

## Fabrication of YBCO/STO/YBCO Multilayer

### YBCO/STO/YBCO 다층박막 제작

D. H. Ha<sup>a</sup>, T. J. Hwang<sup>b</sup>, H.-R. Lim<sup>b</sup>, J. C. Kim<sup>a</sup>, D. H. Kim<sup>b</sup>,  
J.-C. Park<sup>a</sup>, Y. K. Park<sup>a</sup>

하동한<sup>a</sup>, 황태종<sup>b</sup>, 임해용<sup>b</sup>, 김진철<sup>a</sup>, 김동호<sup>b</sup>, 박종철<sup>a</sup>, 박용기<sup>a</sup>

*a* Korea Research Institute of Standards and Science, P.O.Box 102, Yusong, Taejeon 305-600  
*b* Department of Physics, Yeungnam University, Kyungsan 712-749

*a* 대전시 유성우체국 사서함 102, 한국표준과학연구원  
*b* 경북 경산시 712-749, 영남대학교 물리학과

We have fabricated YBCO/STO/YBCO multilayer by the pulsed laser deposition method varying the deposition condition of insulating STO layer. Superconducting properties of both YBCO layers are sensitively affected by the deposition condition of STO layer. We obtained the upper YBCO layer of  $T_{c(\text{zero})} \sim 90$  K with a good reproducibility, however,  $T_{c(\text{zero})}$  of lower YBCO layer was decreased to about 80 K maybe due to the oxygen loss during the deposition of STO layer. Superconducting properties of both YBCO layers at every fabrication step were measured in order to study the reason for the deterioration of superconducting properties.

#### 1. 서론

S-I-S 형태의 다층박막제작[1-5] 기술의 확립은 고온초전도체를 이용한 여러 가지 전자소자를 제작하는데 있어서 매우 중요하다. 단일층을 이용할 때와 비교하면 다층박막을 이용한 dc-SQUID는 하나의 기판에 pickup 코일과 SQUID를 함께 만들기 때문에 둘사이의 coupling이 매우 좋을 뿐만 아니라 안정적이다.[6] 그러나 S-I-S 형태의 다층박막은 여러 가지의 제작과정을 거치기 때문에, 제작과정동안 산소농도의 감소나 결정성의 나빠짐 등에 의하여 절연층 아래, 위 초전도층의 물성이 나빠지기가 쉽다.

본 연구에서는 SrTiO<sub>3</sub> (STO)의 증착조건을 변화시켜 가며 YBCO/STO/YBCO 다층박막을 제작하고 각각의 경우 아래, 위층 YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub> (YBCO)의 초전도성을 측정하여 다층박막제조 최적조건을 찾고자 한다.

#### 2. 시료제조와 측정

STO(100)기판 위에 엑시머레이저 ( $\lambda=248$  nm)를 이용하여 pulsed laser deposition 방법으로 YBCO/STO/YBCO 다층박막을 제작하였다. 아래, 위층 YBCO박막은 일정한 조건 (기판온도=810 °C, 산소분압=400 mTorr, 에너지밀도=1.2 J/cm<sup>2</sup>, 반복율=3 Hz) 하에서 제작하였는데, 본 실험실에서 이 조건하에서 STO기판 위에 YBCO를 증착하면 결정성이 우수하고 패터닝의 여러과정에 대해서도 매우 안정적일 뿐만 아니라  $T_{c(\text{zero})}$ 도 90~91 K 정도인 우수한 YBCO 박막을 얻을 수 있다. STO층은 기판온도는 변화시키고 나머지 조건은 고정한 채로 (기판온도=변수, 산소분압=150 mTorr, 에너지밀도=1.2 J/cm<sup>2</sup>, 반복율=3 Hz) 증착하였다. 아래층 YBCO (1200~1500 Å)와 STO capping층 (100 Å)을 한꺼번에 만든 후, Ar 밀링

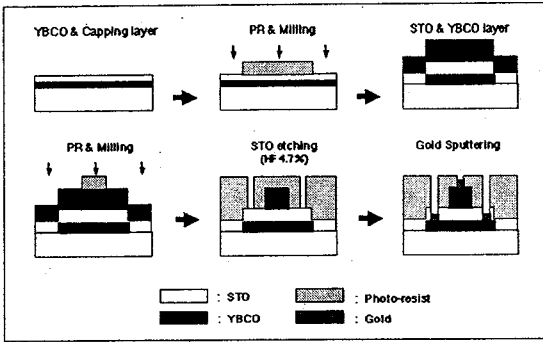


Fig. 1 Fabrication process of S-I-S multilayer.

