

SrTiO₃ 기판 위에 계단형 모서리 제작 및 YBa₂Cu₃O_{7-δ} 계단형 모서리 접합의 특성 연구

남병창^{1),2)} · 김인선¹⁾ · 이순걸²⁾ · 박종철¹⁾ · 박용기¹⁾

¹⁾ 한국표준과학연구원 초전도그룹

²⁾ 고려대학교 물리학과

Study on the Fabrication of Step-edges on SrTiO₃ Substrates and the Characterization of YBa₂Cu₃O_{7-δ} step-edge Junctions

Byung-Chang Nam, In-Seon Kim, Soon-Gul Lee, * Jong-Chul Park and Yong Ki Park

Superconductivity group, Korea Research Institute of Standards and Science, P.O.Box 102, Yusong, Taejeon 305-600

*Dept. of Physics, Korea University, Jochiwon, Chungnam 339-800

(1998년 7월 8일 받음, 1998년 8월 20일 최종수정본 받음)

초 목 Ar 이온 식각법을 이용하여 (001) SrTiO₃(STO) 단결정 기판 위에 200 nm 높이의 계단형 모서리를 제작하였다. 계단각은 입사하는 Ar 이온 빔에 대한 Ar 이온 입사각과 마스크 회전각을 조절함으로써 38° ~ 70°의 넓은 범위로 제어할 수 있었다. 초전도 YBa₂Cu₃O_{7-δ} 박막은 계단이 있는 STO 기판 위에 펄스레이저 증착법을 이용하여 증착하였으며, 박막의 두께는 계단 높이에 대한 박막의 두께비가 0.5 ~ 1.2가 되도록 하였다. 계단형 모서리 조셉슨 접합의 임계전류밀도와 I_cR_n 값은 77 K에서 각각 10⁴ A/cm², 70-200 μV이었다.

Abstract We have fabricated 200 nm high step-edges on (001) SrTiO₃(STO) single crystalline substrates using Ar ion etching. The step angle could be controlled in the wide range from 38° to 70° by adjusting both the Ar ion incident angle and the mask rotation angle relative to the incident Ar ion beam. Superconducting YBa₂Cu₃O_{7-δ} thin films were deposited on stepped STO substrates by pulsed laser deposition and the film thickness was varied to obtain the ratio of film thickness to step height in the range from 0.5 to 1.2. Step-edge Josephson junctions exhibited critical current densities of 10⁴ A/cm² and I_cR_n products of 70-200 μV at 77 K.

1. 서 론

고온초전도체가 발견¹⁾된 이래로 여러 응용분야에 고온초전도체를 이용하려는 연구가 이루어지고 있다. 미세한 자기장을 감지할 수 있는 자기센서인 초전도양자간섭소자(SQUID) 같은 전자공학적인 응용을 위해서는 양질의 초전도 박막과 재현성있는 조셉슨 접합(Josephson junction)이 필수 요건이다. 조셉슨 접합은 두 개의 초전도체가 극히 얇은(수 nm 이하) 절연층을 사이에 두고 연결되어있는 구조로 되어 있으며, 이러한 접합에서 일어나는 초전도 특유의 효과를 조셉슨 효과²⁾라 한다. 복합산화물인 고온초전도체의 경우 재료적 특성으로 인해 입계 접합 연구가 주로 이루어지고 있다. 입계 접합은 제작 방법에 따라 복결정 접합,³⁾ bi-epitaxial 접합,⁴⁾ 계단형 모서리 접합 등으로 나눌 수 있는데, 복결정 접합은 IBM에서 처음 시도되었으며,³⁾ 조셉슨 접합 중 가장 좋은 접합 특성을 가지고 있으나 접합 위치를 임의로 선정할 수 없어 집적화 및 회로응용에는 적합하지 않다는 단점을 지니고 있다. Bi-epitaxial 접합은 접합의 위치 선정이 자유롭다는 장점으로 초기에 많은 연구가 있었으나 접합의 임계변수 조절의 어려움과 함께 제작과정

이 매우 복잡한 단점이 있다. R. W. Simon⁵⁾ 등에 의해 처음 보고된 계단형 모서리 접합은 다른 접합에 비해 매우 간단한 제작과정, 접합 위치의 융통성, 낮은 비용 그리고 낮은 $1/f$ 잡음⁶⁾ 등 여러 가지 장점으로 인해 여러 그룹에서 꾸준히 연구가 행해져오고 있으나, 접합의 재현성이 아직까지는 미약한 상태이다. 접합 특성이 계단각 및 계단형 모서리의 미세구조에 주로 좌우되므로 재현성 향상을 위해서 그 부분에 대한 체계적인 연구가 필요하다.

