

고온초전도체 *in-situ* ramp-edge 형태의 조셉슨 접합 제작 및 특성

허윤성 · 김진태 · 황윤석* · 이순걸* · 박광서** · 김인선 · 박용기 · 박종철

한국표준과학연구원 초전도그룹

*고려대학교 물리학과

**서강대학교 물리학과

Fabrication and Characterization of High Temperature *in-situ* Ramp-edge Type Josephson Junction

Yunsung Huh, Jin-Tae Kim, Yunseok Hwang*, Soon-Gul Lee*, Gwangseo Park**,

In-Seon Kim, Yong Ki Park and Jong-Chul Park

Korea Research Institute of Standards and Science, Taejeon 305-600

* Department of Physics, Korea University, Jochiwon 339-800

** Department of Physics, Sogang University, Seoul 121-742

(1997년 12월 6일 받음, 1998년 1월 20일 최종수정본 받음)

초 록 본 연구에서는 금속 칼날 마스크와 펄스 레이저 증착장치를 이용하여 $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}/SrTiO_3/YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ 다층박막 형태의 *in-situ* SIS ramp edge 형태의 접합을 제작하였으며, 이의 특성을 조사하였다. 접합은 RSJ 형태의 전류-전압 특성을 나타내고 있으며, 온도 변화에 따른 접합의 normal resistance는 약 18Ω 으로 온도에 무관하게 거의 일정한 값을 나타내었다. 접합형태를 이용하여 감도 (transfer function, $dV/d\Phi$)가 약 $22 \mu V/\Phi_0$ 인 dc-SQUID 센서를 제작하였으며, *in-situ* ramp edge 형태의 접합이 센서로의 응용가능성을 충분히 가지고 있음을 보여 주었다.

Abstract In this study, we have fabricated *in-situ* multilayer $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}/SrTiO_3/YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ SIS ramp edge type junctions by using a metal mask and pulsed laser deposition method and studied the junction properties. The junctions showed RSJ-like I-V characteristics. The normal state junction resistance R_N of 18Ω was nearly constant with temperature. The dc-SQUID sensors fabricated with the junctions show a sensitivity that transfer function $dV/d\Phi \sim 22 \mu V/\Phi_0$, indicating that the *in-situ* ramp edge type junction is potentially useful for sensor application.

1. 서 론

마이크로파 혼합기나 디지털 소자와 같이 초전도체를 이용한 전자공학 센서들은 모두가 조셉슨 접합을 이용한 것들로서 이들의 특성을 좋게 하기 위해서는 박막 특성뿐 아니라 접합의 특성도 좋아야 한다. 조셉슨 접합은 두 개의 초전도체가 불순물이나 결함 등으로 인하여 결맞음 길이 이내의 간격을 사이에 두고 연결되어 있는 구조를 하고 있으며, 이 접합에서 일어나는 효과를 조셉슨 효과라 한다. 특히 지구 자기장의 100만 분의 1에 해당하는 미세 자기장을 검지할 수 있는 SQUID (Superconducting QUantum Interference Device) 센서는 조셉슨 접합을 센서의 필수 요건으로 하고 있으며, 최적의 센서 특성을 위해서 지금까지 여러 형태의 접합들이 많은 그룹에 의해서 제안되어졌다.^{1~2)} 대표적인 조셉슨 접합형태로는 복결정 (bi-crystal) 접합,^{3~5)} step-edge 접합,^{6~7)} SNS step-edge 접합,⁸⁾ 그리고 ramp-edge 접합^{9~10)} 등이 있으며, 이 중에 복결정 접합은, 기판 내의 원하는 장소에 접합을 만들기 어렵고 가격 면에서 월등히 비싸기 때문에 응용에 한계를 가지고 있다. 또한 step-edge 접합은 복결정 접합에 비해서 원하는 곳에 접합을 제작할 수 있고 가격 면에서도 유리한 점을 가지고 있지

만 재현성이 떨어지고 임계전류 밀도가 작다는 불리한 점을 가지고 있다. 이에 반해서 ramp-edge 접합은 장벽의 두께나 장벽물질의 종류를 바꿔줌으로써 접합의 특성을 조절할 수 있는 장점을 가지고 있기 때문에 많은 연구가 되어 있다.^{11~13)} 그러나 접합제작을 위해서 많은 과정을 필수적으로 거쳐야만 하는 ramp-edge 접합은 이로 인한 박막특성의 저하 및 소자의 재현성을 염두에 두지 않을 수 없다. 따라서 *in-situ* 상태에서 접합 층을 형성하게 된다면 제작과정의 일부를 줄일 수 있는 효과를 가져오기 때문에 불순물과의 접촉을 그만큼 피하는 결과가 되는 셈이다.