법으로 패터닝하고 다시 나머지 STO층 (1400 Å) 과 위층 YBCO (2000 Å)를 제작한다. 위층 YBCO 를 역시 Ar 밀링법으로 패터닝한 후 특성측정을 하기 위하여 gold 패드를 아래, 위 YBCO층에 만 드는데 제작공정을 그림 1에 나타내었으며 그림 2는 제작한 다층박막의 일부분이다. 아래, 위층 YBCO 모두 50 μm 폭으로 패터닝하였으며, 하나 의 기판에 crossover 및 그림 2와 같이 여러번 교차하는 모양을 함께 만들었다. 제작중 여러 과 정에서의 각 층의 특성을 X-선 회절실험, 저항측 정 등을 통하여 조사하여서, 각 과정동안 아래, 위 YBCO층의 특성이 어떻게 변하는가를 조사 하였다. 또한 STO층의 표면을 SEM으로 관찰한 결과, 350~780 °C의 범위에서 STO를 증착할 때 다층박막을 이용한 소자개발에 장애요인인

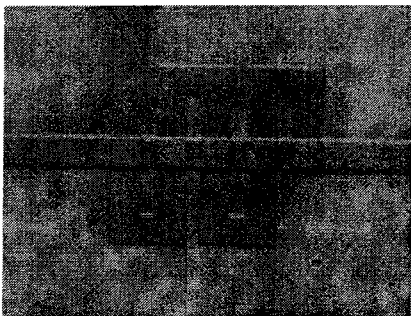


Fig. 2 Optical micro-graph of a S-I-S trilayer. Horizontal bridge : lower YBCO, vertical bridge : upper YBCO and bridge width = 50 μm

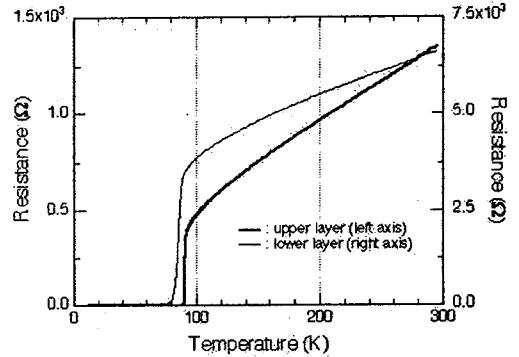


Fig. 3 Temperature dependence of resistivity for the upper and lower YBCO bridges of 50 μm width. Capping and middle STO layer were deposited at 780 °C.

pin-hole 등은 전혀 관찰되지 않았다.

### 3. 결과 및 논의

그림 3은 capping층 및 나머지 STO층을 780 °C에서 증착한 경우 아래, 위층 YBCO bridge의 초전도 특성이다. 그림에서 볼 수 있듯이 아래, 위층 YBCO 모두 금속적인 특성을 나타내며 위층 YBCO의  $T_{c(0)}$ 는 약 90 K 이고 아래층의 경우는  $T_{c(0)} \sim 76$  K 이었다. 실온에서의 비저항 값도 위층 YBCO의 경우는  $\rho \sim 0.3$  mΩ.cm이지만 아래층의 경우는  $\rho \sim 1.0$  mΩ.cm로 위층의 비저항 값보다 컸다. 또한 같은 조건에서 여러 개의 시편을 제작하였는데 위층은 재현성 있게  $T_{c(0)} \sim 90$  K를 얻을 수 있었으나, 아래층의 재현성은 나빠서 대체로  $T_c$ 가 많이 감소하거나 반도체적인 특성을 나타내는 경우가 더 많았다. 제작 중 여러 과정에서의 특성을 측정해 본 결과 YBCO의 특성이 좋을 때는 photoresist(PR) 작업이나 Ar 밀링에 의해서는 초전도성이 별로 나빠지지 않는 걸로 보아서[7], 780 °C에서 STO층을 증착할 경우 아래층 YBCO의 특성이 나빠지는 것은, 주로 STO층을 증착하는 과정동안 산소가 빠져나가기 때문이라고 생각한다.

Capping층 및 나머지 STO층을 350 °C에서 증착한 경우 아래, 위층 YBCO bridge의 초전도 특성을 그림 4에 나타내었다. 그림 3의 결과와는 달리, 위층 YBCO는 대부분 반도체적인 특성을

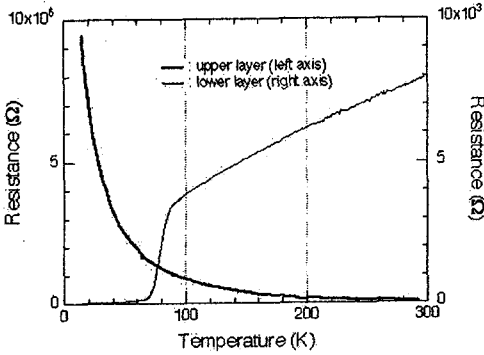


Fig. 4 Temperature dependence of resistivity for the upper and lower YBCO bridges of 50  $\mu\text{m}$  width. Capping and middle STO layer were deposited at 350  $^{\circ}\text{C}$ .