C. L. Jia⁷⁾ 등은 투과전자현미경(TEM)을 이용하여 계단형 모서리 위에 성장한 초전도 박막의 미세구조를 분석하였는데, 분석결과 높은 각도의 계단이 있는 기판 위에 제작한 계단형 모서리 접합은 계단형 모서리 윗부분과 아랫부분에 두 개의 입계로 구성되어 있다고 보고하였다. M. Gustafsson⁸⁾ 등은 계단형 모서리 접합의 입계 형성의 원인을 박막의 핵생성 확률과 최소 표면에너지로 해석하였다. 계단형 모서리 접합의 특성은 계단 높이에 대한 초전도 박막의 두께비에 의존하며, 보통 그 비율은 0.5-1 사이로 알려져 있다. 두께비가 0.5보다 작을 때는 접합부분에서 박막의 연결이 이루어지지 않을 확률이 높고, 두께비가 1보다 클 때에는 박막이 전체적으로 epitaxial하게 성장하게 되어 접합

특성이 나타나지 않는다.⁹⁾ J. Luine¹⁰⁾ 등은 박막 증착 방향을 중요한 변수로 고려하였는데, 박막을 계단면에 평행하게 증착하여 접합의 임계전류 폭을 줄일 수 있다고 보고하였다.

일반적으로 고품질의 고온초전도 박막을 증착시킬 수 있는 기판재질로서는 (001) SrTiO₃(STO) 단결정 기판을 주로 사용하며, 이 기판 위에 주로 Ar 이온 식각법으로 계단형 모서리를 제작한다. Ar 이온 식각법¹¹⁾은 화학적 식각, 플라즈마 및 스퍼터링법에 의한 식각 등과 비교할 때 동시에 여러 가지 물질을 식각할 수 있고 식각된 면을 다양하게 조절할 수 있는 등 많은 장점으로 인해 오래전부터 반도체 소자 제작에 이용되었다. Ar 이온 식각 과정에서 사용되는 마스크는 보통 photoresist (PR),¹²⁾ 금속 박막 (Nb, Al),¹³⁾ 다이아몬드형 탄소 박막,¹⁴⁾ 비정질 탄소 박막¹⁵⁾ 등이 있다. Nb 금속마스크는 완전히 제거가 되지 않고, 잔류성분이 고온초전도체와 반응을 일으켜 접합 특성이 저하되기 쉽다. 다이아몬드형 탄소 박막은 박막 증착시 특별한 증착 기법이 요구되며, 비정질 탄소 박막도 계단형 모서리 제작과정이 다소 복잡하다. 이에 비해 단순히 PR을 마스크로 쓰는 경우에는 제작과정이 매우 간단한 장점이 있다.

본 연구에서는 저 에너지 Ar 이온 식각법으로 STO 단결정 기판 위에 계단형 모서리를 제작하고, 계단각을 자유로이 제어할 수 있는 조건을 조사하였다. 또한 계단이 있는 STO 기판 위에 펄스레이저 증착법을 이용하여 YBa₂Cu₃O_{7-x}(YBCO) 박막을 증착하여 계단형 모서리 조셉슨 접합을 제작하고 그 특성을 분석하였다.

2. 실험 방법

계단형 모서리를 제작하기 위해서 우선 4×4×0.5 mm³ 크기의 STO 기판 위에 rf 마그네트론 스퍼터링 증착법 (rf power=30 W, Ar 압력=30 mtorr)을 이용하여 Au 박막을 약 200 Å 정도로 얇게 증착하였다. Au 증착후 PR (AZ 5214E)을 스핀 코팅으로 기판 위에 입혔다. STO 기판 위에 계단형 모서리의 식각은 저 에너지 Ar 이온 식각법 (빔 전압=350 V, 빔 전류밀도=0.24 A/cm²)을 이용하였다. 식각 중 기판의 이상 가열을 방지하기 위해 기판을 홀더에 은 접착제로 부착하였으며, 10초 식각-15초 휴지 과정을 반복하였다. Ar 이온 식각 장치의 기본 진공도는 1.1×10⁻⁶ torr이며 식각시 Ar 이온을 2.6 sccm으로 흘리면서 챔버 내부 압력은 1.1×10⁻⁴ torr로 일정하게 유지하였다. STO 기판의 식각률은 분당 약 80 Å이며 식각후 Au는 KI+I (15%) 수용액을 이용하여 제거하였다.⁹⁾ 이렇게 제작한 계단의 높이는 1500-3000 Å 이었으며, 높이 측정은 optical interferometer (Nikon HFX-DX)와 surface profiler (Sloan Dektak³)를 이용하였다.