고온초전도체의 전자공학 분야로의 응용을 위해서는 대부분 특수한 공정을 거쳐 박막화를 한다. 그러나 다원 화합물의 산화물로 이뤄진 고온초전도 물질은 여러 단계의 센서 소자 제작과정으로 인한 물질특성의 저하를 우려하지 않을 수 없다. 특히 $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ (YBCO) 박막은 patterning 과정에서 photo-resist (PR) 와 수분으로 인한 특성저하가 알려져¹⁴⁾ 있기 때문에 박막 형태의 조셉슨 미세소자 제작과정에서 일어날 수 있는 특성 저하를 최소화하도록 제작 환경 및 공정상의 간편성을 우선적으로 고려해야 한다.

조셉슨 접합을 이용하는 SQUID 센서의 경우 센서의 변조 전압이 크면 클수록 측정상의 결함회로로 인한 전기적인

잡음이 줄어들게 된다.¹⁵⁾ 이 때의 변조 전압은 접합의 $I_c R_N$ 곱에 비례하기 때문에 변조 전압을 크게 하기 위해서는 반드시 normal state resistance (R_N) 값을 크게 할 필요가 있다. 또한 R_N 값을 크게 함으로서 SQUID 센서의 white noise ($S_\phi = 9k_B T L / R$) 를 감소시킬 수 있음이 알려져 있다.¹⁶⁾

Koren¹⁷⁻¹⁹⁾ 등은 *in-situ*로 metal mask를 사용하여 만든 YBCO/BaF₂/YBCO 다층박막과 SrTiO₃(STO)와 Ag로 중간층을 대체한 단일접합의 특성을 보고하였다. 이들이 만든 접합의 normal resistance는 0.3~0.5Ω 수준이었다.

본 연구에서는 초전도체의 센서소자 제작에 필요한 다층박막 기술의 제작과정중 공기와 수분에 노출시켜야 하는 일부 과정을 생략함으로써 박막특성의 저하를 최소화 할 수 있는 방법을 시도하였다. 다층박막기술의 시험적 단계라 할 수 있는 *in-situ* ramp-edge 형태의 접합을 제작하였으며, 이의 특성을 조사하였다. 제작된 접합의 normal resistance는 온도 변화에 거의 무관하며, 복결정 접합이나 step-edge 접합 형태의 저항값에 비해 상대적으로 큰 약 18Ω을 얻었다.

