량 이방성 비율 Γ 를 100으로 해서 계산했을 때 자기장의 큰 영역에서는 하나의 곡선으로 합쳐지지만 자기장이 작은 영역에서는 각도 의존성을 보이고 있다. 작은 각도에서 자기장이 작을 때 Hall 전도도의 자기장 의존성에서 최소점이 있는 것처럼 보이는데, 그 원인은 아직 확실치 않다.

5. 요약

$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 박막 고온초전도체에서 산소함량을 바꾸어 가면서 초전도 전이구간의 Hall 효과를 측정하였다. $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 초전도체에서 산소가 빠짐에 따라

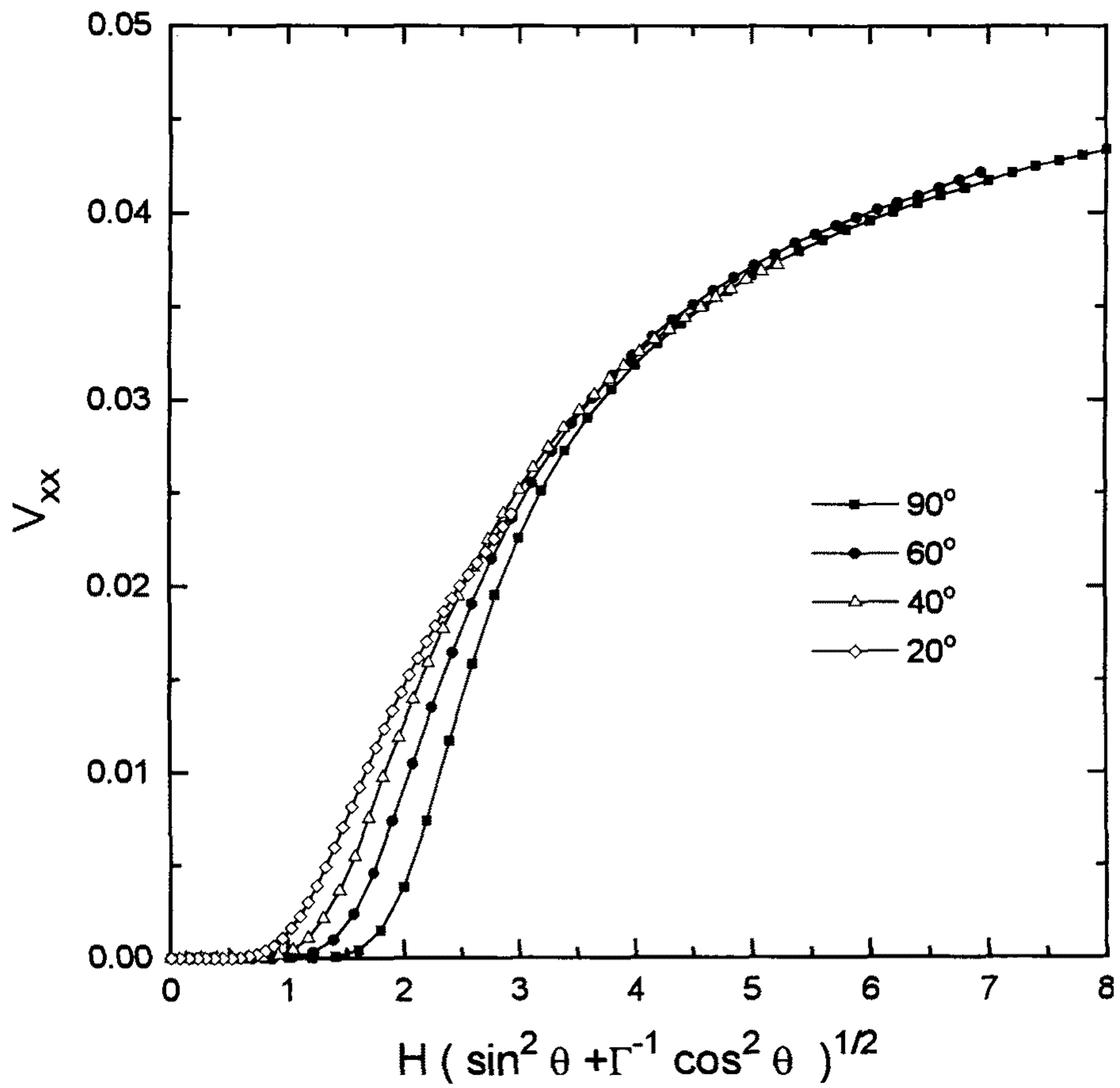


그림 4-1-13. $\delta \sim 0$, $T_{c,onset} = 92$ K인 $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ 박막에서 온도가 88 K일 때 자기장의 각도를 여러가지로 바꾸면서 측정한 전압을 $\Gamma = 100$ 을 사용하여 축척변환된 자기장 $H[\sin^2\theta + \Gamma^{-1}\cos^2\theta]^{1/2}$ 에 대하여 그림.

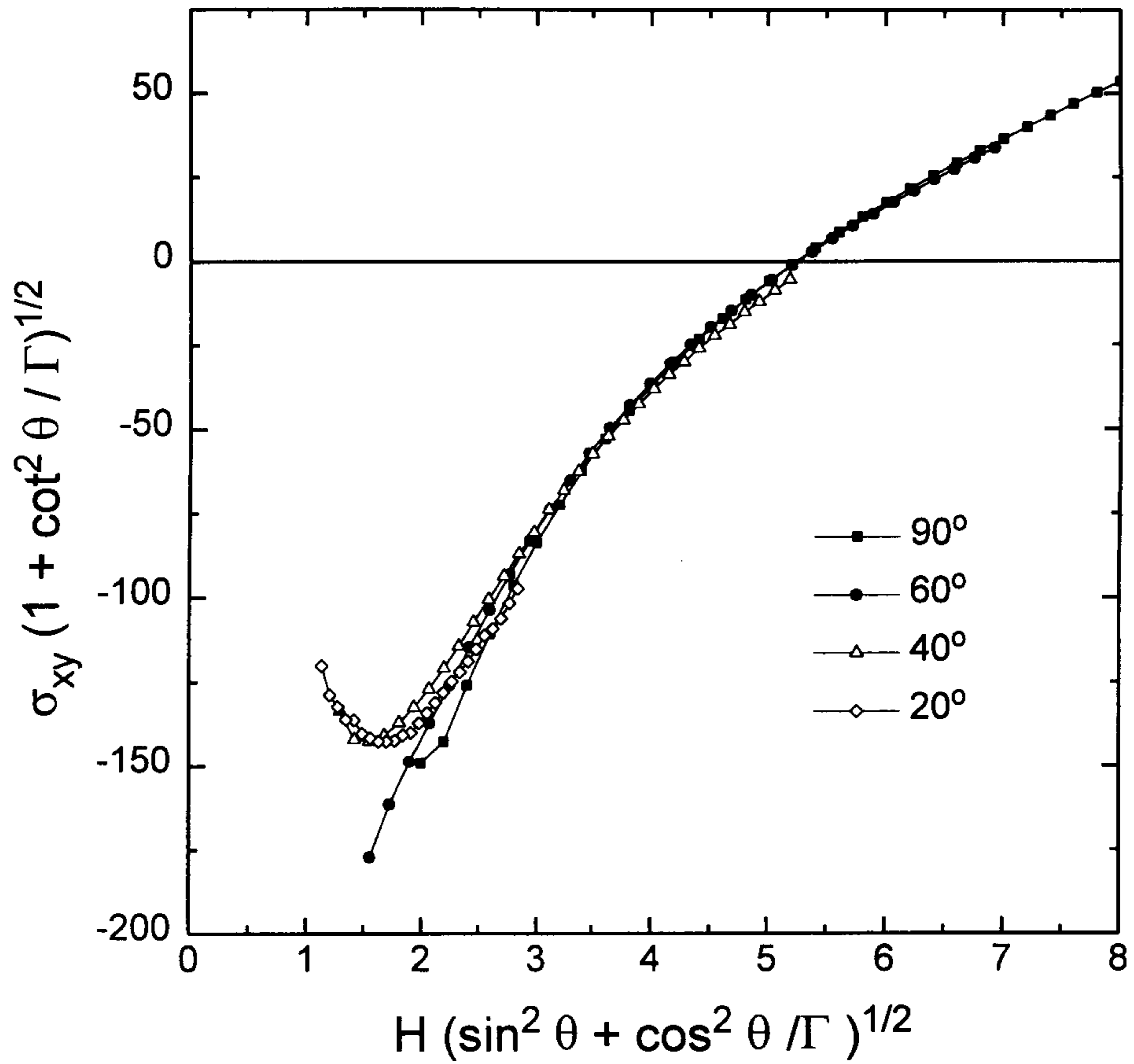


그림 4-1-14 $\delta \sim 0$, $T_{c,onset} = 92$ K인 $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ 박막에서 온도가 88 K 일 때 $\Gamma = 100$ 을 사용하여, 축척변환된 Hall 전도도 $\sigma_{xy}[1+\Gamma^{-1}\cot^2\theta]$ 를 축척변환된 자기장 $H[\sin^2\theta+\Gamma^{-1}\cos^2\theta]^{1/2}$ 에 대하여 그림.

Hall 효과의 부호변화를 주는 성분이 점차 사라지는 것을 볼 수 있었다. 하지만 임계온도의 90 K plateau와 60 K plateau 사이에 해당하는 $\delta \sim 0.25$ 인 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 박막의 경우 다른 시료들과는 다른 특이한 특성을 보이는데 이 것이 $\delta \sim 0.25$ 인 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 초전도체의 본질적인 성질인지 아닌지는 아직 확실하지 않다. $\delta \sim 0.05, 0.4$ 인 시료에서 자기장의 변화에 따른 Hall 전도도는 큰 자기장에서 자기장에 비례하는 성분과 반비례하는 성분의 합으로 나타낼 수 있다. 자기장에 반비례하는 성분은 부호에 상관없이 대략 $(1-T/T_c)^2$ 의 온도 의존성을 갖는데 이 성분의 크기와 부호변화가 Hall 효과의 부호변화를 좌우하는 것으로 보인다.

자기장의 각도에 따른 저항과 Hall 전도도의 변화는 자기장이 큰 영역에서는 Blatter 등⁽¹⁹⁾에 의한 scaling 이론으로 각도 의존성을 잘 설명할 수 있었다. $\delta \sim 0.4$ 인 시료의 경우에 이방성이 커서 저항과 Hall 전도도가 c축 방향의 자기장 성분에 의해서 결정되었고, $\delta \sim 0$ 인 시료의 경우에 질량 이방성 비율 Γ 를 100 정도로 했을 때 각도 의존성을 잘 설명할 수 있었다. 자기장이 작아져서 pinning이 중요하게 작용하는 것으로 생각되는 영역에서는 저항이나 Hall 전도도가 앞서와 같은 각도의 scaling을 따르지 않는다. 저항의 경우에는 pinning을 고려하여 정성적으로 이해할 수 있지만, Hall 전도도는 Vinokur 등[]에 의하면 pinning에 의하여 영향을 받지 않는데 실험결과에 의하면 Hall 전도도가 pinning에 의하여 영향을 받는 것처럼 보인다.

제 2 절 Borocarbide의 자기적 성질

액체 질소 온도 이상의 임계온도를 가진 산화물 고온 초전도체의 발견 이후, 대부분의 초전도 연구는 YBCO, BSCCO 등에 집중되어 왔지만 산화물이 갖고 있는 단점 때문에 그 응용면에서 많은 어려움이 있어왔다. 최근에 금속간 화합물에서 최고 23 K의 임계온도를 갖는 초전도성이 발견된 사실은 새로운 방향으로의 초전도 연구를 촉발시키는 계기가 되었다⁽²¹⁾. 본 연구에서는 새로 발견된 금속간 화합물 초전도체 중 quaternary borocarbide계 초전도체인 $\text{LnNi}_2\text{B}_2\text{C}$ ($\text{Ln}=\text{Lu}, \text{Y}, \text{Ho}$) 단결정의 자기적 성질을 조사하였다.

실험은 SQUID magnetometer(Quantum Design Inc.)를 이용하였고, 자기장은 넓은 면에 평행한 방향($H // ab$ plane)으로 걸어서 demagnetization factor에 의한 영향이 없는 쪽을 택했다. 실험에 사용된 시료들의 크기와 -2 G의 자기장 아래에서 Field-Cooling 방법으로 측정한 임계온도, 전이 폭, Meissner fraction(M-f) 등은 표 4-2-1에 정리되어 있다.