그림 1은 YBCO 계단형 모서리 접합 제작과정의 개략도이다. 초전도 YBCO 박막은 펄스레이저 증착법 (KrF 엑시머 레이저, 파장 248 nm)을 이용하여 증착하였다. 박막 증착시 산소압력은 400 mtorr, 증착온도는 810°C, 레이저 에너지밀도는 1.17 J/cm², 펄스 반복률은 3 Hz이며 증착

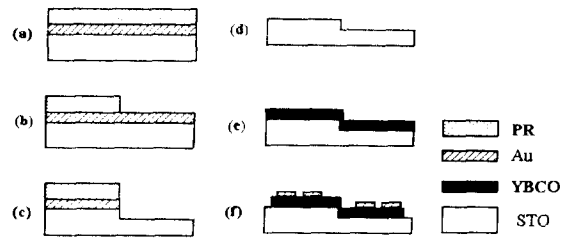
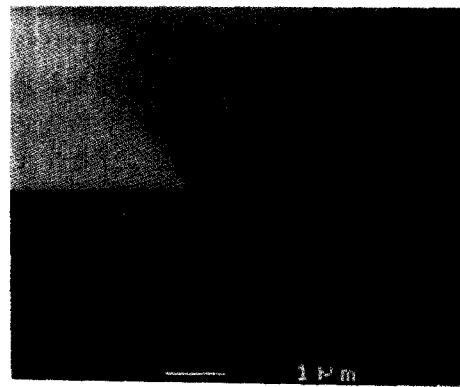
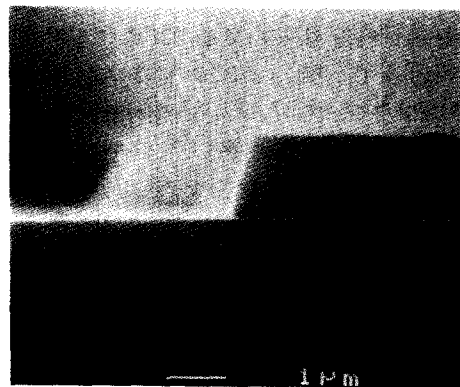


Fig. 1. Fabrication process of YBCO step-edge junction : (a) Au deposition and PR coating, (b) PR patterning, (c) after Ar ion etching, (d) step-edges on STO, (e) YBCO deposition, (f) microbridge patterning and Au pad deposition.



(a)



(b)

Fig. 2. SEM cross-sectional images of patterned photoresist on STO substrates (a) without and (b) with Au film before photoresist coating.

후 산소 1 기압 하에서 500°C까지 온도를 내려서 1 시간 동안 열처리하였다. 이러한 조건에서 c-축으로 epitaxial 하게 성장한 YBCO 박막의 초전도 특성은 $T_c \geq 90$ K, $J_c \geq 4 \times 10^6$ A/cm²이었다.¹⁶⁾ YBCO 박막은 계단 높이에 대한 박막의 두께비가 0.5-1.2가 되도록 증착하였고 계단형 모서리 접합의 폭은 3, 5, 10 μm이었다. 전극의 패드는 rf 마그네트론 스퍼터링 증착법으로 Au 박막을 1500 Å 두께로 증착하고 lift-off법으로 패터닝하였다. Au 패드 형성후 다시 산소 1 기압 하에서 500°C까지 온도를 내려서 1 시간 동안 열처리하여 계단형 모서리 접합 제작을 완성하였

으며, 4 단자법을 이용하여 접합의 임계온도 및 전기적인 특성을 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

그림 2는 PR을 입히기 전에 (a) Au 박막을 증착하지 않았을 때와 (b) 증착했을 때의 STO 기판 위에 패터닝된 PR의 SEM 단면 사진이다. 이 Au 박막은 UV 노광시 전 반사를 일으키므로 UV광이 STO 기판을 투과하면서 일으키는 광간섭을 차단시킬 목적으로 증착하였다.⁹⁾ 그림 2에서 알 수 있듯이 Au 박막을 증착했을 때가 경사가 매우 가파르며 따라서 식각시 계단각 조절이 더욱 용이함을 알 수 있다.