2. 조셉슨 접합 제작

그림 1은 *in-situ* 다층박막 증착 및 ramp-edge 접합 제작 과정을 보여주고 있다. 실험에 사용된 기판은 10×10mm² 크기의 STO(100) 단결정이었으며, 쉽게 구할 수 있는 양면 면도날을 금속 마스크로 사용하였다. 증착시 금속 마스크와의 반응을 피하기 위하여 마스크 앞뒷면에 rf 마그네트론 스퍼터링법을 이용하여 금(Au)을 증착하였다. 히터 표면 위에 기판 면 보다 높게 알루미늄 조각을 Ag-에폭시를 이용하여 고정시켰으며, 시료 표면에 마스크의 에지가 접촉되도록 알루미늄 조각의 윗 부분에 Ag-페이스트를 이용하여 금속 마스크를 비스듬하게 고정시켰다. 이 때 시료 표면과 마스크가 이루는 각은 약 30도 정도되었으며, 히터 가열시 열팽창에 의한 금속 마스크의 들뜸을 방지하기 위하여 주의하였다. 모든 박막의 증착은 펄스형태(5Hz)의 KrF 엑시머 레이저(248nm)를 이용한 레이저 증착법을 사용하였다. 그림 1의 a)와 같이 진공을 과기하지 않은 *in-situ* 상태에서 YBCO와 STO를 각각 200nm와 50nm씩 증착하였으며, 그림 1의 b)와 같이 다시 마스크를 제거한 후 YBCO를 200nm 두께로 증착하였다. 증착시 기판의 온도와 산소분위기는 각각 780℃와 200 mTorr 이었으며, 증착된 박막을 500℃, 1기압의 산소분위기에서 1시간 동안 열처리하였다. 그림 1의 c)와 같이 증착된 박막은 photolithography(AZ1518, AZ5214)와 Ar 이온 밀링(350V)법을 이용하여 패터닝하였다. 이 때 패터닝하는 정도는 진공내의 시료를 육안으로 확인하며 아래 층 초전도 박막이 드러나는 시점을 시간에 맞추어 보정하였다. 위층과 아래층의 YBCO 박막에 대한 측정단자의 전기적 접촉을 위해 10% 불산 용액을 이용한 wet etching 방법으로 전극 pad용 STO window를 만들었으며, 여기에 약 300nm 두께의 Au를 그림 1의 d)와 같이 rf 스퍼터링 방법으로 증착하였다. 마지막으로 그림 1의 e)와 같이 lift-off 방법

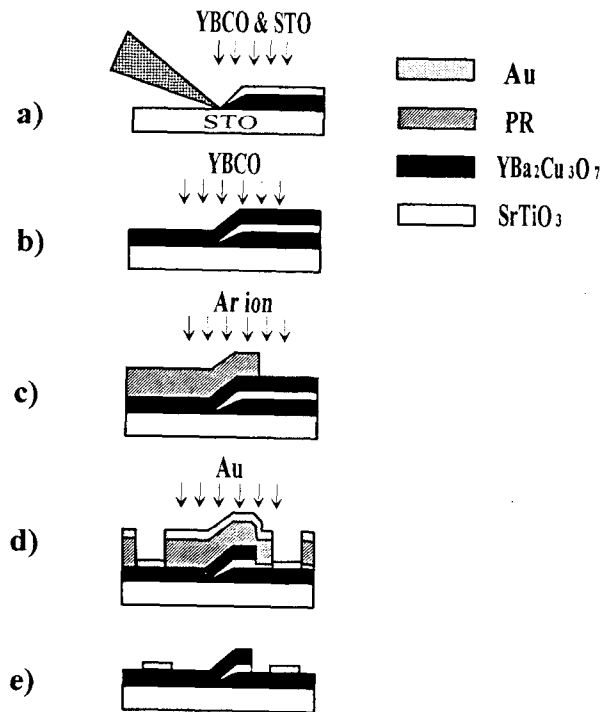


Fig. 1. *In-situ* multilayer deposition process for ramp edge junction.

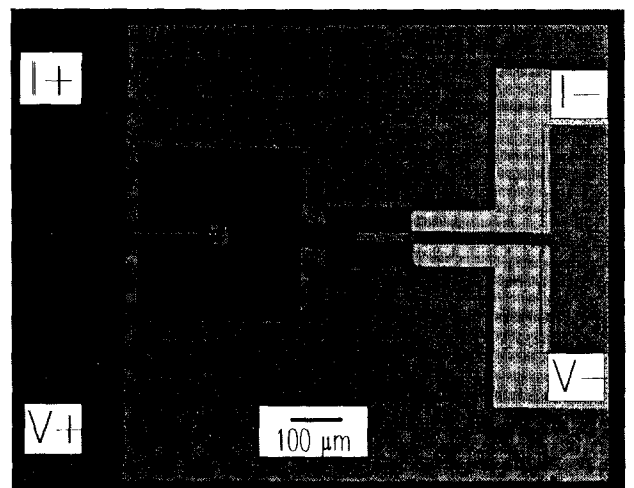


Fig. 2. The optical micrograph of the SQUID sensor. The size of the hole was 40×40μm² and the width of junction was 3μm.