표 4-2-1. 시료의 크기와 기본특성

| 시료 | 두께 | 단면적 | 임계온도 | 전이 폭 | m(10 K) | M-f |
|-----------------------------------|---------|---------------------|--------|-------|---------------------------|--------|
| $\text{LuNi}_2\text{B}_2\text{C}$ | 0.36 mm | 1.7 mm ² | 15.7 K | 0.2 K | 2.07×10^{-5} emu | 21.4 % |
| $\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$ | 0.24 mm | 3.6 mm ² | 15.4 K | 0.3 K | 2.39×10^{-5} emu | 17.3 % |
| $\text{HoNi}_2\text{B}_2\text{C}$ | 0.14 mm | 1.5 mm ² | 7.5 K | | | |

그림 4-2-1은 $\text{LuNi}_2\text{B}_2\text{C}$ 시료의 자기이력곡선을 측정하여 자기장을 증가시킬

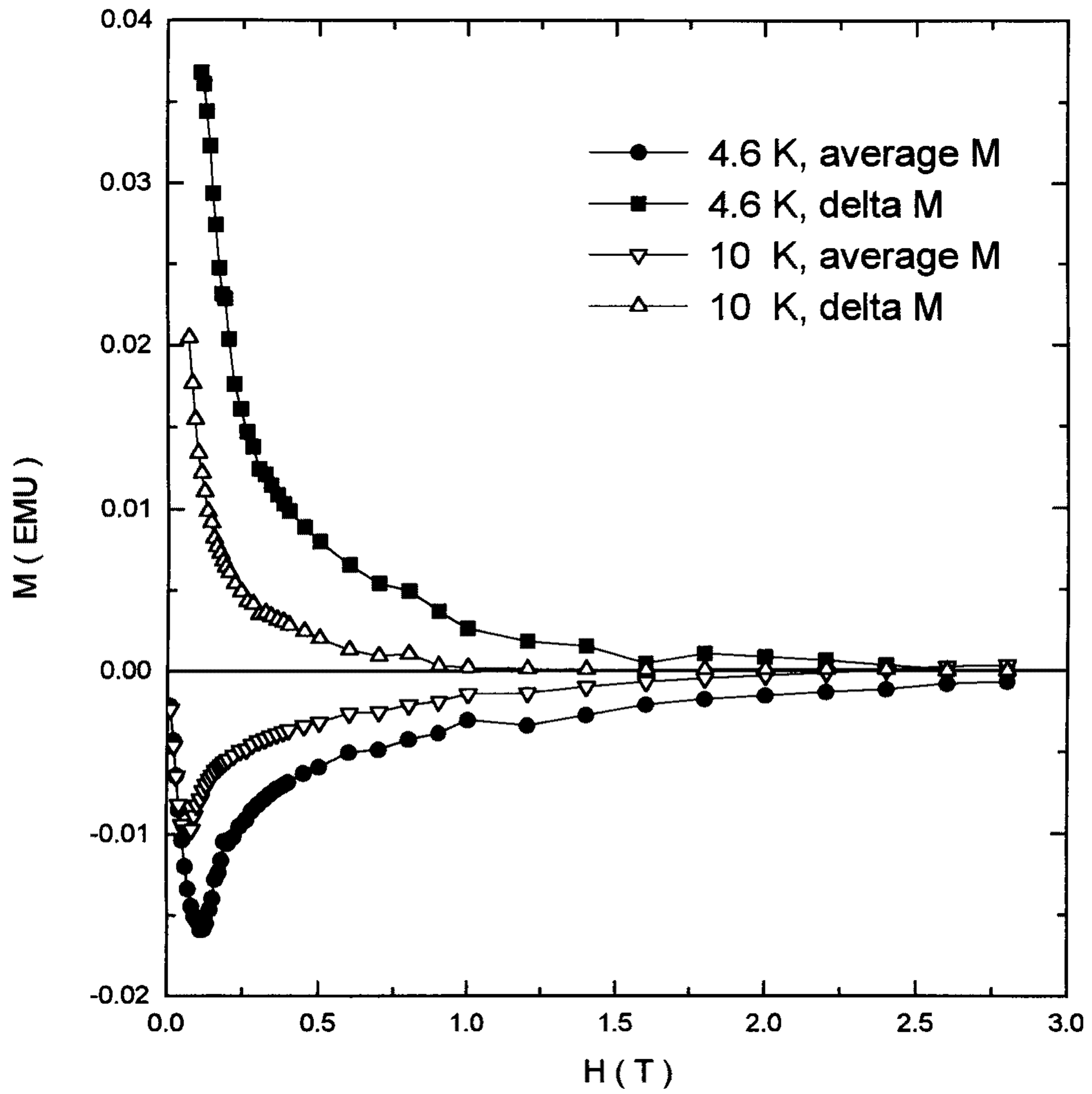


그림 4-2-1. 4.6 K와 10 K에서의 $\text{LuNi}_2\text{B}_2\text{C}$ 자기이력곡선.

때와 감소시킬 때의 평균값과 차이값을 그린 것이다. 자기장이 감소할 때의 이력 곡선 형태로 보아, 이 시료의 경우 bulk pinning은 약한 편이고, 상대적으로 surface pinning의 효과가 크다고 생각할 수 있다. 이는 시료의 layered structure와 관계된 것으로 생각되지만 아직 정확한 설명을 할 수는 없다. 자기이력곡선으로부터 4.6 K와 10 K에서의 임계자장을 구할 수 있는데, H_{c1} 은 Zero-Field-Cooling 상태에서 자기장을 천천히 증가시킬 때 자기 모멘트가 선형으로 증가하다가 벗어나는 곳으로 그 상한값을 얻을 수 있다(surface pinning이 있으면 실제 H_{c1} 보다 큰 값을 주게 된다). 또한 H_{c2} 는 자기장을 증가 및 감소시키면서 측정된 자기 모멘트의 평균값을 London limit의 결과에 fitting하여 얻을 수 있다. 그 결과 및 이로부터 계산한 대략의 coherence length, penetration depth, 그리고 κ 값 등을 표 4-2-2에 정리하였다.

표 4-2-2. $\text{LuNi}_2\text{B}_2\text{C}$ 의 임계자장 및 기본상수

| 온도 | H_{c1} | H_{c2} | ξ | λ | κ |
|--------|--------------|----------|---------|-----------|----------|
| 4.6 K | ≤ 500 G | 3.6 T | 9.6 nm | 84.8 nm | 8.9 |
| 10.0 K | ≤ 300 G | 2.2 T | 12.2 nm | 109.7 nm | 9.0 |

$\text{HoNi}_2\text{B}_2\text{C}$ 초전도체는 임계온도는 낮지만, 초전도성과 반강자성이 공존하는 시스템이라는 면에서 물리적으로 흥미 있는 시료이다. 이 시스템은 7.5 K에서 초전도 전이를 한 뒤, 5 K 부근에서 반강자성 전이를 한다는 것이 중성자 산란 실험 등을 통해 밝혀졌다⁽²²⁾ 또한 local magnetic moment의 영향으로 $H_{c2}(0)$ 가 $\text{LuNi}_2\text{B}_2\text{C}$ 나 $\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$ 보다 1/10 이하로 감소한다고 알려져 있다⁽²³⁾. 측정 결과, 반강자성 전이구간(≈ 5 K)에서는 $H_{c2} < 100$ G 로 작아져서 온도를 낮추면 normal

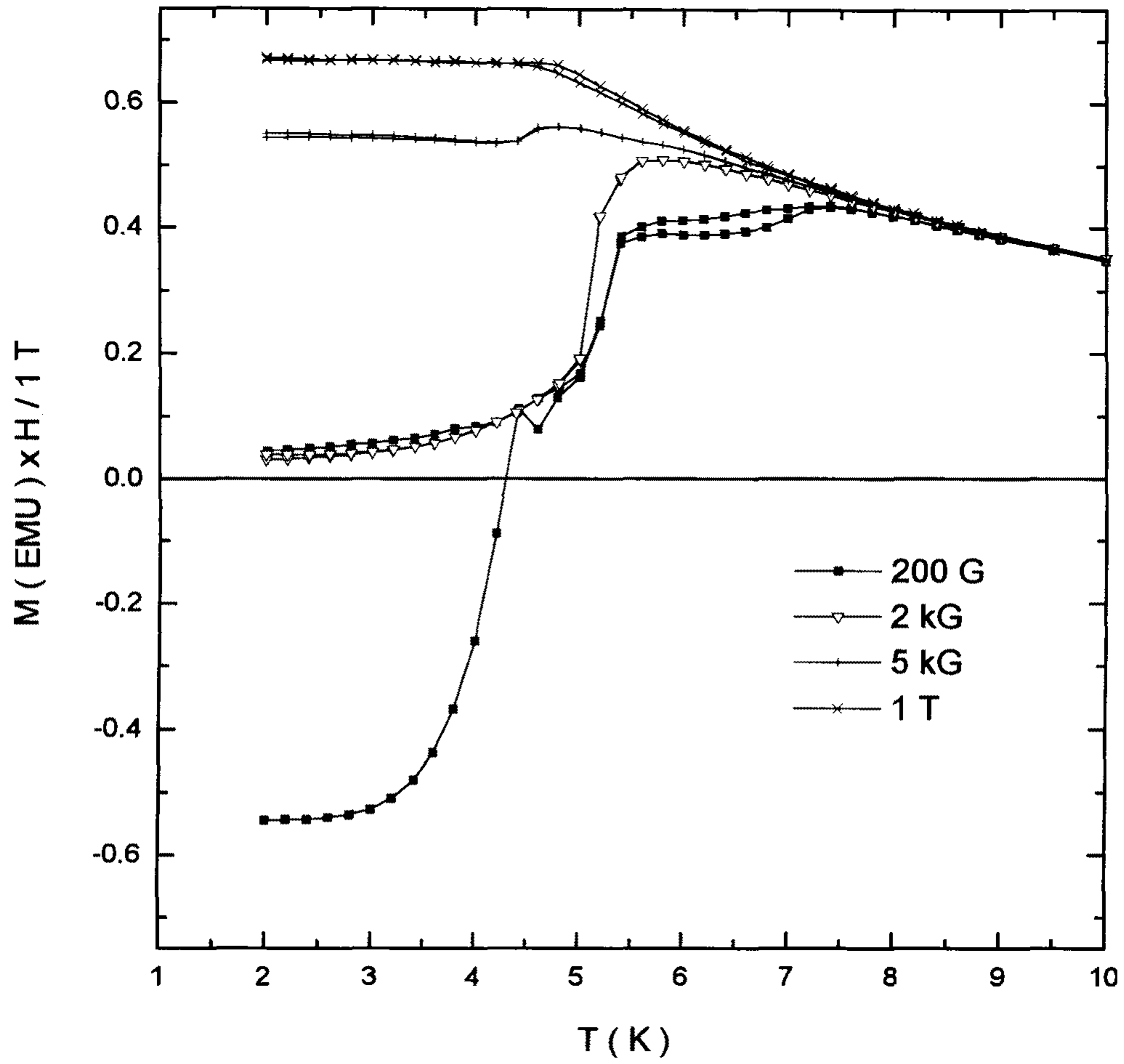


그림 4-2-2. $\text{HoNi}_2\text{B}_2\text{C}$ 시료의 ZFC와 FC $M(T,H)$ 곡선.

state가 되었다가, 더 낮추면 다시 초전도성을 보이는 nearly re-entrant behavior를 보였다(그림 4-2-2). $H = 2 \text{ kG} > H_{c2}(0)$ 이면 초전도 전이는 하지 않고 전형적인 반강자성 전이 특성을 보인다. 자기장을 더욱 증가시켜서 온도에 따른 자기모멘트의 변화를 측정한 결과, 5 K 이하에서 saturated paramagnetism을 보임을 알 수 있다.

반강자성 전이를 잘 나타내 줄 수 있는 실험은 specific heat(C_p)의 측정인데 전이온도 근방에서는 $C_p \approx d(\chi T)/dT$ 임이 알려져 있어서⁽²⁴⁾, 실험 결과를 수치미분을 통해 각 자기장에 대한 $d(\chi T)/dT$ 를 구해 보았다(그림 4-2-3). 그림에서 보듯 작은 자기장에서는 peak가 확실하게 보이지만 5 kG 이상의 큰 자기장에서는 peak가 사라지고 saturated magnetic moment에 의한 constant background가 보인다. peak를 Lorentz 함수에 fitting한 결과가 표 4-2-3에 있는데, 이 결과 $T_N = 5.2 \text{ K}$ 를 얻을 수 있고, 자기장이 커짐에 따라 peak가 점점 sharp해짐을 알 수 있다.

표 4-2-3. $\text{HoNi}_2\text{B}_2\text{C}$ 의 $d(\chi T)/dT$ Lorentz-fitting

| 자기장 | T_N | δT | peak 상대높이 |
|--------|--------|------------|-----------|
| 1.0 kG | 5.22 K | 0.58 K | 100 |
| 1.5 kG | 5.16 K | 0.49 K | 116 |
| 2.0 kG | 5.13 K | 0.42 K | 129 |

현재까지의 측정 결과는 기존에 보고된 것과 잘 부합되고 있는데, 이후 교류자화율이나 수송특성 측정 등을 통해 초전도성과 반강자성의 상관관계에 대한 세밀한 연구가 필요하다.