그림 3은 (a) Ar 이온 입사각 (θ)과 (b) 마스크 회전각 (ϕ) 그리고 (c) 계단각을 나타낸 것이다. Ar 이온 입사각은 기판의 수직면에 대한 Ar 이온의 입사방향을 의미하며 마스크 회전각은 기판을 기판중심으로부터 회전시킨 각도인데, Ar 이온 빔에 대해 PR의 그림자 부분이 생기도록 의도한 것으로서 이 논문에서 편의상 마스크 회전각이라 하였다. 두 각을 동시에 고려하지 않을 경우 식각시 높은 계단각을 얻기 힘들고 기판의 재증착 현상이 일어나기 쉽다. 계단 윗부분에 생기는 기판의 재증착 현상은 YBCO 박막의 epitaxial한 성장을 저해하고 계단 아랫면을 둥글게 해서 그 부분에 입계의 형성을 어렵게 한다. 계단각은 두 개의 평행한 기판면을 연결하는 계단의 경사각을 의미하며, 두 개의 입계는 계단형 모서리 부분에 직렬로 형성된다.

그림 4는 Ar 이온 입사각 (θ)을 30° 로 고정시키고 마스크 회전각 (ϕ)을 0° , 90° , 270° 로 변화시켜 식각한 STO 기판 위에 계단형 모서리의 SEM 단면 사진이다. 그림 4에서 알 수 있듯이 마스크 회전각이 90° 일 때 예리하고 굴곡이 없는 38° 정도의 계단각을 얻을 수 있었으며, $\phi = 0^\circ$, 270° 에서는 계단형 모서리 부분에 STO 입자들이 재증착되어 찌꺼기 형상으로 붙어있는 것을 알 수 있다. $\phi = 0^\circ$

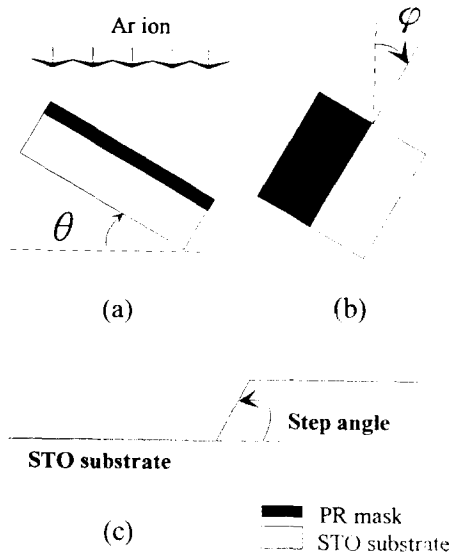


Fig. 3. Schematic illustration of (a) Ar ion incident angle(θ), (b) mask rotation angle(ϕ) and (c) step angle.