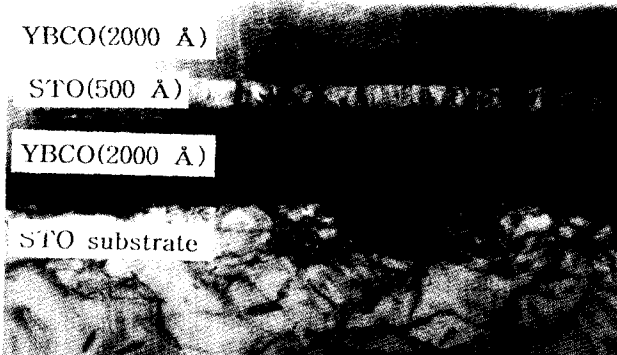
으로 전극 pad를 완성하였으며, 이를 500℃-1기압의 산소분위기에서 산소 열처리하여 시료를 완성하였다.

제작된 접합의 작동여부를 확인하기 위하여 이를 dc-SQUID 소자에 직접 적용시켜 이의 특성을 조사하였다. 그림 2는 본 연구에서 제작된 접합의 형태를 이용하여 완성한 dc-SQUID의 센서를 나타낸 것이다. 그림에서와 같이 4단자법을 이용하여 제작된 소자의 전기적 특성을 조사하였다. 이 때 제작된 SQUID 센서는 pick-up coil이 별도로 첨가되지 않았으며, SQUID washer의 크기가 320μm×320μm, hole의 크기가 40μm×40μm, 접합의 폭이 5μm인 형태를 하고 있다.

3. 결과 및 고찰

기판 위에 형성된 다원화합물의 고온초전도체 박막 특성은 이를 이용한 소자의 질을 우선적으로 가름할 수 있는 중요한 변수 중의 하나이다. 투과형 전자 현미경(TEM)을 이용하여 *in-situ*로 성장된 다층박막의 원자적인 구조를 조사하였다. 그림 3(a)는 STO 기판 위에 증착된 YBCO/STO/YBCO 박막의 단면에 대한 저 배율 TEM 사진이며, 그림 3(b)는 윗부분 YBCO/STO 계면의 단면에 대한 고 분해능 TEM 사진이다. 박막의 에피택셜 성장은 고온초전도를 이용한 전자소자 제작에 꼭 필요한 조건이다. 그림에서 보여주는 바와 같이 SrTiO₃ 위에 성장된 맨 위층의 YBCO 박막이 잘 에피택셜 성장되어 있음을 알 수 있으며, 이는 X-선 회절 실험 결과로부터 기판면에 수직하게 c-축으로 성장되었음을 확인할 수 있었다. 그림 4는 외부자기장이 없는 상태에서 77 K에 대한 SIS ramp-edge 접합의 전류-전압 특성을 보여주고 있다. 측정된 접합의 임계전류는 약 4 μ A 이었으며, 특성곡선은 RSJ(resistively shunted junction)의 거동을 나타내었다. 일반적인 복결정 접합에서 측정되는 임계전류값에 비해 재현성과 그 값의 크기가 떨어지는 작은 값이지만 절연체를 사이에 두어 높은 저항값을 나타내는 SIS 접합 형태로서는 일반적으로 얻을 수 있는 ramp-edge 형태의 임계전류값 수준이라 할 수 있다. 그림

(a)



(b)

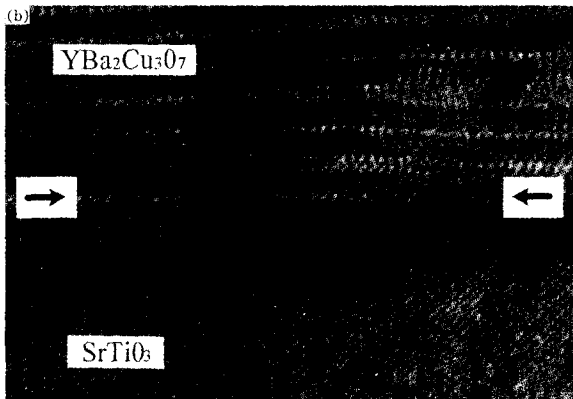


Fig. 3. (a) TEM cross-sectional view of multilayer YBa₂Cu₃O_{7-x}/SrTiO₃/YBa₂Cu₃O_{7-x} films on single crystal SrTiO₃ substrate. (b) Detailed TEM cross-sectional view of YBa₂Cu₃O₇/SrTiO₃ interface. The size of arrows corresponds to 10 Å.