보이며 아래층 YBCO는 초전도성을 보이지만  $T_{c(\text{zero})}$ 는 대체로 60~70 K로 감소하였다. 위층 YBCO의 초전도성이 사라지는 이유는 그림 5에서 볼 수 있듯이 STO층을 350  $^{\circ}\text{C}$ 에서 증착하면 STO가 제대로 결정을 이루지 못하기 때문이라고 생각한다. 사실 이 경우 STO층은 780  $^{\circ}\text{C}$ 에서 제작할 경우와 달리, 무지개 빛을 띠며 polishing천에 약하게 문지르기만 하여도 쉽게 벗겨지는 것으로 보아서 비정질상태라고 생각된다. STO층을 제작하는 동안 아래층 YBCO에서 산소가 빠져나가는 것을 막기 위하여 350  $^{\circ}\text{C}$ 에서

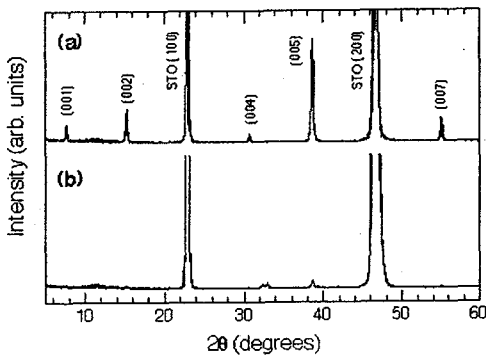


Fig. 5 XRD patterns of Substrate/STO/YBCO layers. STO layers are deposited at (a) 780  $^{\circ}\text{C}$  and (b) 350  $^{\circ}\text{C}$ .

STO층을 증착하였지만, 의외로  $T_{c(\text{zero})}$ 가 많이 감소하였다. YBCO 박막을 진공 속 350  $^{\circ}\text{C}$ 에서 열처리하면  $T_{c(\text{zero})}$ 가 감소하는 걸로 보아서, 그림 4에서 아래층 YBCO의 초전도성이 나빠지는 이유도 주로 STO층을 제작하는 동안 아래층 YBCO에서 산소가 빠져나가기 때문이라고 생각한다. 그러나 780  $^{\circ}\text{C}$ 에서 STO층을 제작할 때보다 평균적으로 아래층의 초전도성이 양호하였다. 그림 4의 경우 실온에서 위층 YBCO의 비저항 값은 약 8.0  $\text{m}\Omega\cdot\text{cm}$ 이고 아래층 YBCO의 비저항 값은 약 1.2  $\text{m}\Omega\cdot\text{cm}$ 이었다.

Capping층은 350  $^{\circ}\text{C}$ 에서 나머지 STO층은 780  $^{\circ}\text{C}$ 에서 증착한 경우에는 위층 YBCO는 그림 3에서처럼  $T_{c(\text{zero})} \sim 90$  K이고, 아래층 YBCO는  $T_{c(\text{zero})} \sim 65$  K로서 그림 3과 4의 양호한 경우만 합쳐놓은 것과 거의 같은 양상을 보인다. 즉 이 때에는 나머지 STO층을 780  $^{\circ}\text{C}$ 에서 증착하는 동안 capping층이 아래층 YBCO의 산소가 빠져나가는 것을 어느 정도 막아주며, 위층 YBCO의 결정성도 좋아지므로 아래, 위층 모두 재현성 있게 초전도성이 잘 나타난다고 생각한다. 실온에서 아래, 위층 YBCO의 비저항은 각각 1.4  $\text{m}\Omega\cdot\text{cm}$  및 0.35  $\text{m}\Omega\cdot\text{cm}$ 로서 양호하였다. 즉 STO층을 여러 온도에서 단계적으로 증착하는 방법이 초전도성도 양호하고 재현성 있는 S-I-S 다층박막을 제작하는데 가장 알맞은 방법이라고 생각된다. STO의 증착온도를 변화시켜가며 시편을 제조한 결과, 결정성이 좋을 뿐만 아니라 위

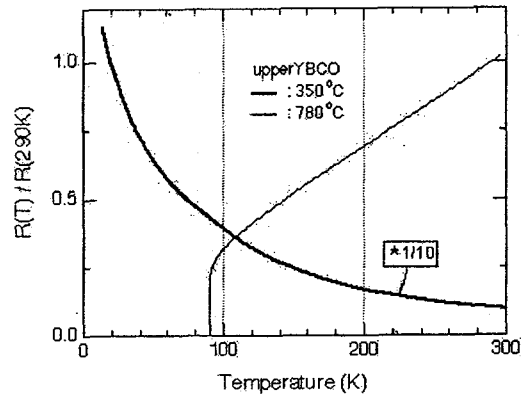


Fig. 6 Temperature dependence of resistivity for the YBCO layers explained in Fig. 5. STO layers are deposited at 780  $^{\circ}\text{C}$  (thin line) and 350  $^{\circ}\text{C}$  (thick line)

층 YBCO의  $T_{c(\text{zero})}$ 는 90 K, 아래 층 YBCO의  $T_{c(\text{zero})}$ 는 87~89 K정도인 우수한 박막을 얻을 수 있었다.