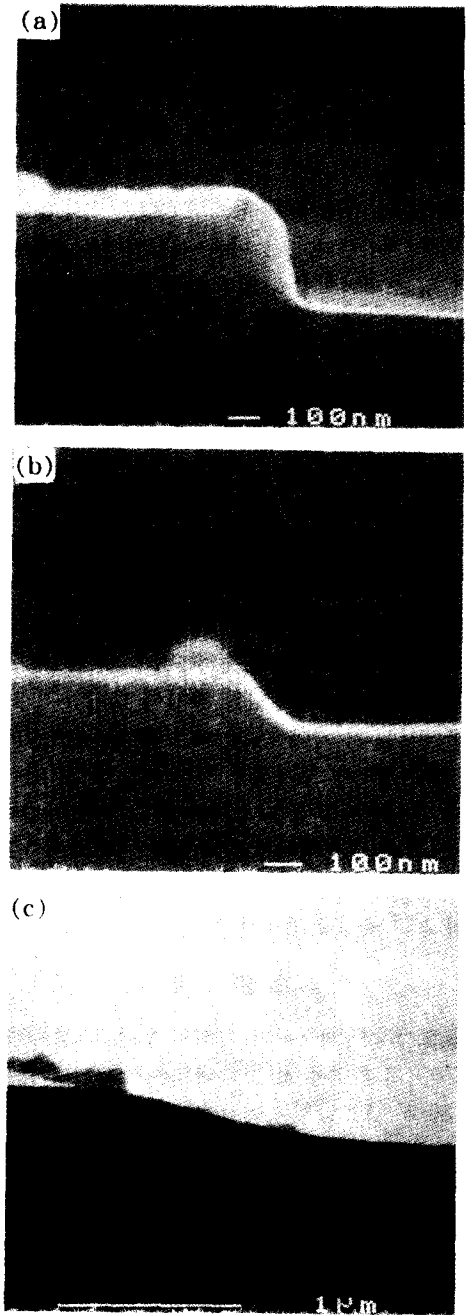


Fig. 4. SEM cross-sectional images of etched step-edges on STO substrates with Ar ion incident angle (θ) = 30° , mask rotation angle(ϕ) = (a) 0° , (b) 90° , (c) 270° .

일 때가 270° 에 비해 계단각이 매우 가파르다는 사실에서 재증착을 없애고 비교적 높은 계단각을 얻기 위한 마스크 회전각은 $0^\circ < \phi < 90^\circ$ 의 범위내에서 이루어져야 함을 알 수 있다. Ar 이온 입사각이 너무 클 경우 높은 계단각을 얻기 힘들며 $\theta = 0^\circ$ 일 경우에는 매우 낮은 식각률로 인한 thermal stress로 계단선이 꾸불꾸불해져 균일한 입계전류 분포를 갖는 계단형 모서리 접합을 제작하기 어렵다고 알려져 있다.¹⁴⁾

그림 5는 Ar 이온 입사각 (θ)을 15° 로 고정시키고 마스크 회전각 (ϕ)을 30° , 45° , 60° , 90° 로 변화시켜 식각한

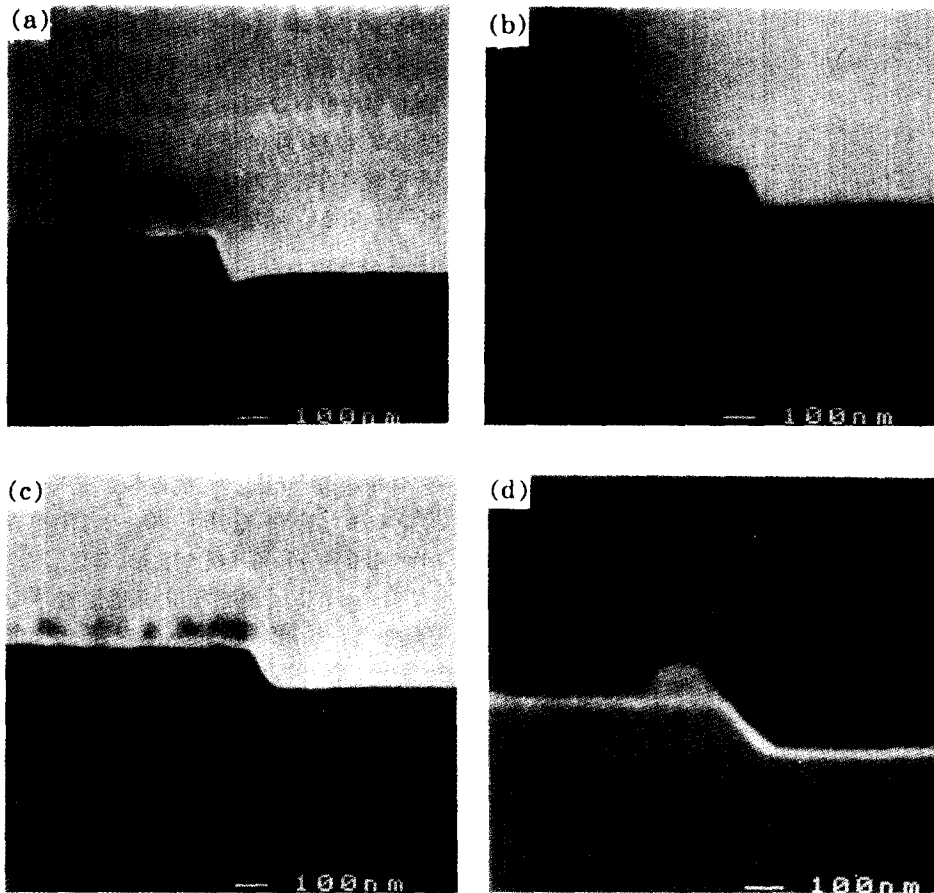


Fig. 5. SEM cross-sectional images of etched step-edges on STO substrates with Ar ion incident angle (θ) = 15°, mask rotation angle (ϕ) = (a) 30°, (b) 45°, (c) 60°, (d) 90°.