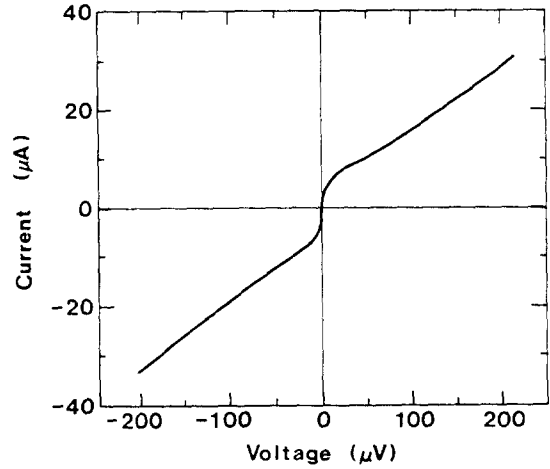


Fig. 4. I-V characteristics on SIS ramp edge junction at zero applied field under μ -metal shield environment.

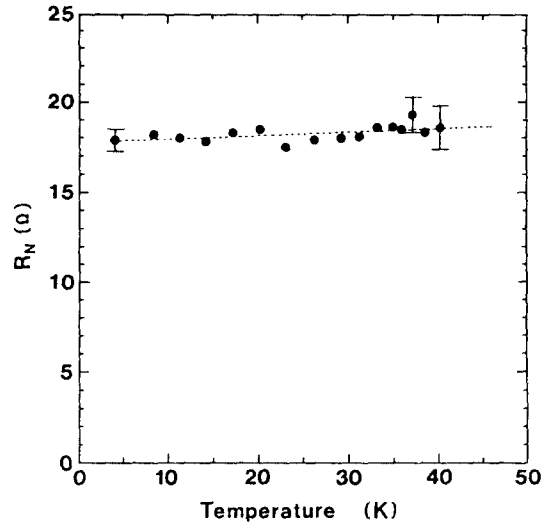


Fig. 5. Normal state resistance of the junction versus temperature.

5는 접합의 normal state resistance (R_N)를 온도의 함수로 나타낸 것이다. R_N 값은 열적인 요동이 있는 RSJ 모델²⁰⁾에 측정된 전류-전압 곡선을 맞추어 측정하였다. 제작된 접합의 normal state resistance는 그림에서 보여주는 바와 같이 온도변화에 거의 무관한 약 18 Ω 을 나타내었다. 일반적으로 절연체나 반도체를 사이에 둔 접합 형태에서는 온도 변화에 따라 접합의 normal state resistance 값이 달라지게 되는데 제작된 접합의 저항값은 인위적으로 절연체의 두께 조절이 가능한 ex-situ 제작과정에 의한 접합형태와 비교해서 낮은 저항값이지만 온도 변화에 매우 안정적인 특성을 가지고 있는게 특징이라 할 수 있다. 그러나 대부분 일반적으로 사용되는 복결정 접합과 step-edge 접합의 R_N 값이 전형적으로 약 0.5 Ω 에 해당하는 작은 값을 갖기 때문에 이들과 비교할 경우 상대적으로 큰 저항값이라 할 수 있다. 10⁻¹²T 영역의 뇌자도와 같은 미세자기 신호를 감지할 수 있는 SQUID 센서의 경우 소자 자체가 가지는 white

noise의 크기를 줄이는 일은 소자의 감도를 높이는 측면에서 매우 중요한 일이다. 또한 flux noise는 $S_{\phi} = 9k_B T L / R$ 에 의해서 R_N 값이 증가함에 따라 감소하기 때문에 SQUID 센서 자체의 R_N 값을 증가시 켜줄 필요가 있다. 이를 위한 많은 노력이 여러 그룹에 의해서 있어 왔다.¹⁵⁾ Cantor 등²¹⁾은 기판과 초전도체 사이의 완충층에 의한 격자 불일치를 이용하여 복결정 접합의 R_N 값을 증가시킬 수 있다고 보고하였다. 본 연구에서 제작된 접합 형태는 이러한 면에서 고찰해 보면 높은 응용가능성을 가지고 있다고 할 수 있다.