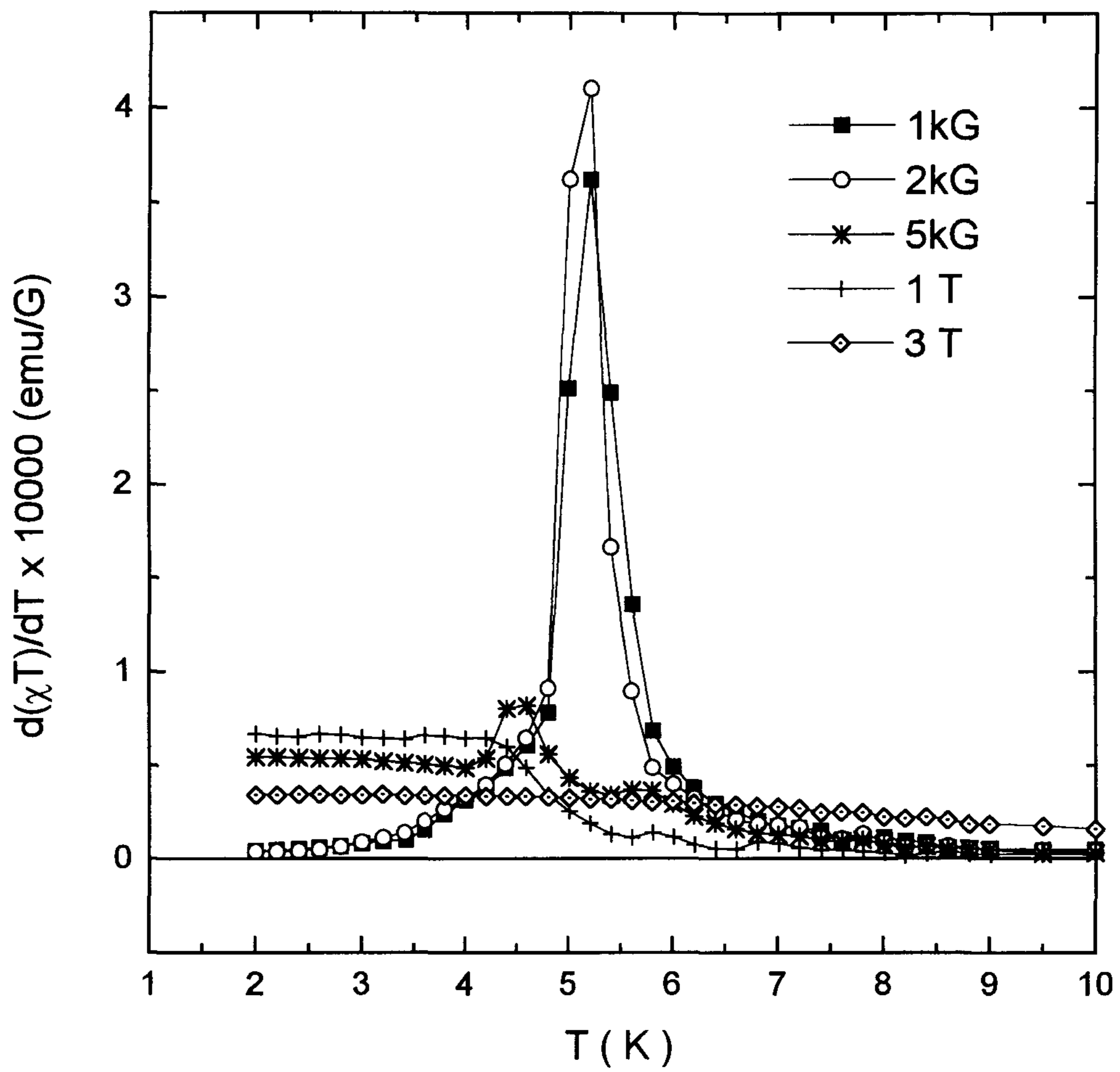


그림 4-2-3. HoNi₂B₂C 시료의 FC M(T,H)로부터 구한 d(χT)/dT.

제 3 절 Magnetic Relaxation in Ring-Type YBCO

1. 서 론

산화물 고온 초전도체에서, 높은 전이온도와 짧은 coherence length 등에 의해 나타나는 여러 현상 중의 하나는 giant flux creep이다. 일정한 온도와 자기장 아래에서 초전도체의 자기 모멘트가 시간에 따라 감소하는 현상은 이전부터 알려져 왔지만 고온 초전도체의 경우, 그 정도가 심하고(BSCCO의 경우 40 % 정도의 감소도 보고되고 있다.) 시간 의존성이나 normalized relaxation rate, $S(T,H)$,의 온도 및 자기장 의존성이 특이하여 많은 관심의 대상이 되어 왔다. 이에 대한 실험은 단결정이나 박막 등을 시료로 많이 행해졌고, 다양한 방법으로 보다 넓은 시간 범위에서의 관찰도 이루어졌다. 대표적으로 pulse 자기장을 이용한 short time relaxation 측정이나, field-sweep-rate를 변화시키면서 자기이력곡선을 얻는 방법 등이 그것이다.

그런데, 고온 초전도체들이 갖는 강한 이방성은, 실험적으로 얻은 $M(t)$ -곡선을 해석하는데 문제가 되어 왔다. 그 이유는 Cu-O plane에 흐르는 전류의 특성을 측정하기 위해서는 자기장을 c -축에 평행하게 걸어 주어야 하는데, 만들어지는 시료의 형태상, demagnetization factor가 10^2 (단결정) ~ 10^4 (박막) 정도로 매우 큰 geometry가 되기 때문이다. 이때, 시료 내에 흐르는 전류에 의한 self-field가 커져서, 시료 내의 전류밀도분포 등에 영향을 미치게 된다. 따라서 제한된 geometry를 통해 전류밀도분포를 균일하게 하는 것이 정확한 $S(T,H)$ 의 측정을 위해 필요하다. 특히 ring-type의 시료를 제작하면, 정확한 inductance 계산을 통해 $M(t)$ 결과

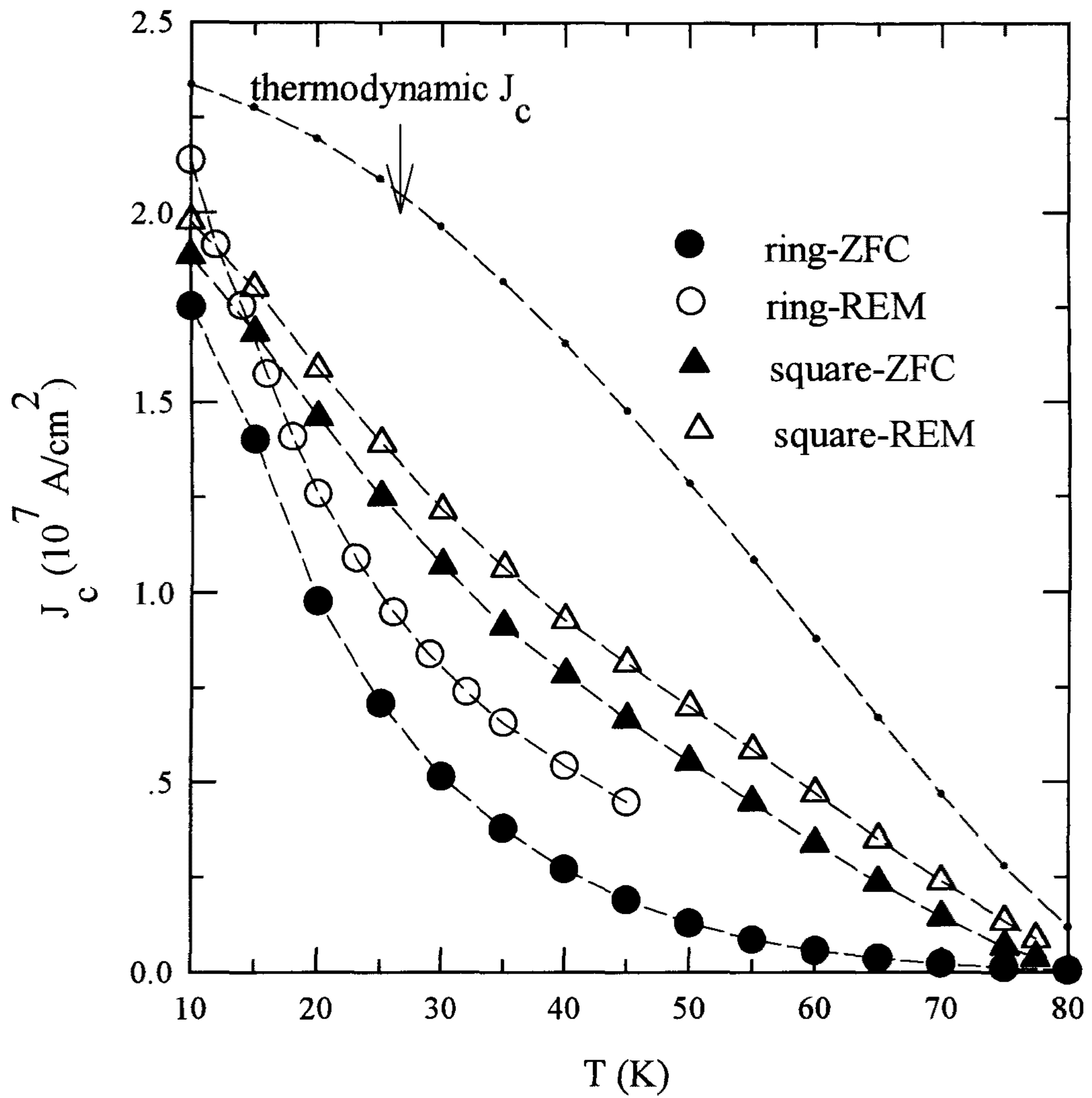


그림 4-3-1. H//c-축인 경우 각 시료의 임계전류밀도와 온도의존성.

로부터 보통 수송특성실험에서 얻는 E - J 관계를 끌어 낼 수 있다. 기존 전기적 I - V 실험의 최소 측정 전기장의 크기가 0.1 mV/m, 그리고 특별히 SQUID-전압계를 쓰는 경우 1 nV/m 정도인데 비해, $M(t)$ 로부터 얻어지는 resolution은 외경 3 mm, 선폭 100 μ m 짜리 ring의 경우 $E \approx 1$ pV/m 정도로 아주 낮은 저항상태의 특성을 관찰하게 된다⁽²⁵⁾.

본 연구에서는 YBCO SQUID 제작 등으로 축적된 pattern 기술을 이용, ring-type의 YBCO 박막시료를 제작하여 시간에 따른 magnetic relaxation을 여러 온도에서 관찰하였다. 비교를 위해 기존의 square-type 시료와 같은 온도, 자기장, 그리고 시간 범위에서 실험하였는데, 그 결과 ring-type에서는 온도에 비례하여 선형으로 증가하는 $S(T)$ 를 얻었고, square-type에서는 온도와 무관한 $S(T)$ 를 얻었다. 단결정이나 박막 등에서 흔히 얻어지는 온도와 무관한 $S(T)$ 는 소위 “universality in the flux creep”이라 하여 vortex glass 모델이나 collective flux creep 모델의 증거로 여겨져 왔는데⁽²⁶⁾, ring-type의 결과는 이와 상반되는 것이다.

2. 실험

양질의 c -축 성장된 YBCO 박막은 Inverted Cylindrical DC Magnetron Sputtering 방법으로 제작되었다. 두께는 2500 Å 정도이고 기판은 SrTiO₃를 사용하였다. 여러 크기의 ring-type는 electron-beam lithography와 ion milling을 이용하여 patterning하였는데, 여기서는 외경 3 mm, 선폭 100 μ m 짜리의 ring-type 박막과 3 mm \times 3 mm 짜리 square-type 박막에서의 실험결과를 보고하겠다. 표면의 defect나 경계면의 지지분함 등은 균일한 전류밀도에 영향을 미치게 되므로, Atomic Force Microscope를 이용하여 표면이 깨끗하고 경계면이 날카로움($\delta\omega \leq 0.5$ μ m)을 확인하였다.

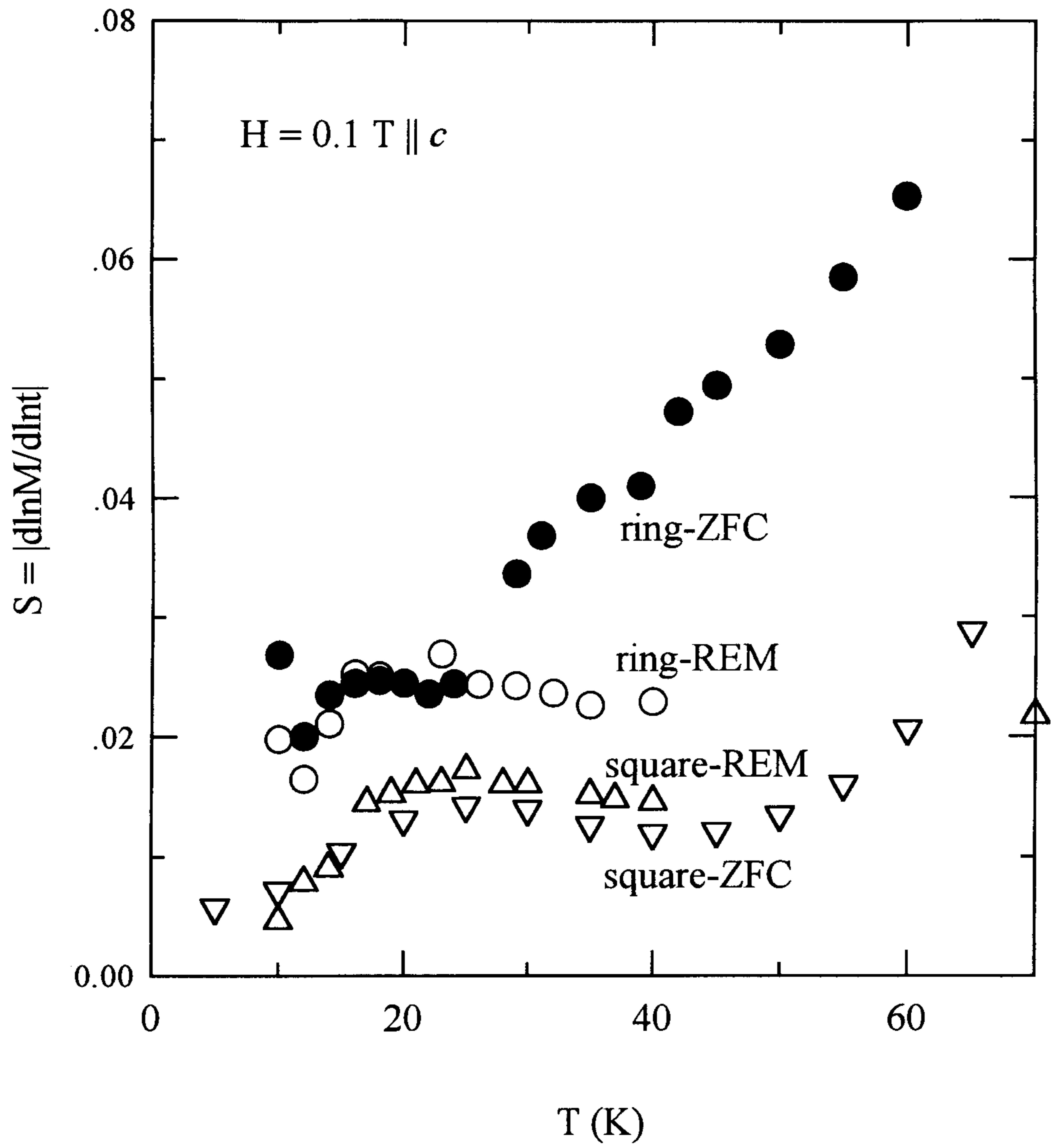


그림 4-3-2. 각 시료의 normalized relaxation rate S 와 온도의존성.