그림 5는 STO(100)기판 위에 STO층을 780 °C와 350 °C에서 증착한 후, 그 위에 YBCO를 입힌 후 측정된 X-선 회절무늬이다. 그림 5(b)에서 볼 수 있듯이 350 °C에서 증착한 STO층 위에 제작한 YBCO층에서는 YBCO의 특징적인 피크가 거의 나타나지 않는 것으로 보아서, 이 경우에는 YBCO가 사방정계구조를 제대로 이루지 못함을 알 수 있다.

그림 6은 그림 5에 설명한 시편의 저항을 측정 한 결과이다. 패터닝하기 전 이미 350 °C에서 증착한 STO층 위의 YBCO는 초전도성을 보이지 못하므로 그림 4에서 위층 YBCO 브릿지의 초전도성이 사라진 주된 이유는 산소량의 부족이나 패터닝 과정중의 손상 때문이 아니라 위층 YBCO가 결정을 잘 이루지 못하였기 때문이라고 생각한다. 반면에 그림 5(a)에서 처럼 위층 YBCO의 결정성이 좋으면 그림 3과 6에서 볼 수 있듯이 패터닝 하기 전, 후 모두 우수한 초전도성을 나타냄을 알 수 있다.

## 5. 결과 및 논의

STO층의 증착온도를 변화시켜가며 YBCO/STO/YBCO 다층박막을 제작하였다. YBCO의 결정성이 좋을 경우에는 PR작업이나 Ar 밀링 작업 등을 거치더라도 초전도성이 나빠지지 않았다. 각 과정에서의 특성을 분석한 결과 아래층 YBCO는 주로 STO층을 제작하는 동안의 산소량의 감소에 의하여, 위층 YBCO는 결정성이 나빠지기 때문에 초전도성이 나빠진다고 생각한다. 그러나 여러 실험 결과로부터 아래층 YBCO를 보호하기 위하여 STO의 증착온도를 낮추면 위층

YBCO의 결정성이 나빠지고, 위층 YBCO의 결정성을 좋게 하기 위하여 STO의 증착온도를 높이면 아래층 YBCO의 초전도성이 나빠진다. 따라서 아래, 위층 YBCO를 모두 보호하기 위해서는 적절한 STO 증착 온도 및 방법을 찾는 것이 중요하다고 생각한다. 현재 STO층의 증착 온도 및 방법을 바꾸어 가며 제작한 결과 결정성이 좋을 뿐만 아니라, 위층 YBCO의  $T_{c(\text{zero})}$ 는 90 K, 아래 층 YBCO의  $T_{c(\text{zero})}$ 는 87~89 K정도인 우수한 박막을 얻을 수 있었으며 재현성 확인 실험을 하고 있다.

## 참고문헌

- [1] H. Sato, R. Miyakawa, N. Nakamura, S. R. Gjøen, H. Akoh and S. Takada, *Jpn. J. Appl. Phys.* **35**, L311 (1996).
- [2] H. Q. Li, R. H. Ono, L. R. Vale, D. A. Rudman and S. H. Liou, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 2752 (1996).
- [3] M. D. Strikovski, F. Kahlmann, J. Schubert, W. Zander, V. Glyantsev and G. Ockenfuss and C. L. Jia, *Appl. Phys. Lett.* **66**, 3521 (1995).
- [4] N. Missert, T. E. Harvey, R. H. Ono and C. D. Reintsema, *Appl. Phys. Lett.* **63**, 1690 (1993).
- [5] M. A. A. M. van Wijck, M. A. J. Verhoeven, E. M. C. M. Reuvekamp, G. J. Gerritsma, D. H. A. Blank and H. Rogalla, *Appl. Phys. Lett.* **68**, 553 (1996).
- [6] S. Tanaka and M. Koyanagi, in *Principles and Applications of Superconducting Quantum Interference Devices*, ed. by A. Barone, (World Scientific, Singapore, 1992).
- [7] R. Tsuchiya, M. Kawasaki, H. Kubota, J. Nishino, H. Sata, H. Akoh and H. Koinuma, *Appl. Phys. Lett.* **71**, 1570 (1997).