또한 접합의 응용가능성을 조사하기 위하여 접합 형태를 이용한 dc-SQUID 센서를 제작하였으며, 제작된 센서의 작동 여부를 확인하였다. dc-SQUID 센서는 두 개의 조셉슨 접합으로 구성된 자기센서로서 외부 자기장의 변화로 인해 발생하는 변조전압 (output voltage) 과 SQUID 센서 자체가 가지는 noise로 그의 특성을 알아 볼 수 있다. 변조전압 신호는 외부의 자기장이 SQUID washer를 통과할 때 그의 크기가 양자화되어 SQUID 양단에 인가하는 초전류의 양을 변화시켜주는 결과가 되는데 이 때 접합의 양단에 발생하는 전압강하의 양을 외부 자기장의 변화에 대하여 측정할 것을 말한다. 따라서 이는 자기장을 전압으로 변화시켜주는 자기장-전압의 변환기로 생각할 수 있다. 본 연구에서는 외부자기장의 변화에 따라 SQUID 센서의 변조전압을 측정하였으며, 77 K에서 여러 가지 인가 전류에 대한 전압 변조신호를 그림 6에 나타내었다. 외부 인가 자기장의 변화에 따라 임계전류 값이 인가 자기장의 $1\Phi_0$ (flux quantum) 주기로 변하기 때문에 고정된 인가 전류값에서 전압을 그림과 같이 측정할 수 있다. 측정된 변조 신호는 자기장의 변화에 따라 주기적으로 변하고 있음을 볼 수 있으며, 인가전류가 $15\mu A$ 일 때 $7\mu V$ 의 변조 진폭을 나타내었다. 이에 대응되는 transfer function $dV/d\Phi$ 는 $22\mu A/\Phi_0$ 으로 $1\Phi_0$ (flux quantum)의 자기장 변화로 $22\mu V$ 의 전압을 발생시킬 수 있음을 의미하며, 이는 접합의 응용 가능성을 보여준 좋은 결과로 볼 수 있다.

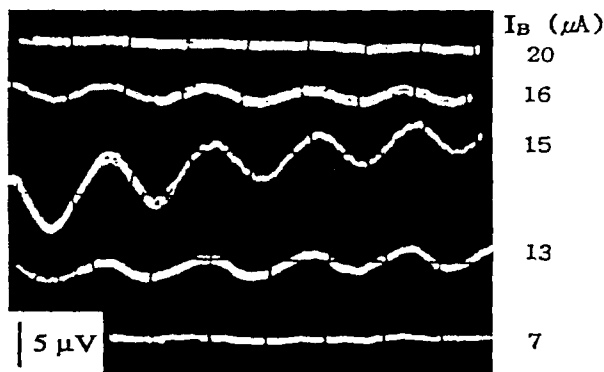


Fig. 6. The voltage modulation signals at various bias currents measured at 77 K.

4. 결 론

디지털 소자나 마이크로파 혼합기와 같이 고온초전도를 이용한 소자들은 대부분 조셉슨 접합을 필수적으로 사용하고 있다. 그러나 이들의 특성을 좋게 하기 위해서는 무엇보다도 양질의 초전도 박막과 양질의 접합의 특성이 요구된다. 본 연구에서는 SrTiO₃ 기판 위에 펄스 형태의 레이저 증착방법과 금속 마스크를 이용하여 *in-situ* YBa₂Cu₃O₇/SrTiO₃/YBa₂Cu₃O₇ ramp edge 형태의 접합을 제작하였다. TEM 실험 결과 접합에 사용된 박막은 에피택셜 성장을 하고 있었으며, 접합은 RSJ-like한 전류-전압 형태를 보였다. 접합의 normal state resistance는 온도변화에 거의 무관하게 약 18Ω의 일정한 값을 나타내었으며, 이는 일반적인 복결정 접합이나 step edge 접합에서 얻을 수 있는 저항값보다 상대적으로 큰 값을 얻었다. 따라서 SQUID 센서를 제작할 때 이러한 형태의 접합을 이용할 경우 flux noise를 낮추는데 유리하게 작용할 수 있을 것으로 생각된다. SQUID 센서의 전압 변조신호로부터 *in-situ*로 제작된 SIS ramp edge 형태의 접합이 잘 동작함을 볼 수 있었다.