Magnetic relaxation의 측정은 상용의 SQUID magnetometer(Quantum Design Inc.)를 이용하여 6 K에서 70 K까지 온도를 변화시켜가며 측정하였다. 자기장은 *c*-축과 평행하게 1 kG를 걸었다. 통상적으로는 각 온도까지 Zero-Field-Cooling (ZFC)한 뒤, 자기장을 건 다음부터의 relaxation을 측정한다. 그런데 ring-type 시료의 경우 신호가 작기 때문에, $T > 20$ K에서는 자기장을 걸 때의 약간의 overshoot나 surface barrier에 의한 영향이 실험에 큰 영향을 미쳐서 자기장을 거는 과정에 따라 다른 결과를 주었다. 이를 피하기 위해서 본 연구에서는 “T-drift” 방법을 썼다. 그 내용은 ZFC 상태로 10 K까지 온도를 내려 안정시킨 후, 1 kG의 자기장을 걸고 $M(t)$ 를 측정한 뒤, 온도를 1 K 간격으로 올리면서 각 온도에서 일정 시간 동안(대략 1 시간 정도) relaxation을 측정하는 것이다. 앞서 말한 overshoot나 surface barrier에 의한 영향이 높은 온도까지 나타나지 않는 square-type 시료에 대해 두 방법을 써서 비교한 결과, 똑같은 E - J 관계를 얻었다. 또한 이론상으로도 $M(t)$ 의 시간에 따른 변화는 도달과정과 무관하게 온도와 외부 자기장, 그리고 시료에 흐르는 전류의 크기에만 관계하기 때문에 “T-drift” 방법 역시 같은 $M(t)$ 결과를 주어야 한다.

3. 결과 및 토의

그림 4-3-1은 실험에 사용된 시료들의 임계전류밀도의 온도의존성을 보여주고 있다. 10 K에서 모두 10^7 A/cm²이상의 높은 임계전류밀도를 보여서 박막 제작이나 patterning이 잘되었음을 보여준다. 온도에 따른 변화를 보면, square-type이나 ring-type 모두 이론적인 곡선보다 빨리 감소함을 볼 수 있다. 이는 각 온도에서의 thermal fluctuation에 의한 relaxation 효과 때문인데, 그림에서 보듯 ring-type의 경우 그 정도가 심하고, remanent 상태(즉 자기장을 걸었다가 곧바로 제거하고

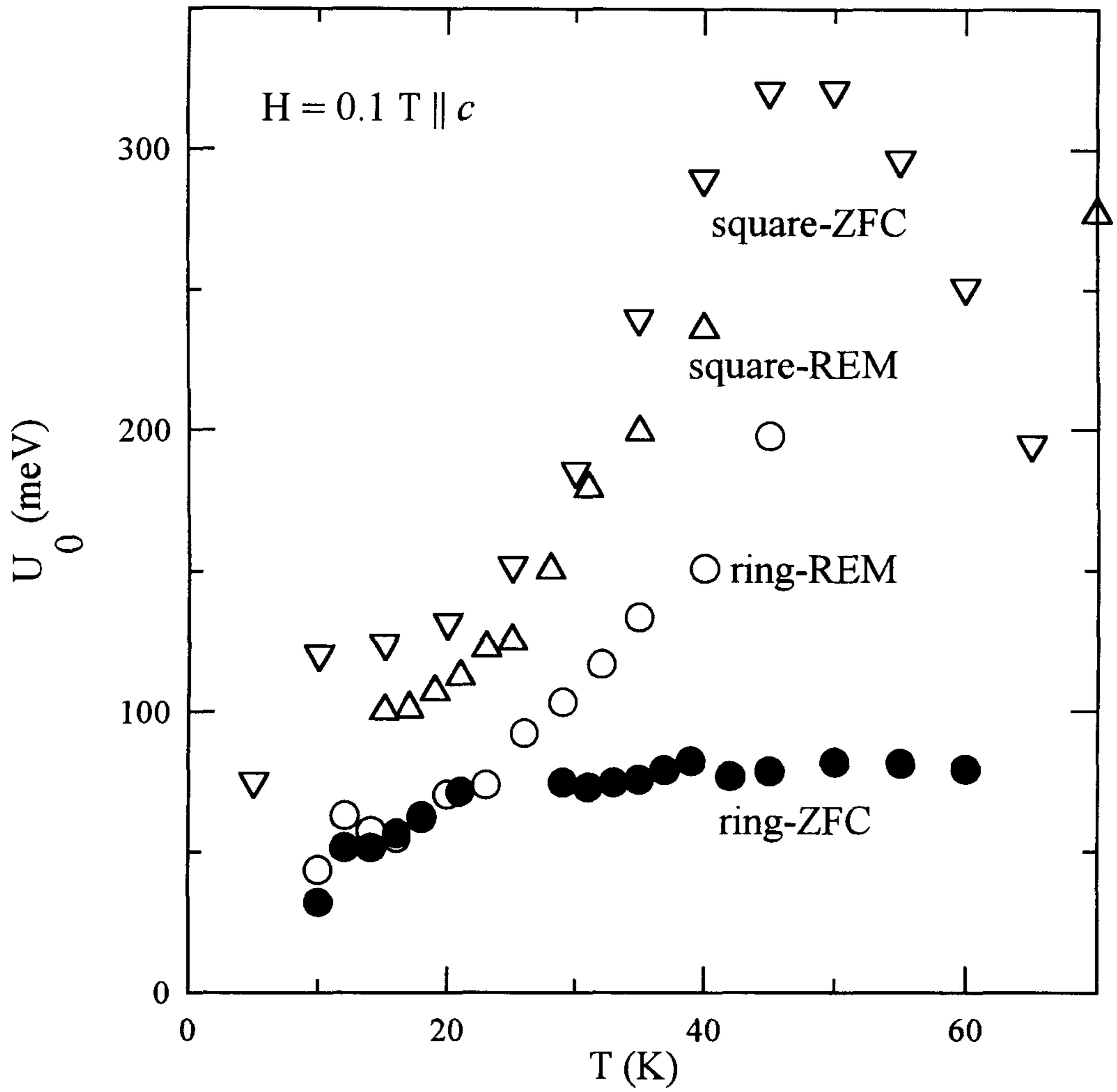


그림 4-3-3. S 와 $\ln E - \ln J$ 로부터 얻은 pinning potential U_0 와 온도의존성

relaxation을 측정한 경우)보다 ZFC 상태에서 relaxation이 더 크게 일어남을 짐작할 수 있다.

시료의 형태에 따른 비교를 위해 normalized relaxation rate, $S(T, 1 \text{ kG}) \equiv d \ln M / d \ln t$,를 각 온도별로 계산하였는데 그 결과가 그림 4-3-2에 나타나있다. Flux motion은 pinning barrier U 에 의해 $dJ/dt \propto \exp(-U/T)$ 의 관계를 갖는데 U 의 전류의존성에 따라 대략 세 가지 모델로 분류할 수 있다. Anderson-Kim에 의한 flux creep 이론에 따르면 $U=U_0(1-J/J_c)$ 가 되어 $S(T)$ 는 pinning potential U_0 와 반비례한다($S(T) = kT/U_0$). 또다른 모델은 Zeldov 등이 수송특성 실험에서 경험적으로 주장한 로그-J 모델, 즉 $U=U_0 \times \ln(J_c/J)$ 모델이다. 이때도 $S(T)$ 는 Anderson-Kim 모델과 같은 결과를 주지만 E - J 관계식에서 차이를 보인다. 그런데 고온초전도체 단결정이나 박막에서 행해진 magnetic relaxation 측정 결과를 보면, $S(T)$ 가 온도와 무관하게 나타나서 U_0 가 온도에 비례하여 증가하는, 물리적으로 설명하기 어려운 결론에 도달하게 된다. 반면 최근의 vortex glass 이론이나 collective flux creep 이론에서는 $U=U_0(J/J_c)^\mu$ 여서 $S(T) \propto 1/\mu$ 가 되어 온도나 시료에 무관한 것으로 예측되었기 때문에 Malozemoff 등은 온도와 무관한 $S(T)$ 결과가 새로운 이론들의 증거라고 주장하였다. 그림에서 보듯 전이온도에서 멀리 떨어진 온도에서 square-type 시료의 결과는 그 온도의존성이나 크기 등이 기존의 보고와 일치한다. Remanent 상태의 ring-type 시료에서도 같은 온도의존성을 볼 수 있다. 반면 ZFC 상태의 ring-type 시료의 결과는 온도에 비례하여 증가하여 vortex glass 이론의 예상과 큰 차이를 보였다. 비슷한 결과가 선폭이 10 μm 인 ring-type 박막에서도 얻어졌다.

Remanent 상태에서는 두 형태 모두 self-field가 주된 역할을 하게 된다. 그런데 전류밀도가 일정한 경우에도 self-field를 계산해 보면 공간적으로 균일하지 못

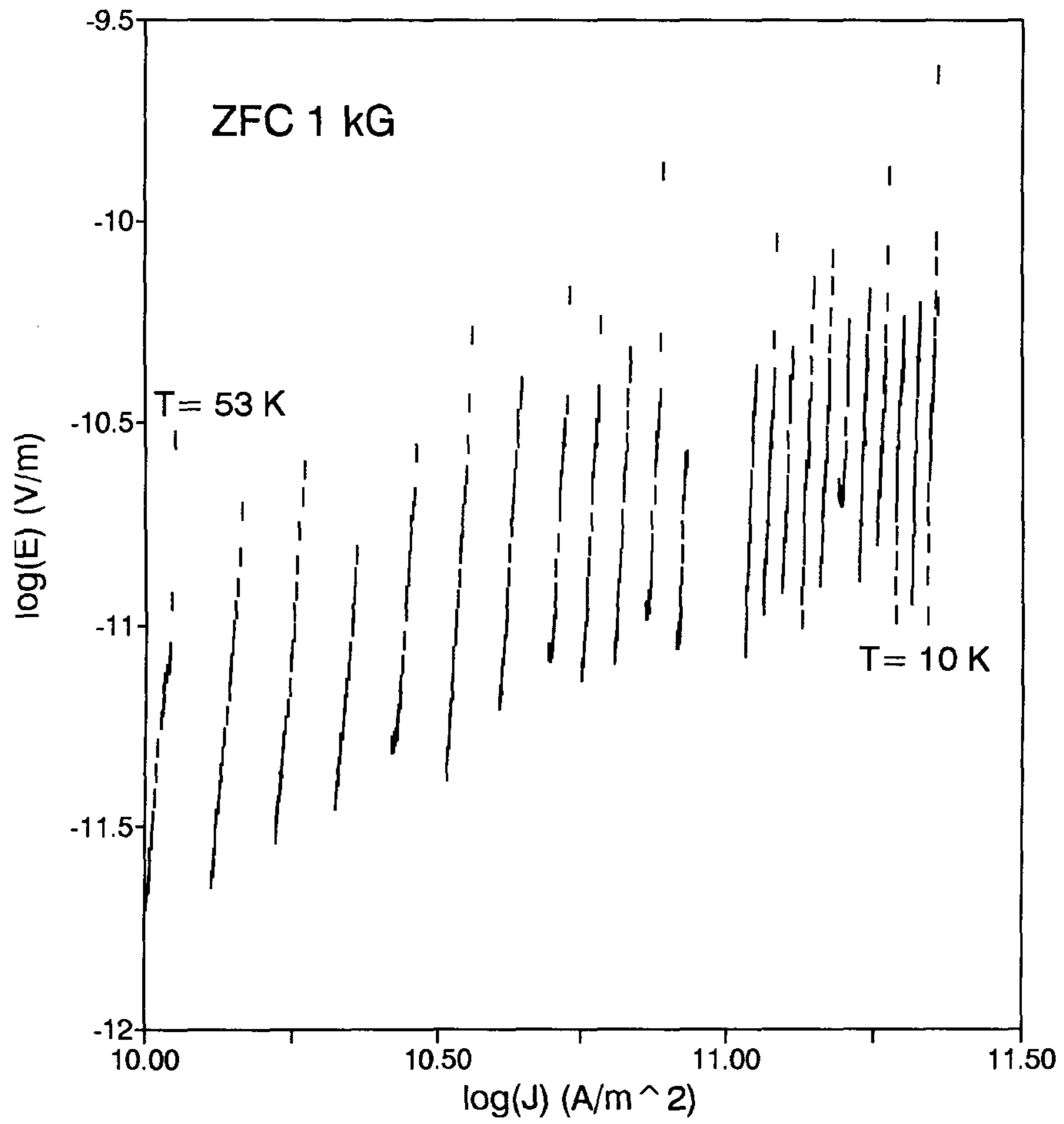


그림 4-3-4. 여러 온도에서 얻은 ring-type 박막의 $\log E$ - $\log J$ 곡선

하고 시료 안쪽과 바깥쪽에 서로 반대 방향의 자기장이 걸리게 된다. ZFC 상태의 square-type 박막의 경우에는 vortex가 시료 안쪽까지 침투한 경우에도 전류밀도가 일정하다고 말할 수 없다. 그런데 vortex motion을 결정하는 pinning force는 $J \times B$ 에 비례하므로, 온도와 무관한 $S(T)$ 결과는 시료 내의 pinning force가 균일하지 못하기 때문이라 생각된다. ZFC 상태의 ring-type 시료에서는 외부 자기장이 self-field보다 충분히 크고, 전류밀도도 일정하므로 시료 내의 pinning force가 균일하다.