STO 기판 위에 계단형 모서리의 SEM 사진이다. 이때 얻어진 계단각은 각각 65°, 60°, 55°, 45°로 마스크 회전각이 증가함에 따라 계단각은 낮아짐을 알 수 있다. 또한 $\theta = 30^\circ$ 로 고정시키고 $\phi = 30^\circ, 45^\circ, 60^\circ, 90^\circ$ 로 변화시켰을 때의 계단각은 약간씩 낮아 각각 60°, 52°, 45°, 38°였다.

그림 6은 Ar 이온 입사각 (θ) 과 마스크 회전각 (ϕ) 에 대한 계단각의 의존성을 나타낸 것이다. 그림 6에서 알 수 있듯이 Ar 이온 식각법에 의한 STO 기판 위에 계단형 모서리 제작에 있어서 계단각의 제어는 주로 마스크 회전각을 조절함으로써 이루어질 수 있다. 또한 Ar 이온 입사각이 작을수록 계단각의 변화는 높은 각에서 일어남을 알 수 있다. 계단각 제어에 대한 결과는 경사형 모서리 접합, superconductor-insulator-superconductor (SIS) edge 접합 등 다른 고온초전도 접합의 제작에도 응용될 수 있다.

일반적으로 45° 근처의 계단각에서는 다양한 입계가 형성되어 접합의 임계전류밀도가 매우 낮아지며 불규칙한 전류-전압 곡선을 보인다¹²⁾고 알려져 있다. 우선 본 실험에서는 60°와 65°의 충분히 높은 계단각을 갖도록 STO 기판 위에 계단형 모서리를 제작하고 계단 높이 (h) 에 대한 박막의 두께 (t) 비가 $t/h=0.6-1.2$ 가 되도록 YBCO 박막을 증착하여 계단형 모서리 접합을 제작하였다. 접합의 임

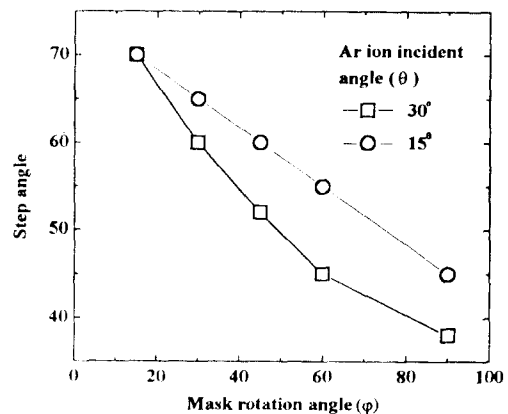


Fig. 6. Dependence of step angles on Ar ion incident angle (θ) = 15°, 30° and mask rotation angle (ϕ) = 30°, 45°, 60°, 90°.

계전류밀도는 10^4-10^5 A/cm² 사이의 값을 가졌으나 불규칙한 분포를 보여 t/h 에 대한 의존성을 찾기가 어려웠다. 아마도 60°와 65°의 계단각에서 입계가 균일하게 형성되지 않았다고 생각된다. 더 높은 계단각을 얻기 위해 $\theta = 30^\circ, 15^\circ, \phi = 15^\circ$ 조건으로 STO 기판 위에 계단형 모서리를 식각하였으며 SEM 사진 결과로 얻어진 계단각은 약 70° 정도였다.