참 고 문 헌

1. D. Grundler, J. -P. Krumme, B. David, and O. Dassel, Appl. Phys. Lett., **65**, 1841 (1994)
2. D. Koelle, A. H. Miklich, E. Dantsker, F. Ludwig, D. T. Nemeth, J. Clark, W. Ruby, and K. Char, Appl. Phys. Lett., **63**, 3630 (1993)
3. K. Lee, I. Iguchi, T. Ishibashi, K. Sato, H. Soutome, and M. Kawabe, IEEE Trans. on Appl. Supercond., **7**, 2300 (1997)
4. B. Oh, S. Moon, Y. Choi, and H. Kim, J. Kor. Phys. Soc., **28**, 645 (1995)
5. R. Gross, P. Chaudhari, M. Kawasaki, and A. Gupta, IEEE Trans. on Magn., **27**, 3227 (1991)
6. J. Gohng, E. Lee, I. Song, J. Sok, S. Park, J. Lee, and C. Y. Dosquet, IEEE Trans. on Appl. Supercond., **7**, 3694 (1997)
7. K. Herrmann, Y. Zhang, H. M. Mück, J. Schubert, W. Zander, and A. I. Braginski, Supercond. Sci. & Techn., **4**, 583 (1991)
8. S. -G. Lee, K. Park, H. C. Kwon, Y. K. Park, and J. -C. Park, IEEE Trans. on Appl. Supercond., **5**, 2509 (1995)
9. J. Gao, Y. Boguslavskii, B. B. Klopman, D. Terpstra, R. Wijbrans, G. J. Gerritsma, and H. Rogalla, Appl. Phys., **72**, 575 (1992)
10. M. A. J. Verhoeven, G. J. Gerritsma, and H. Rogalla, IEEE Trans. on Appl. Supercond., **5**, 2095 (1995)
11. M. I. Faley, U. Poppe, C. L. Jia, and K. Urban, IEEE Trans. on Appl. Supercond., **5**, 2091 (1995)

12. C. St lzel, M. Siegel, G. Adrian, C. Krimmer, J. Sllner, W. Wilkens, G. Schulz, and H. Adrian, Appl. Phys. Lett., **63**, 2970 (1993)
13. K. Char, M. S. Colclough, T. H. Geballe, and K. E. Myers, Appl. Phys. Lett., **62**, 196 (1993)
14. Y. Huh, Y. Hwang, J. -T. Kim, I. Kim, Y. Park, G. Park, Y. K. Park, and J. -C. Park, *Proceedings of the 6th International Superconductive Electronics Conference (ISEC'97)*, Berlin, Germany, June 25-28, 1997
15. S. -G. Lee, Y. Huh, G. Park, I. Kim, Y. K. Park, and J. -C. Park, IEEE Trans. on Appl. Supercond., **7**, 3347 (1997)
16. J. Clarke, "Superconducting Electronics", edited by H. Weinstock and M. Nisenoff, NATO ASI Series, **F59**, 87 (1989)
17. G. Koren, E. Aharoni, E. Polturak, and D. Cohen, Appl. Phys. Lett., **58**, 634 (1991)
18. G. Koren, E. Polturak, E. Aharoni, and D. Cohen, Appl. Phys. Lett., **59**, 2745 (1991)
19. G. Koren, D. Cohen, E. Polturak, and E. Aharoni, Appl. Phys. Lett., **59**, 3634 (1991)
20. A. Barone and G. Paterno, "Physics and Applications of the Josephson Effect", John Wiley & Sons, New York, 1982
21. R. Cantor, L. P. Lee, M. Teepe, V. Vinetskiy, and J. Longo, IEEE Trans. on Appl. Supercond., **5**, 2927 (1995)