$S(T)$ 를 Anderson-Kim 모델이나 로그-J 모델에 따라 pinning potential, U_0 ,의 역수로 해석하면(그림 4-3-3), 낮은 온도에서 온도와 무관한 결과를 얻어서 물리적으로 타당하다. 따라서 square-type 시료 등에서 나타나는 U_0 peak는 pinning force가 균일하지 못한 때문이 아닌가 생각된다.

Ring-type의 경우 1 kG의 자기장 아래에서는 시료 내에 흐르는 전류밀도가 일정하므로, 시료의 geometry로부터 자기 모멘트와 전류밀도와의 관계를 알 수 있다. 또한 Maxwell 방정식에 따라 $E = L \times (dI/dt)$ 이므로 ring의 inductance 값 ($L \approx 7$ nH)과 $M(t)$ 의 수치미분을 통해 전기장을 정량적으로 구할 수 있다. 각 온도에서의 결과를 그림 4-3-4에 보였는데, 대략 $E \propto J^a$ 꼴, 즉 로그-J 모델과 잘 맞음을 알 수 있다. 그리고 그 기울기로부터 얻어지는 U_0 역시 $S(T)$ 로부터 얻은 결과와 일치한다.

초전도체의 magnetic relaxation은 시간의 로그함수로 변하기 때문에 넓은 전류변화 범위에서 측정하기가 현실적으로 불가능하다. 이를 극복하기 위해 Maley 등은 U_0 와 임계전류밀도의 온도의존성에 적당한 가정을 넣어 여러 온도에서의 결과를 한 곡선으로 모으는 방법을 제시한 바 있다⁽²⁷⁾. 임계전류밀도는 열역학적으로 $J_c(T) = J_c(0) \times (1 - (T/T_c)^2)^{1.5}$ (그림 4-3-1)를 가정하고, 임계온도보다 훨씬 낮은

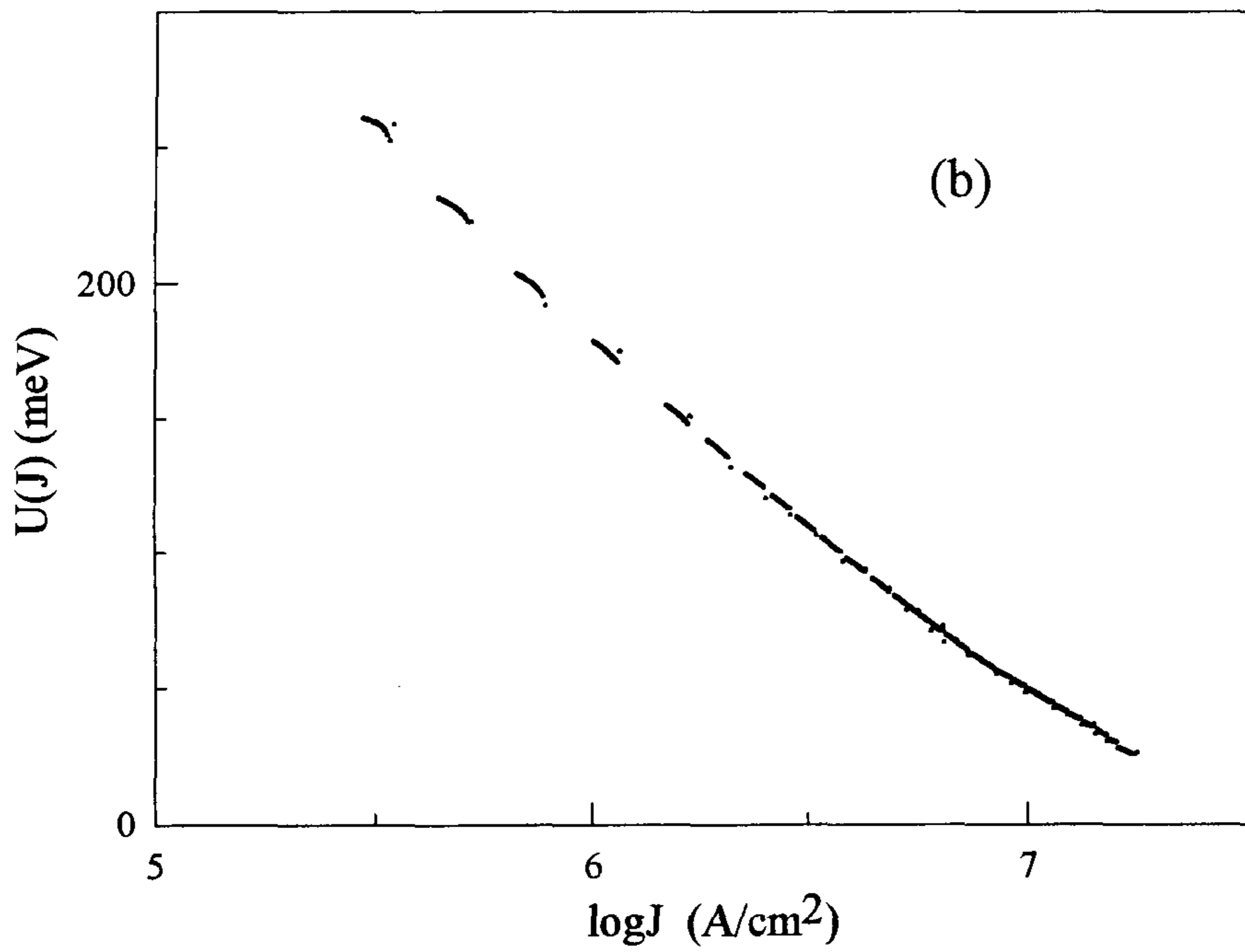
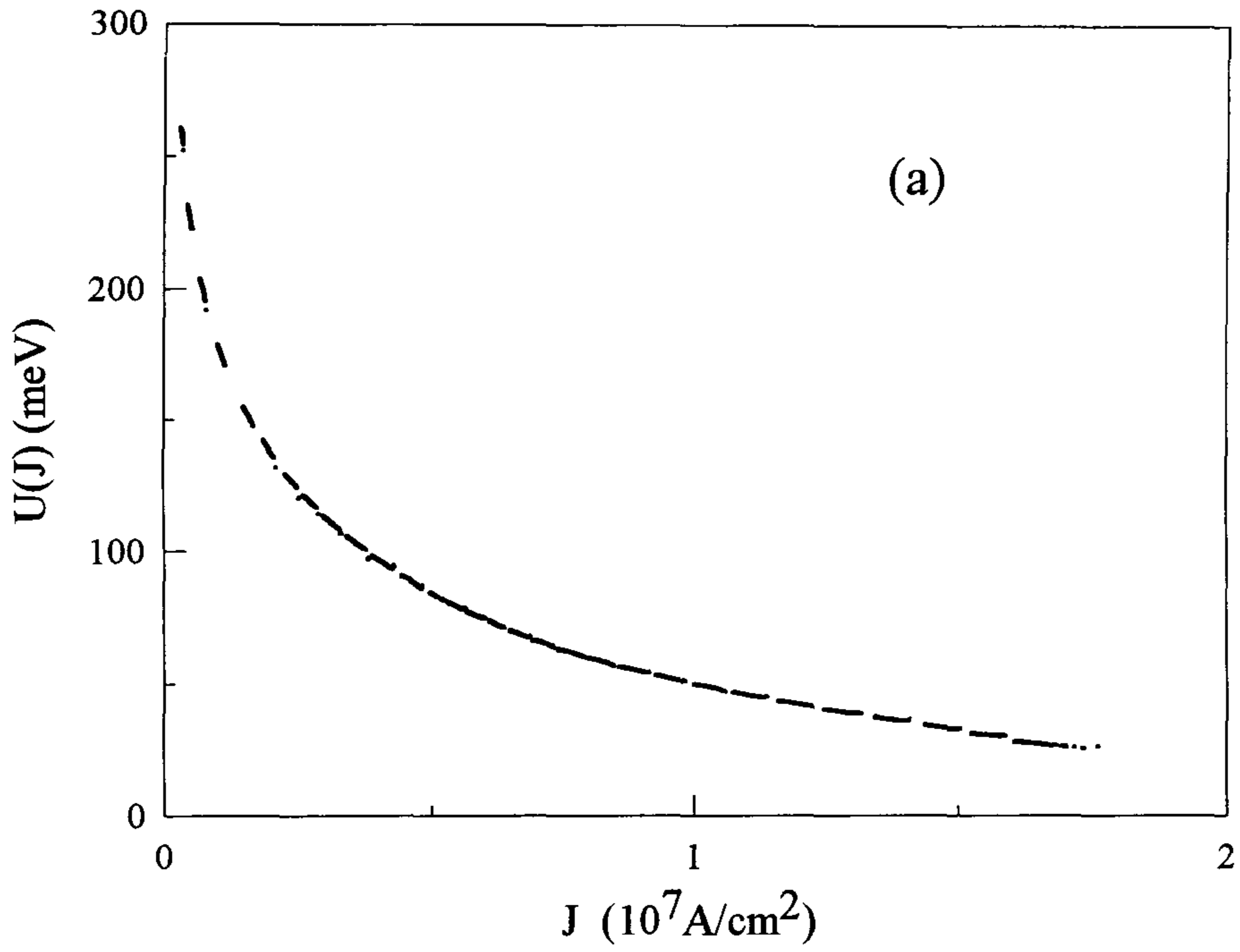


그림 4-3-5. Ring-type 박막의 universal U - J 곡선(a)과 U - $\log J$ 곡선(b)

온도에서는 U_0 가 별 차이가 없으므로(그림 4-3-3) vortex hopping rate와 관계된 하나의 변수만을 조정하여 $U(J)$ 를 구할 수 있다. 그림 4-3-5(a)는 그 결과인데 실험한 전 범위에서 smooth한 곡선을 얻을 수 있었다. 이 결과는 모델과 무관하게 얻어진 것인데 앞서의 세 가지 모델 중 로그-J 모델과 가장 잘 부합되었다(그림 4-3-5(b)). 이때 $U_0 = 57 \text{ meV}$ 와 $J_c(0) = 2.4 \times 10^7 \text{ A/cm}^2$ 을 얻었다. 탄성 vortex 이론에 따르면⁽²⁸⁾ depairing 임계전류밀도 J_0 와 depinning 임계전류밀도 J_c 에 의해 pinning length $L_c = \xi \times (J_0/J_c)^{0.5}$ 와 pinning energy $U_c = H_c^2 \times \xi^3 \times (J_0/J_c)^{0.5}$ 가 결정된다. YBCO의 경우, $H_c = 10^4 \text{ Oe}$, $\xi = 16 \text{ \AA}$, 그리고 $\lambda = 1400 \text{ \AA}$ 이므로 $J_0 = 4.2 \times 10^7 \text{ A/cm}^2$ 를 얻는데, 그림 4-3-5(b)에서 구한 J_c 값을 이용하면 $U_c = 66 \text{ meV}$ 로써 fitting 결과와 consistent하다.

4. 결 론

균일한 pinning force를 위해 ring-type YBCO 박막을 제작하여 magnetic relaxation을 측정하였다. ZFC 상태의 ring-type 시료에서 normalized relaxation rate가 온도에 비례하여 증가하는 결과를 얻었는데, pinning force가 균일하지 않은 remanent 상태의 ring-type이나, ZFC 와 remanent 상태의 square-type 시료에서는 온도와 무관한 결과를 얻었다. 넓은 온도 범위의 결과를 모두 합친 결과, pinning barrier $U(J)$ 가 $\ln(J)$ 에 비례하는 모델이 가장 잘 부합되었고, 구해진 pinning potential U_0 값은 탄성 vortex 이론의 예상과 일치하였다.

참고 문헌

1. J. Bardeen and M. J. Stephen, Phys. Rev. **140**, A1197 (1965)
2. P. Nozières and W. F. Vinen, Philos. Mag. **14**, 667 (1966).
3. J. P. Rice *et al.*, Phys. Rev. B **46**, 11050 (1992).
4. A. Dascoulidou *et al.*, Physica C **201**, 202 (1992).
5. S. J. Hagen *et al.*, Phys. Rev. B **43**, 6246 (1991).
6. S. J. Hagen *et al.*, Phys. Rev. B **47**, 1064 (1993).
7. L. C. Ho, Can. J. Phys. **48**, 1939 (1970).
8. A. Freimuth *et al.*, Phys. Rev. B **44**, 10396 (1991).
9. S. N. Artemenko *et al.*, Phys. Lett. A **138**, 428 (1989).
10. J. M. Harris *et al.*, Phys. Rev. Lett. **71**, 1455 (1993).
11. Z. D. Wang *et al.*, Phys. Rev. Lett. **72**, 3875 (1994).
12. N. B. Kopnin *et al.*, J. Low Temp. Phys. **90**, 1 (1993).
13. P. Ao, to be published
14. M. V. Feigel'man *et al.*, preprint
15. J. Luo *et al.*, Phys. Rev. Lett. **68**, 690 (1992).
16. H. Claus *et al.*, Physica C **198**, 42 (1992).
17. J. G. Ossandon *et al.*, Phys. Rev. B **45**, 12534 (1992).
18. V. M. Vinokur *et al.*, Phys. Rev. Lett. **71**, 1242 (1993).
19. G. Blatter *et al.*, Phys. Rev. Lett. **68**, 875 (1992).
20. E. C. Jones *et al.*, Phys. Rev. B **47**, 8986 (1993).