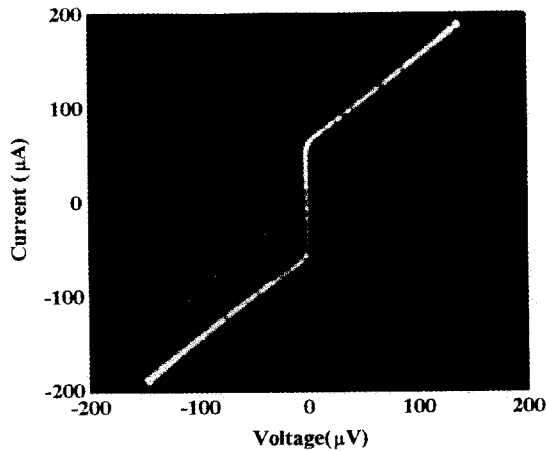


Fig. 7. Typical current-voltage characteristics of 3 μm wide YBCO step-edge Josephson junction(step angle = 70° , $t/h = 0.67$).

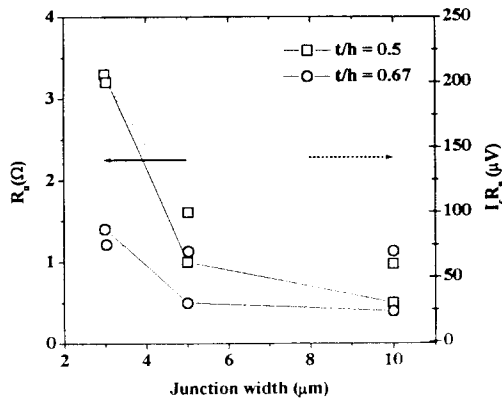


Fig. 8. IR_n and R_n values for step-edge junctions with variations of the junction width and the ratio of film thickness to step height(t/h).

그림 7은 접합 폭 $3 \mu\text{m}$ 인 YBCO 계단형 모서리 조셉슨 접합의 전형적인 전류-전압 특성을 나타낸 것이다(계단각 $=70^\circ$, $t/h=2/3$). 접합의 임계온도는 87 K 으로 박막의 임계온도보다 약 3 K 낮은 값을 가졌으며 77 K 에서 접합의 I_c 와 R_n 값은 각각 $50 \mu\text{A}$, 1.5Ω 이고 임계전류밀도는 10^4 A/cm^2 이었다. 전류-전압 곡선은 RSJ 모델^{17,18)}을 잘 따랐으며, 임계전류 근처에서는 높은 온도에 따른 thermal rounding이 나타났다.¹⁹⁾

그림 8은 접합 폭과 계단 높이에 대한 박막의 두께비(t/h)의 변화에 따른 계단형 모서리 접합의 IR_n 과 R_n 값을 나타낸 것이다. 접합 폭은 $3 \mu\text{m}$, $5 \mu\text{m}$ 및 $10 \mu\text{m}$ 로 세 종류로 제작하였으며 계단 높이에 대한 박막의 두께비(t/h)는 0.5 , 0.67 이다. 접합의 임계온도는 $83\text{--}87 \text{ K}$ 의 값을 가졌으며, 임계전류밀도는 $1 \times 10^4\text{--}1.6 \times 10^4 \text{ A/cm}^2$ 이었다. R_n 값은 전류-전압 곡선이 일정한 기울기일 때 측정했으며 접합 폭이 작아짐에 따라 R_n 값은 커짐을 알 수 있다. IR_n 값은 $70\text{--}200 \mu\text{A}$ 의 값을 가졌으며 특히 두께비가 0.5 인 접합의 접합 폭에 따른 IR_n 값의 차이는 접합의 불균일한 전류분포에 의한 결과라고 생각된다. 계단 높이에 대한 박막의 두께비에 따라 접합의 R_n 및 IR_n 값은 차이를 보였으며

따라서 접합의 임계변수를 조절에 있어서 두께비가 중요한 인자임을 알 수 있었다. 조셉슨 접합을 이용하는 초전도 전자소자로 응용하기 위해서는 접합 특성의 재현성(I_c , R_n 과 같은 임계변수 조절)이 해결해야 할 가장 중요한 과제이다. 앞으로 계단각과 계단 높이에 대한 박막의 두께비를 다양하게 변화시키면서 계단형 모서리 접합의 재현성 향상을 위한 연구를 수행할 예정이다.