21. R. J. Cava *et al*, Nature **367** 146 (1994).
22. T. E. Grigereit *et al*, Phys. Rev. Lett. **73**, 2756 (1994).
23. P. C. Canfield *et al*, Physica C **230**, 397 (1994).
24. M. E. Fisher, Philos. Mag. **7**, 1731 (1962).
25. E. Sandvold and C. Rossel, Physica C **190**, 309 (1992).
26. A. P. Malozemoff and M. P. A. Fisher, Phys. Rev. B **42**, 6784 (1990)
27. M. P. Maley *et al.*, Phys. Rev. B **42**, 2639 (1990).
28. G. Blatter *et al.*, Physica A **200**, 341 (1993).

제 5 장 고온초전도체의 이론적 연구

지난 일년간의 이론적 연구 성과는 다음과 같다.

과거에 고온초전도체의 에니온 모형과 연관지어 연구하였던 베리의 위상을, 최근 새롭게 각광을 받고 있는 C_{60} 에 적용시킨 논문이 출간되었다.(Phys. Rev. **B49**, 10726 (1994))

그리고 $YBa_2Cu_3O_7$ 과 같이 복잡한 구조를 가진 물질의 전자구조를 정밀히 계산할 수 있는 제일 원리적 슈도포텐셜(First-Principles Pseudopotential) 프로그램이 완성되어 $YBa_2Cu_3O_7$ 의 전자구조를 그 대칭성을 포함하여 엄밀히 분석한 논문도 최근 출간되었다.(Phys. Rev. **B51**, 3886 (1995)) $YBa_2Cu_3O_7$ 의 에너지 띠 구조 자체는 기존의 linear muffin-tin orbital 방법이나 linear augmented plane wave 방법으로 이미 알려져 있으나 first-principles pseudopotential 방법으로 정밀히 분석되지는 못하였다. 본 이론그룹에서는 그 동안의 꾸준한 방법의 개선을 통해 이러한 계산을 처음으로 가능하게 만들었고, 특히 전자궤도함수의 각 원자위치에서의 대칭성을 자세히 분석하였다. 이러한 전자구조 대칭성은 최근 최대의 관심사인 초전도 에너지 갭의 대칭성, 즉 Cooper 전자쌍이 s-대칭성을 갖느냐 d-대칭성을 갖느냐를 이론적으로 분석하는데 (직접적인 역할은 아닐지라도) 기본적으로 어느 쪽이 자유에너지(free energy)를 작게 하느냐에 영향을 미치게 될 것이다. 에너지 갭 대칭성은 최근 J. R. Kirtley 등 IBM 그룹에서 출판한 것처럼(Nature **373**, 225 (1995)) 거의 d-대칭성으로 굳어져가고 있다. 본 연구그룹과 공동연구하고 있는 한림대의 원혜경 교수는 USC의 Maki 교수와 함께 d-대칭성을 일으키는 스핀 요동에 대해 연구결과를 발표한 바 있다.(Phys. Rev. Lett. **72**, 1758 (1994)) 앞으

로 고온초전도체의 전자분포 대칭성 문제는 전세계적으로 집중적인 연구가 수행될 것이다.

그리고 본 이론그룹에서는 고온초전도체와 비슷한 층상구조를 가짐에도 불구하고 초전도 임계온도가 비교적 낮은 $\text{LuNi}_2\text{B}_2\text{C}$ 의 전자구조를 위에서 언급한 first-principles pseudopotential 방법을 이용하여 계산하였다. 그리고 이 계산에서는 약 17K의 임계온도를 보이는 $\text{LuNi}_2\text{B}_2\text{C}$ 뿐만 아니라 초전도를 나타내지 않는 인접 화합물 LuNiBC 의 전자구조도 아울러 계산하여 그 차이를 분석하였다. 그 예비적인 결과는 우선 1994년 7월 Grenoble에서 열린 M^2S -HTSC IV 학회에서 보고되어 *Physica C* **235-240** 2107 (1994) 에 발표되었고, 그 후 전체결과가 *Physical Review B* 에 받아들여져 곧 출간될 예정이다. $\text{LuNi}_2\text{B}_2\text{C}$ 는 그 전자구조가 원자의 층상배열에도 불구하고 3차원적임을 밝혔고, 저온초전도체로서는 비교적 높은 약 17K의 임계온도를 갖는 이유는 니켈 금속의 큰 상태밀도와 보론등의 높은 진동수가 상승작용을 하기 때문임을 밝혔다. 그리고 여기서 LuNiBC 가 상당히 비슷한 구조를 가지면서도 액체헬륨온도 이하까지 초전도를 나타내지 않는 이유는 니켈의 상태밀도의 높았던 peak가 넓게 퍼지고 페르미 준위에서 그 값이 상당히 낮아지기 때문이라는 것도 알아내었다. 그런데 이상의 결과에 대한 정성적인 성질은 이미 L. F. Mattheiss *et al.*(*Phys. Rev.* **B49**, 13279 (1994). *Solid State Commun.* **91**, 587 (1994)), Pickett *et al.*(*Phys. Rev. Lett.* **72**, 3702 (1994)) 등에 의해서 언급된 바 있으므로, 본 연구의 새로운 점은 우선 전자구조의 정밀한 분석을 통해 이와 같은 사실을 정량적으로 확인한 것이고 이보다도 더욱 중요한 것은 전자궤도함수의 각 원자 위치에서의 대칭성을 분석한 것이다. 이러한 분석은 본 그룹의 논문에서 처음 정량적으로 시도된 것이다. 그리고 전자궤도함수의 정확한 분석으로 $\text{LuNi}_2\text{B}_2\text{C}$ 가 고온초전도체에서와 달리 반만큼 찬(half-filled) σ -antibonding 에너지

띠를 가지고 있지 않은 것을 확인함으로써, 반만큼 찬 σ -antibonding 에너지 띠가 초전도 임계온도를 높이는 데 중요하다는 주장을 지지하는 한 증거를 제시하였다. 아울러 페르미 표면의 3차원적 topology를 밝혀, 어느 에너지 띠가 초전도 및 전도에 가장 큰 기여를 하는 가도 알기 쉽게 조감도로 제시하였다.

그밖에 유전함수행렬 계산은 복잡한 구조의 고온초전도체에서는 좋은 접근방법이 아님이 밝혀져 앞으로의 연구에는 위에서 언급한 first-principles pseudopotential 계산방법을 계속 쓰게 되었고 파동소(wavelet)를 기저함수로 삼는 에너지 띠 계산법은 여러 가지 문제점에도 불구하고 미래의 새로운 이론적 계산기법으로 가능성이 크므로 계속 개발을 시도하고 있다.

부 록

여 백

Flux Creep Effect in a Ring Shape YBCO Film from Magnetic Relaxation Measurements

S. H. Chun, S. H. Moon, Yonuk Chong, and Z. G. Khim

Department of Physics, Seoul National University, Seoul 151-742, Korea

We measured the temperature dependence of the magnetic relaxation in a ring-shape *c*-axis oriented YBCO thin film. The normalized relaxation rate was proportional to the temperature, implying a temperature-independent pinning energy, which is different from that of square-shape films in magnitude and in its temperature dependence. From the temperature and time dependent relaxation rate, we constructed $U(J)$ relations. The result is a logarithmic one and fits well over a wide temperature range. We discuss the above results in relation to the pinning force distribution in samples.

I. Introduction

There have been numerous reports on the giant flux creep in high- T_c superconductors (HTSC). They include temperature and field dependence of the magnetic relaxation rate on single crystals and thin films. Recently short time decay measurements using pulse methods and field-sweep-rate dependent hysteresis loop measurements have been reported to expand the time window for the observation of the flux creep effect in the HTSC.

Since the large self field in thin film and single crystal affects the homogeneity of current distribution in the sample, similar relaxation measurements in confined geometry are needed. Furthermore the well-defined inductance in a ring geometry enabled Sandvold *et al.*¹ to cover a large range of E - J characteristics.

Here we report the usual magnetic relaxation measurement on a ring-shape YBCO film using commercial SQUID magnetometer and compare it to the result of the typical square-shape YBCO film under the same temperature, field, and time range. Remarkably, the creep rate obtained from a ring-shape film increased linearly as the temperature increased, whereas that of square-shape was independent of temperature. This result is in a direct contradiction to the so-called "universality in the flux creep"² that stands for the vortex glass or collective flux creep theory.

II. Experimental

High quality *c*-axis oriented YBCO thin film was

prepared by the inverted cylindrical dc sputtering method (2500 Å thick). Rings of various size and width were patterned by standard photolithography and ion-milling. Here we present results obtained from a ring with diameter 3 mm and width 100 μm

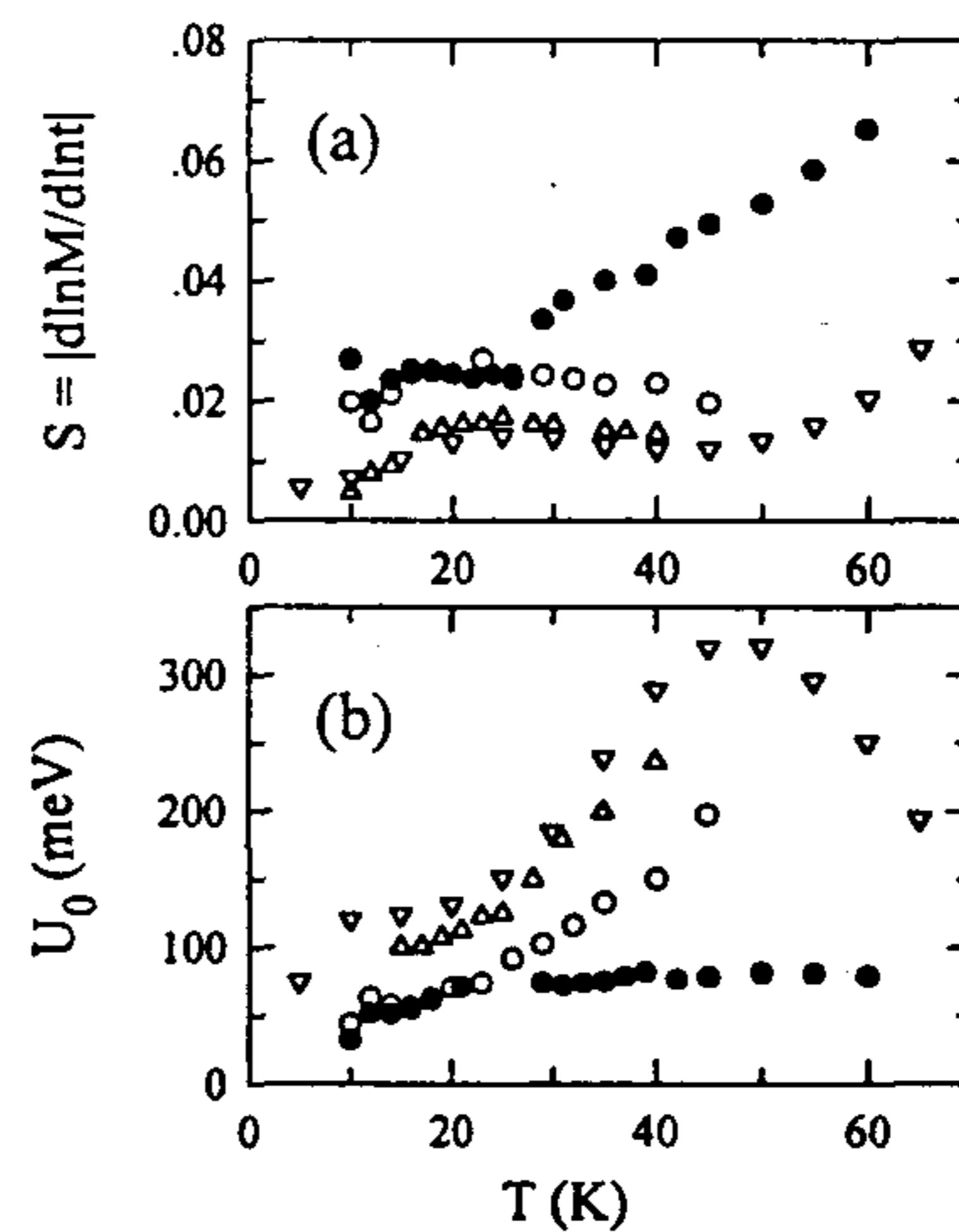


FIGURE 1. The temperature dependence of (a) the normalized relaxation rate S , and (b) the pinning energy U_0 ; a ring-shape film at $H = 0.1$ T (\bullet) and at remanence (\circ), two square-shape films at $H = 0.1$ T (Δ , ∇)

Effect of $\text{Mg}(\text{OH})_2$ on $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ thin film on MgO substrate studied by atomic force microscope

B. I. Kim, J. W. Hong, G. T. Jeong, and S. H. Moon
Department of Physics, Seoul National University, Seoul 151-742, Korea

D. H. Lee and T. U. Shim
Memory Division, Samsung Electronics, Suwon 440-600, Korea

Z. G. Khim
Department of Physics, Seoul National University, Seoul 151-742, Korea

(Received 9 August 1993; accepted 1 December 1993)

We observed the surface degradation of MgO single-crystal substrates stored in humid air after cleavage by atomic force microscope. Annealing at 1000 °C in dry oxygen removed local defects though residual subgrain structure remains. The morphology of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (YBCO) films on the annealed and degraded substrates reflects these changes of the substrates. We confirmed that the annealing process of degraded substrate improves the film quality by measuring transition temperature T_c and critical current J_c of each film.

I. INTRODUCTION

Since the discovery of high-temperature oxide superconductors (HTSC), the MgO crystal has been widely used as a substrate for the HTSC thin films because of good lattice matching and low chemical reactivity with HTSC.¹ However, it is well known that the surface morphology and roughness of the substrate strongly influence the growth and electrical properties of the film deposited on it.² Although MgO is widely used as a substrate for HTSC thin film, it is also known to form hydroxide or carbonate at the surface due to chemisorption of H_2O or CO_2 in air, which will certainly degrade the quality of the HTSC film deposited on it.³ Consequently, study of the formation of hydroxide and the effect of oxygen annealing on the MgO substrate is quite important for the high-quality HTSC film deposition.

In the present article, we report the study of the formation of hydroxide on the cleaved MgO single-crystal substrate and its effects on YBCO film deposited on the substrate using atomic force microscopy (AFM). Effects of oxygen annealing on the surface morphology of substrate and film were studied.

II. EXPERIMENT

MgO substrates used in this study were cleaved along the (100) plane with a chisel and then cleaned with acetone and ethanol using an ultrasonic cleaner ten minutes in each solvent. This cleaning process was repeated before each experiment. The surface roughness of all the samples was investigated with AFM in air at room temperature. All surface images were obtained in the constant force mode with force of 1–2 nN. The material of the cantilever (Park Scientific Instrument, microlever) used in this experiment is Si_3N_4 . Data were recorded in real time with a computer and displayed as 64 color gray scales without any smoothing processing.

For the formation of magnesium hydroxide, MgO substrates were stored in air with humidity of 100% for several days. The change of surface morphology of the MgO sub-

strate was observed by AFM. To see the effect of annealing on the surface morphology, one of the degraded MgO substrates was annealed in a furnace at 1000 °C for 2 h. Subsequently, the substrate was annealed in flowing dry oxygen at a flow rate of 200 cc/min for three hours. After this process, the furnace was slowly cooled down to room temperature.

YBCO films were deposited on degraded and annealed substrates at the same time with a magnetron sputtering system. The substrate temperature during film deposition was 725 °C and the partial pressure of oxygen was about 50 mTorr. The deposition rate was about 20–30 Å/min and the thickness of the film deposited was about 2000–3000 Å. After holding the substrate temperature at 450 °C in 600 Torr oxygen environment for 2 h, the film was cooled down to room temperature.

We measured the transition temperature T_c and critical current density J_c . Structural properties of the film deposited on the degraded or annealed substrates are also studied to investigate the influence of the substrate surface morphology on the film quality.

III. RESULTS AND DISCUSSIONS

MgO single crystals studied in this work are of 99.9% purity and were cleaved along the (100) plane.

The AFM image of the MgO single crystal right after cleavage indicates that the surface roughness is less than 30 Å as shown in Fig. 1. One can observe tiny spots with a diameter of ~150 Å which are possibly due to an impurity phase and cleavage steps with height of ~1000 Å. After storing the MgO crystal in humid air of 100% humidity for three days, we observed appearance of another phase of round shape with diameter around 1000–2000 Å and height of ~100 Å as shown in Fig. 2(a). After six days of storing in humid air, many small spots with size of 50–300 Å developed around the larger round shape [Fig. 2(b)]. This implies that MgO single-crystal surfaces suffer strong chemisorption and reaction with water vapor and this agrees with the result of other earlier study.^{2,4} MgO crystal stored in a dry air box, however, did not show any hillocks except small spots of

Energy gap of the high- T_c superconductor $\text{HgBa}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{8+\delta}$ determined by point-contact spectroscopy

G. T. Jeong, J. I. Kye, and S. H. Chun

Department of Physics, Seoul National University, Seoul 151-742, Korea

Sergey Lee and S. I. Lee

Department of Physics, Pohang Institute of Science and Technology, Pohang, P. O. Box 135, Kyungbuk 790-600, Korea

Z. G. Khim

Department of Physics, Seoul National University, Seoul 151-742, Korea

(Received 6 January 1994)

Tunneling spectra of a polycrystalline bulk $\text{HgBa}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{8+\delta}$ with $T_c = 132$ K have been measured by point-contact spectroscopy using a low-temperature scanning tunneling microscope. Unlike other high- T_c superconductors the conductance of this material shows a BCS-like gap structure with a relatively small smearing parameter Γ . Conductances with a linear density of states for $|eV| < \Delta$ and a small cusp at the gap are also observed. From a simple calculation based on the assumption that the surface is covered with a normal layer, we explained the linear dI/dV for $|eV| < \Delta$ and obtained two distinctively different energy gaps $\Delta = 48$ meV and 22 meV with the resultant $2\Delta/k_B T_c = 8.5$ and 3.9, respectively.

Recent discovery^{1,2} of Hg-Ba-Ca-Cu-O with its superconductive critical temperature increasing up to 165 K subjected to a high pressure³ has renewed the hope for the realization of superconductors with even higher critical temperature.

However, the basic underlying mechanism for the high- T_c superconductor still remains unclear and is the subject of intensive study both experimentally and theoretically. Electron tunneling measurements proved to be a very powerful method to investigate the superconducting properties due to its ability to probe the local density of states (DOS) from which one can determine the energy gap as well as the underlying interaction through, for example, the Eliashberg equation.⁴ Furthermore due to its directional probing nature, electron tunneling spectroscopy is frequently employed for the study of the symmetry in the energy gap by performing a directional tunneling on a single-crystal superconductor.⁵ However, tunneling data⁶ on high- T_c superconductors so far are rather scattered due to the lack of control of tunneling barrier. Poor quality of natural oxide and short coherence length in high- T_c oxide superconductors make the approach of using the planar-type tunnel junction almost impossible frequently producing complicated and reduced energy gap structures. Recently Chen *et al.*⁷ reported $\Delta = 15$ meV and $2\Delta/k_B T_c = 3.6$ for $\text{HgBa}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ with $T_c = 92$ K.

In this work, we performed an electron tunneling measurement for a bulk $\text{HgBa}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{8+\delta}$ by a point-contact spectroscopy using a low-temperature scanning tunneling microscope (LTSTM). Like many other high- T_c oxide superconductors, $\text{HgBa}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{8+\delta}$ shows a large energy gap with the resulting energy gap to critical temperature ratio $2\Delta/k_B T_c = 8.5$. In addition, we also observed an evidence of another smaller energy gap $\Delta = 22$ meV in the tunneling conductance.

Tunneling measurement for a polycrystalline bulk $\text{HgBa}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{8+\delta}$ with the critical temperature 132 K was made by a point-contact spectroscopy. Samples were synthesized in two steps, that is production of precursor pellet and formation of the superconducting samples inside the quartz tubes. The precursor pellets of Ba-Ca-Cu-O were prepared by mixing the appropriate amount of nitrates: $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$, $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$, and $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 2.5\text{H}_2\text{O}$. After the heat treatment of this reagents, a stoichiometric amount of HgO was added to the precursor and mixed in a glove box in nitrogen atmosphere. Then the sample was heated with a high Hg vapor pressure of about 200 atm. The oxygenation of samples was carried out in flowing oxygen at 300°C for 20 h. X-ray-diffraction measurement shows a well-defined diffraction pattern with a minor BaCuO_2 impurity phase. The zero-resistance temperature of the sample was 132 K obtained from the four-probe resistance measurement.

The mechanical part of the low-temperature STM system was mounted in a long cylindrical stainless tube filled with He gas to reduce the thermal drift effect. Helium exchange gas pressure was kept at about 1 mTorr, high enough to maintain a thermal equilibrium during the tunneling experiment and also low enough to prevent an electric discharging effect. A differential lever screw was employed for the coarse approach of the tip to the sample. The mechanical part in the cylindrical tube was then immersed in liquid helium cryostat. The maximum scan length of the constructed LTSTM along lateral and vertical directions 4.2 K was about 0.8 μm and 0.2 μm , respectively. A mechanically wire drawn Pt-Rh tip turned out to be more stable than the electrochemically polished W tip. The typical radius of the Pt-Rh tip used in this experiment is estimated to be about 0.2 μm from the scanning electron microscopy image. Successful image taking of highly oriented pyrolytic graphite at 4.2 K

YBCO dc SQUID Made on Step-Edge SrTiO₃ Substrates

S. H. MOON, Yonuk CHONG and Z. G. KHIM

Department of Physics, Seoul National University, Seoul 151-742

B. OH, P. H. HUR, Y. H. CHOI and H. T. KIM

GoldStar Central Research Laboratory, Seoul 137-140

E. J. LEE

Korea Academy of Industrial Technology, Incheon 404-254

(Received 20 April 1994)

We have fabricated dc superconducting quantum interference devices (dc SQUIDs) from thin films of YBCO deposited on step-edge SrTiO₃ substrates by the dc magnetron sputtering method. Steps on the SrTiO₃ substrate were formed by low-energy Ar ion milling with photolithography using a photoresistor or Nb metal mask. The SQUID was formed by standard photolithography and showed a nice periodic voltage output up to 86 K. An atomic force microscope (AFM) study showed an angle-dependent morphology on the step and the importance of the step angle to forming a weak link. The flux noise measured in a flux-locked loop was $1.5 \times 10^{-8} \Phi_0^2/\text{Hz}$, with a corresponding noise energy of $2.2 \times 10^{-28} \text{ J/Hz}$ at 77 K and 1 kHz.

I. INTRODUCTION

Since the discovery of high T_c superconductors, there have been tremendous efforts to utilize high T_c superconducting materials for large-scale as well as small-scale practical applications. However, due to the intrinsic poor mechanical ductility of high T_c superconductor oxides, it is widely believed that small-scale applications based on Josephson junction fabrication using thin-film high T_c superconductors have a better possibility of success. Superconducting quantum interference devices (SQUIDs) employing high T_c superconductors as the base material and fabricated using various fabrication techniques, for example, have recently been one of the most widely studied subjects in the hope of replacing conventional low T_c SQUIDs.

Successful use of high T_c superconductors for small-scale applications requires a reliable and reproducible Josephson junction fabrication technique. Fabrication techniques for high T_c SQUIDs can be divided into two categories: one approach is to use a microbridge-type Josephson junction formed by the natural or artificial grain boundary in a micro-constriction,^[1-4] and the other is to use a planar-type Josephson junction employing a superconductor-normal metal-superconductor (SNS) or a superconductor-insulating barrier-superconductor (SIS) junction using a multilayer film.^[5-7]

For digital applications of high T_c superconductors, one must develop a planar-type junction fabrication

technique compatible with semiconductor IC technology. However, the approach of employing SNS- or SIS-type multilayer junctions is, at present, limited by the interface material problem. For example, the deposition of a N or I layer must be compatible with the deposition process for high T_c superconductors. In addition, the junction resistance must be controllable. The problem of employing a natural grain boundary in a narrow constriction for the Josephson junction is that one cannot control the junction parameter due to the random nature of the natural grain boundary in the constriction. It was demonstrated that a better reproducibility could be achieved if one were to use an artificial grain boundary formed on an epitaxial film grown on a bicrystal or step-edge substrate as the weak link for the Josephson junction.

In this paper, we report the fabrication process and the characteristics of dc SQUIDs made of YBCO thin films on SrTiO₃ substrates with step edges formed by ion milling. The advantage of the step-edge junction over the bicrystal junction is that the substrate preparation is fairly simple and the junction site can be chosen anywhere on the substrate, thus making this approach suitable for a wide range of applications such as junction array or microwave devices.

II. FABRICATION PROCEDURE

The most important aspect for the formation of a re-

REVIEW COPY
NOT FOR DISTRIBUTION

RIDGE / TEX

**Energy Gap of Quaternary Compound Superconductor $\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$
and $\text{LuNi}_2\text{B}_2\text{C}$ by Point Contact Spectroscopy**

G. T. Jeong, J. I. Kye, S. H. Chun, Z. G. Khim

Department of Physics, Seoul National University, Seoul 151-742, Korea

W. C. Lee

Department of Physics, Sookmyung Women's University, Seoul 140-742, Korea

P. C. Canfield, B. K. Cho, D. C. Johnston

Ames Laboratory and Department of Physics and Astronomy, Iowa State University, Ames, IA

50011

(Received: **RECEIVED 28 MARCH 1995**)

Abstract

Tunneling spectra of a single crystalline $\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$ ($T_c = 15.4 \text{ K}$) and $\text{LuNi}_2\text{B}_2\text{C}$ ($T_c = 15.7 \text{ K}$) have been measured by a point contact spectroscopy using a low temperature scanning tunneling microscope. The conductance curve of these materials shows a smeared gap structure with an almost linear density of states inside of the gap region. The linear conductance inside the gap region has been explained by a proximity induced energy gap in the degraded surface normal layer. The resulting energy gap at 4.2 K is 3.2 meV and 3.3 meV for $\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$ and $\text{LuNi}_2\text{B}_2\text{C}$, respectively. A simple analysis using a smeared BCS density of states, on the other hand, yields energy gap of 2.55 meV and 2.65 meV. Temperature dependence of the energy gap in $\text{LuNi}_2\text{B}_2\text{C}$ shows a reasonable agreement with the BCS type temperature dependence

Berry's phase in ionic C_{60} 's

Jisoon Ihm

Department of Physics and Center for Theoretical Physics, Seoul National University, Seoul 151-742, Korea

(Received 22 November 1993)

We show that Berry's phase exists in the Jahn-Teller-distorted anionic and cationic fullerenes, C_{60}^{\pm} . Berry's phase helps recover the "missing" zero-point vibration energy by generating a finite pseudorotational angular momentum, enhances the Jahn-Teller distortion, and restores the ground-state degeneracy back to the value before distortion.