4. 결 론

본 연구에서는 Ar 이온 식각법을 이용하여 STO 기판 위에 계단형 모서리를 제작하였고 계단의 형상을 제어하는 방법을 조사하여 보았다. Ar 이온 입사각과 마스크 회전각을 적절히 조절하여 계단 윗부분에 생기는 기판의 재증착 현상을 억제할 수 있었으며, 예리하고 굴곡이 없는 계단각을 다양하게 제어할 수 있었다. 계단각 70° 인 YBCO 계단형 모서리 접합은 77 K 에서 양호한 조셉슨 접합 특성을 보였으며, 전류-전압 곡선은 RSJ 모델을 잘 따랐다. 접합의 임계온도는 $83\text{--}87 \text{ K}$, 임계전류는 접합 폭에 따라 $70\text{--}200 \mu\text{A}$ 이었다. 접합의 IR_n 값과 R_n 값은 계단 높이에 대한 박막의 두께비($t/h = 0.5, 0.67$)에 따라 다른 값을 가졌으며 두께비가 낮을수록 더 높은 값을 가졌다.

감사의 글

본 연구는 과학기술처 특정연구과제 연구비 지원으로 수행되었으며, 저자는 SEM 촬영에 열성적으로 임해주신 한국표준과학연구원 전기연구실의 박 종완씨께 감사드립니다. 또한 저자 중 이 순걸은 교육부의 학술연구조성비 지원 사업을 통한 지원에 감사드립니다.

참 고 문 헌

1. J. G. Bednorz and K. A. Müller, Z. Phys. **B64**, 189 (1986).
2. B. D. Josephson, Phys. Lett. **1**, 251 (1962).
3. D. Dimos, P. Chaudhari, J. Mannhart, and F. K. LeGoues, Phys. Rev. Lett. **61**, 219 (1988).
4. K. Char, M. S. Coclough, S. M. Garrison, N. Newman, and G. Zaharchuk, Appl. Phys. Lett. **59**, 733 (1991).
5. R. W. Simon, J. F. Burgh, K. P. Daly, W. D. Dozier, R. Hu, A. E. Lee, J. A. Luine, H. M. Manasevit, C. E. Platt, S. M. Schwarzbeck, D. St. John, M. S. Wire, and M. J. Zani, Science and Technology of Thin Film Superconductors **2**, 549, edited by R. D. McConnel and R. Noufi, Plenum Press, New York, (1990).
6. G. Fridle, M. Vildic, B. Roas, D. Uhl, F. B. mmel, M. R. mheld, B. Hillenbrand, B. Stritzker, and G. Daalmans, Appl. Phys. Lett. **60**, 3048 (1992).
7. C. L. Jia, B. Kabius, K. Urban, K. Herrmann, G. J. Cui, J. Schubert, W. Zander, A. I. Braginski, and C.

- Heiden, *Physica C* **175**, 545 (1991).
8. M. Gustafsson, E. Olsson, H. R. Yi, D. Winkler, and T. Claeson, *Appl. Phys. Lett.* **70**, 2903 (1997).
 9. A. I. Braginski, *SQUID Sensors : Fundamentals, Fabrication and Applications*, 244, edited by H. Weinstock, Kluwer Academic Publishers, Netherlands, (1996).
 10. J. Luine, J. Bulman, J. Burch, K. Daly, A. Lee, C. Pettiette-Hall, D. Miller, S. Schwarzbek, *Appl. Phys. Lett.* **61**, 1128 (1992).
 11. R. E. Lee, *J. Vac. Sci. Technol.* **16**, 164 (1979).
 12. F. Schmidl, L. Alff, R. Gross, K. D. Husemann, H. Schneidewind, and P. Seidel, *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **3**, 2349 (1993).
 13. K. Herrmann, C. L. Jia, B. Kabius, K. Urban, G. Kuntel, M. Siegel, J. Schubert, W. Zander, and A. I. Braginski, *J. Appl. Phys.* **78**, 1131 (1995).
 14. J. Z. Sun, W. J. Gallagher, A. C. Callegari, V. Foglietti, and R. H. Koch, *Appl. Phys. Lett.* **63**, 1561 (1993).
 15. H. R. Yi, Z. G. Ivanov, D. Winkler, Y. M. Zhang, H. Olin, P. Larsson, and T. Claeson, *Appl. Phys. Lett.* **65**, 1177 (1994).
 16. 임해용, 김인선, 김동호, 박용기, 박종철, *새물리*, **38**, 109 (1998).
 17. D. E. McCumber, *J. Appl. Phys.* **39**, 3113 (1968).
 18. W. C. Stewart, *Appl. Phys. Lett.* **12**, 277 (1968).