The existence of Berry's phase¹ has been firmly established in a number of molecular and condensed-matter systems,^{2,3} including the Jahn-Teller-distorted Na_3 molecule.⁴ From general principles of the Jahn-Teller theorem,⁵ ionic fullerenes are expected to undergo a distortion like the Na_3 molecule. Total-energy calculations for C_{60}^- and C_{60}^+ have supported this expectation,⁶⁻⁸ although experimental evidence is still circumstantial⁹⁻¹¹ probably because the perturbation caused by a single added (or subtracted) electron in this huge molecule is rather tiny. Typical total-energy calculations employing the Born-Oppenheimer approximation provide us with the energy surface (effective potential energy) as a function of the static ionic configuration. We usually add the zero-point vibration energy to it to correct for the kinetic part of the ground-state energy. However, it turns out that such a prescription is not enough for Jahn-Teller-distorted molecules and the effect of Berry's phase should be included to describe the properties of such molecules adequately.

Then what distinguishes these molecules from other physical systems not having Berry's phase? Let G be the symmetry group of the molecule before distortion and g be a transformation element belonging to G . Suppose the molecule is distorted to a particular structure S by the Jahn-Teller effect. The molecule may equivalently be distorted to gS for obvious symmetry reasons (e.g., if an octahedron is stretched along the x direction, it may equivalently be stretched along the y or z direction), and gS has the same energy as S . In other words, the energy-minimum configurations occur in multiplets. Quantum-mechanical tunneling takes place among these energy minima surrounding the origin ($R=0$, representing the undistorted configuration) in configuration space. Such dynamic effects create nontrivial topology where the origin acts as a singularity (branch point) because of the energy degeneracy at that point, and the wave function can acquire a nonzero phase, called Berry's phase, while traversing the energy minima around the origin. This is quite a general phenomenon occurring in Jahn-Teller-distorted molecules and we will now investigate more specific features of ionic C_{60} 's.

Let us first consider the anionic fullerene (C_{60}^-). When an electron is added to a neutral C_{60} molecule of icosahedral (I_h) symmetry, it fills one of the lowest unoc-

cupied molecular orbitals, transforming according to the three-dimensional T_{1u} irreducible representation, and couples to ionic modes of the one-dimensional a_g or the five-dimensional h_g representation.¹² Coupling to the a_g mode does not lower the I_h symmetry and is irrelevant to the Jahn-Teller distortion. Then the problem is designated $T_{1u} \otimes h_g$, where the capital letter T represents the transformation properties of electrons and the lower-case letter h those of ions. Due to this coupling, C_{60}^- is expected to undergo a Jahn-Teller distortion. The triply degenerate T_{1u} level is split and the added electron occupies the lowest of the split-off levels. The occupied energy level combined with all other potential energies of the system constitutes the effective potential experienced by the ions. It is a common practice in the literature to calculate this potential-energy surface in the ionic configuration space. A group-theoretical analysis shows¹² that, with a linear Jahn-Teller distortion, the loci of the energy minima have three-dimensional spherical symmetry [SO(3)] in the five-dimensional ionic configuration space. By the linear Jahn-Teller effect, we mean an interaction Hamiltonian of the form $\hat{Q}\psi$ where \hat{Q} is the linear matrix in ionic configuration coordinates and ψ is the electronic eigenvector.⁵ Only when the next-order Jahn-Teller effect is included does this spherical surface become warped and a distortion with either D_{5d} or D_{3d} symmetry give the minimum energy depending on material parameters. Energy-minimization calculations which in principle include all orders of the distortion indicate⁶ that the distortion lowers the total energy by 0.1 eV with respect to the undistorted (I_h) structure. The energy difference between the D_{5d} - and D_{3d} -type distortions turns out very small (≈ 10 meV), being within the numerical accuracy of the state-of-the-art computational method. This result confirms that the higher-order effect which discriminates between D_{5d} and D_{3d} structures is an order of magnitude smaller than the linear-order one. Such being the case, it is appropriate to study Berry's phase in the simpler case of the linear Jahn-Teller distortion first and then go over to the more complicated nonlinear case. A method to obtain Berry's phase in the tetrahedral environment has been developed in the literature.¹³ We derive below basically the same result in an intuitive way for the purpose of applying the idea in more

Ab initio Pseudopotential Calculations of the Electronic Structure of High- T_c Cuprates and Intermetallic Compounds: Significance of the Layer Structure to Superconductivity

Hanchul Kim, Chi-Duck Hwang and Jisoon Ihm ^a

^aDepartment of Physics and Center for Theoretical Physics, Seoul National University, Seoul, 151-742, Korea

We present *ab initio* pseudopotential calculations, within the local density approximation, for stoichiometric high- T_c copper oxide $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ and newly synthesized intermetallic compounds $\text{Lu}(\text{NiB})_2\text{C}$.

1. Introduction

Until recently it was believed that materials including first-row elements, transition-metal atoms, and rare-earth elements are not suitable with the pseudopotential approach in a plane-wave representation. With the development of efficient methods for the diagonalization of large Hamiltonian matrices represented by a plane-wave basis set [1] and with the development of relatively smooth pseudopotentials it is now possible to perform the electronic structure calculations for systems containing such atoms. In this paper, we present *ab initio* pseudopotential band calculations [2] for the high- T_c cuprate $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ and the newly synthesized low- T_c quaternary intermetallics $\text{Lu}(\text{NiB})_2\text{C}$ with use of the plane-wave basis set.

We generate pseudopotentials using the scheme of Troullier and Martins, and cast them into Kleinman-Bylander type. The Ceperly-Alder correlation is used as parametrized by Perdew and Zunger. The one-electron Kohn-Sham equation is diagonalized using the block-Davidson algorithm [1] with modified Jacobi relaxation.

2. High- T_c Cuprate $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$

The stoichiometric compound $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ crystallizes in the orthorhombic structure. In its normal state, it is a metal instead of an antiferromagnetic insulator in contrast to other stoichiometric cuprates. Aside from the problem in handling the strong correlation among electrons, the local density functional band calculation is directly applicable to this system.

The calculated energy bands near E_F are shown in Fig. 1 along the symmetry directions in the irreducible Brillouin zone. There are four partially filled bands crossing E_F . Two nearly half-filled bands are derived from the two CuO_2 planes and have the two-dimensional character of $\text{Cu}2(3d_{x^2-y^2})-\text{O}2(2p_x)-\text{O}3(2p_y) \sigma^*$. The other two are derived from the CuO chain and show negligible dispersion along S-Y and R-T in contrast to the appreciable dispersion along X-S and U-R. The two CuO chain bands show different bonding characters. The nearly-empty dispersive band has the character of $\text{Cu}1(3d_{y^2-z^2})-\text{O}1(2p_y)-\text{O}4(2p_z) \sigma^*$ and the almost-filled flat band has the $\text{Cu}1(3d_{yz})-\text{O}1(2p_z)-\text{O}4(2p_y) \pi^*$ character.

Magnetic Field Behavior of High T_c Superconductor Josephson Junction Array

Yonuk Chong, H. J. Lee, and Z. G. Khim

Department of Physics, Seoul National University, Seoul 151-742, Korea

S. H. Moon and B. Oh

GoldStar Central Research Laboratory, Seoul 137-140, Korea

Abstract

High T_c Josephson junction arrays of various sizes are fabricated using YBCO step-edge junctions. Artificial grain boundaries are formed at the step edge of checkerboard-like sharp steps made on the substrate by Ar ion-milling. I-V characteristics of Josephson junction formed by YBCO film crossing the step shows resistively shunted junction behavior. Junction parameters are found to be very sensitive to fabrication conditions, especially to the step angle. In the magnetoresistance measurement, Josephson junction array shows periodic structure superimposed on a parabolic background, and frustration effect is clearly observed. Distribution of junction I_c is estimated from dV/dI measurement.

Ab initio pseudopotential plane-wave calculations of the electronic structure of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$

Hanchul Kim and Jisoon Ihm

Department of Physics and Center for Theoretical Physics, Seoul National University, Seoul, 151-742, Korea

(Received 31 May 1994; revised manuscript received 16 September 1994)

We present an *ab initio* pseudopotential local-density-functional calculation for the stoichiometric high- T_c cuprate $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ using the plane-wave basis set. We have overcome well-known difficulties in applying pseudopotential methods to first-row elements, transition metals, and rare-earth materials by carefully generating norm-conserving pseudopotentials with excellent transferability and employing an extremely efficient iterative diagonalization scheme optimized for our purpose. The self-consistent band structures, the total and site-projected densities of states, the partial charges and their symmetry-decompositions, and some characteristic charge densities near E_F are presented. We compare our results with various existing full-potential linear augmented-plane-wave and full-potential linear muffin-tin orbital calculations and establish that the *ab initio* pseudopotential method is competitive with other methods in studying the electronic structure of such complicated materials as high- T_c cuprates.

I. INTRODUCTION

The discovery of superconductivity above 30 K in $\text{La}_{2-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$ by Bednorz and Müller¹ has stimulated intensive studies on various cuprates as well as the mechanism underlying the phenomenon of high- T_c superconductivity. A wide variety of speculations about its microscopic origin have been raised with the sole consensus of the apparently important role of the CuO_2 layer (and, of course, the pairing of charge carriers) which is the basic building block of high- T_c cuprates. Even for the *normal* (above T_c) state of the high- T_c cuprates, the controversy as to whether it is a Fermi liquid or some other novel states has not been settled. The reason for the complication is that many of the cuprate superconductors have sister compounds which are strongly correlated insulating antiferromagnets. Among novel points of view explaining the anomaly in normal states of high- T_c cuprates are Luttinger liquid theory, marginal Fermi liquid theory, the van Hove scenario, spin fluctuation theory, the extended Hubbard model, the t - J model, and anyon theory, to mention a few. On the other side of such efforts, there has been a more conventional approach dealing with the full Hamiltonian and the realistic atomic structure in the belief of Fermi liquid theory; first-principles density-functional theory² with the local density approximation³ (LDA) for the exchange-correlation energy is such an example. In spite of its shortcomings in the magnetic insulating phase, various state-of-the-art electronic structure calculations have proven to be successful in predicting from first principles a number of properties of metallic cuprates such as the lattice constant, atomic positions within the unit cell, phonon frequencies, structural instabilities, electric field gradients, and most importantly, the detailed energy band structure and the Fermi surface (FS).⁴ Such calculations show the existence of a half-filled $p\delta\sigma$ -antibonding band and the resulting cylindrical FS per CuO_2 plane as the distinctive electronic feature

of the high- T_c cuprates.⁵

Most of the existing electronic structures for high- T_c cuprates have been calculated with use of the all-electron localized-basis methods [linear muffin-tin orbital (LMTO), full-potential LMTO (FLMTO), linear augmented-plane-wave (LAPW), or full-potential LAPW (FLAPW)] or the pseudopotential mixed-basis method. Here, we want to emphasize the merits of the plane-wave basis set, which the above-mentioned methods do not share. The mathematical formulation and the implementation of the numerical codes are particularly simple with the plane-wave basis set. The accuracy of the calculation is easily controlled by varying the kinetic energy cutoff. Plane waves form a basis set independent of the ionic positions, allowing for an unbiased uniform description of the system and a much simpler calculation of quantum mechanical (Hellman-Feynman) forces. Furthermore, plane waves enable us to use the fast Fourier transform so that iterative diagonalization methods⁶⁻¹⁰ or *ab initio* molecular dynamics¹¹⁻¹³ can be applied efficiently. In conjunction with the pseudopotential formulation,^{14,15} where the rapid oscillations of valence wave functions in the core region are systematically smoothed out with their norms kept conserved, the plane-wave basis sets are quite successful in the calculation of the electronic structure of most semiconductors and some metals. However, until recently it was believed that materials including first-row elements, transition-metal atoms, and rare-earth elements are not suitable for the application of the pseudopotential plane-wave method. With the development of efficient methods for diagonalizing large Hamiltonian matrices represented in a plane-wave basis set,⁶⁻¹³ together with relatively smooth pseudopotentials,^{16,17} it is now possible to perform electronic structure calculations for systems containing such atoms.

In this paper, we present an *ab initio* pseudopotential density-functional calculation of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ using the plane-wave basis set. $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ($0 \leq \delta \leq 1$) is perhaps the most extensively studied compound among the cuprate superconductors. A unique feature of this com-

Ab initio pseudopotential calculations for the electronic structure of
low- T_c LuNi₂B₂C and the related compound LuNiBC

Hanchul Kim, Chi-Duck Hwang, and Jisoon Ihm

Department of Physics and Center for Theoretical Physics,

Seoul National University, Seoul 151-742, Korea

(Received February 28, 1995)

Abstract

Ab initio pseudopotential calculations are performed for the electronic structure of the low- T_c intermetallics LuNi₂B₂C and the related nonsuperconducting compound LuNiBC. Electronic structures of the two compounds are compared in great detail, especially in terms of the Fermi surfaces and the symmetry-decomposed density of states (DOS) near the Fermi level. The estimated electron-phonon coupling constant λ (0.8–1.1) from the heat-capacity data as well as from the calculated DOS at E_F indicates that T_c of LuNi₂B₂C is reasonably well explained by the conventional Bardeen-Cooper-Schrieffer (BCS) mechanism with intermediate coupling strength. The relatively high T_c arises from the large DOS at the Fermi level. Absence of superconductivity in LuNiBC may be understood to be due to the reduced DOS at E_F . Unlike the high- T_c cuprates, the low- T_c LuNi₂B₂C does not have the half-filled σ -antibonding bands and its electronic structure is almost three-dimensional despite the layered atomic structure.

PACS numbers: 74.70.Ad, 74.25.Jb, 71.25.Pi, 71.38.+i

Typeset using REVTeX