

고온 초전도 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 계단형 모서리 접합의 이중접합 특성

황준식* · 성진용 · 강광용 · 윤순길* · 이광렬**

한국전자통신연구원

*충남대학교 재료공학과

**한국과학기술연구원 박막기술연구센터

Characteristics of Double-junction of High- T_c Superconducting $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ Step-edge Junctions

Jun-Sik Hwang*, Gun Yong Sung, Kwang-Yong Kang,

Soon-Gil Yoon* and Kwang-Ryeol Lee**

Electronics and Telecommunications Research Institute, P.O.Box 106, Yusong, Taejeon 305-600

*Department of Materials Engineering, Chungnam National University Daeduk Science Town, Taejeon 305-764

**Thin Film Research Center, Korea Institute of Science and Technology, P.O.Box 131, Cheongryang, Seoul 130-650

(1998년 10월 10일 받음, 1998년 11월 27일 최종수정본 받음)

초 록 (001) $SrTiO_3$ (STO) 기판위에 고온초전도 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ (YBCO) 박막을 이용한 계단형 모서리 입계접합을 제조하였다. STO (100) 단결정 기판위에 계단형 모서리 (step-edge)를 제작하기 위한 이온밀링 마스크로 plasma enhanced chemical vapor deposition 방법으로 증착된 diamond-like carbon (DLC) 박막을 사용하였고, oxygen reactive ion etch 방법으로 전식 식각하였다. 이렇게 제작된 계단형 모서리 기판위에 c-축 수직인 YBCO 박막과 STO 박막을 pulsed laser deposition 방법으로 에 피택설하게 증착하였다. 계단의 상층과 하층에서 모두 입계가 형성되었으며 이 접합의 임계온도는 77 K 이상이었으며 16 K에서 I_cR_n products가 7.5 mV, 77 K에서 0.3 mV의 값을 나타내었다. 이들 접합의 전류-전압 특성은 two noisy resistively shunted Josephson junctions 모델을 잘 만족하였다.

Abstract We have fabricated high- T_c superconducting $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ (YBCO) grain boundary junctions at a step-edge on (001) $SrTiO_3$ (STO) substrates. A diamond-like carbon (DLC) film grown by plasma enhanced chemical vapor deposition were used as an ion milling mask to make steps on the STO (100) single crystal and was removed by an oxygen reactive ion etch process. The c-axis oriented YBCO and STO thin films were deposited epitaxially on the STO substrate with a step-edge by pulsed laser deposition. The grain boundary junctions were formed at the top and the bottom of the step. The junctions worked at temperatures above 77 K, and had I_cR_n products of 7.5 mV at 16 K and 0.3 mV at 77 K, respectively. The I-V characteristics of these junctions showed the shape of the two noisy resistively shunted junction model.

1. 서 론

고온초전도 박막을 이용한 조셉슨 접합은 입계접합^{1,2)}과 Superconductor - Normal conductor - Superconductor (SNS) 접합³⁾으로 나눌 수 있는데, 입계접합의 경우 복결정 (bi-crystal) 입계접합, 다결정 입계접합, bi-epitaxials 입계접합, 그리고 계단형 모서리 (step-edge) 접합 등이 있고, SNS 접합의 경우에는 장벽 물질을 비초전도체나 임계온도가 낮은 초전도 물질을 사용하고 있다.

이러한 조셉슨 접합 중에서 집적화하기 쉽고, 그 특성 또한 우수한 계단형 모서리 접합에서 가장 중요한 인자는 계단의 각도이다. 일반적으로 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ (YBCO) 박막은 $LaAlO_3$ 와 $SrTiO_3$ 기판위에 c-축 배향성을 갖고 성장하는데, 계단의 각도는 접합의 특성을 크게 좌우한다. 계단의 각도가 40° 이상일 경우에는 경사면에서 a-축 수직인

YBCO 박막이 성장하게 되고, 계단의 각도가 40° 이하일 경우에는 경사면에서 c-축 수직인 YBCO 박막이 성장하게 된다. 계단의 각도가 45° 일 경우에는 여러 가지의 입계가 형성되게 되는데 이러한 이유로 접합의 전류-전압 (I-V) 특성을 보면 일반적인 저항 특성이 아니고 여러 개의 입계에 의한 이력 특성이나 kink 등의 특성이 나타남을 알 수 있다. 계단의 각도가 60° 일 경우에는 상층과 하층에서 동일한 입계로 성장하는데 접합의 I-V 특성을 보면 이상적인 이중접합의 특성을 보이게 된다. 계단의 각도가 70° 이상이 되면 상층의 입계와 하층의 입계는 다른 구조의 입계의 특성을 띄게 되고, 이러한 구조로 인하여 입계의 I-V 특성은 이중 접합 특성을 나타나게 된다. 또한 계단형 모서리 접합에서 형성된 입계의 구조적 특성을 보면 계단 경사면의 표면상태에 매우 큰 영향을 받게 되는데 경사면에서는 주로 결함이나 다른 상들이 존재한다.^{4,5)} 계단의 상층과 하층에

생기는 입계의 구조는 크게 두 가지로 나눌 수 있는데 symmetrical grain boundary (SGB)라 불리는 90° 입계와 basal plane faced tilted grain boundary (BPGB)로 불리는 기하학적인 균형이 다른 입계가 복잡하게 혼재되어 있음이 여러 논문에서 보고되었다.^{6,7)} 이상적인 계단형 모서리 접합은 상층과 하층에서 동일한 특성의 두 입계로 이루어진 이중접합 (double-junction) 이어야 한다. 이 접합은 상층과 하층의 계단 각도가 일치하고 계단의 경사면이 매우 평탄하여야 하고 입계전류와 I-V 특성도 유사하여야 한다.⁸⁾

본 연구에서는 고온초전도 디지털 전자소자에 활용 가능한 계단형 모서리 이중접합을 제작하고 계단과 접합의 구조와 이중접합의 전기적 특성을 측정하여 이중접합의 형성여부를 고찰하고 이중접합에서의 상층과 하층의 특성을 분리하여 각각의 접합특성을 비교하였다.

2. 실험 방법

계단형 모서리 접합 제작은 계단형 모서리 제작, YBCO 박막 증착, 그리고 마이크로 브리지의 패턴제작의 3단계 공정으로 이루어진다. 그림 1은 계단형 모서리의 제작공정을 나타낸다. STO (100) 기판 위에 이온 밀링 마스크로 사용하기 위하여, 3500 Å 두께의 Diamond-like Carbon (DLC) 박막을 Plasma Enhanced Chemical Vapor Deposition 방법으로 증착하였다. DLC 박막을 사용한 이유는 이온 밀링 마스크로 사용하기에 충분한 강도를 지니고 있으

며, 제거가 용이하기 때문이다.⁹⁾ DLC 박막의 Reactive Ion Etching (RIE) 마스크로 사용하기 위한 500 Å 두께의 Al 박막을 열증발법으로 증착하였다 [그림 1-(a)]. 계단형 모서리를 식각하기 위해 AZ5214E 감광제 (PR)를 사용하여 포토리소그래피 방법으로 현상한 후, Al 박막을 습식 식각하고 DLC 박막은 RIE로 건식 식각 하였다. 그림 2와 같이 이온 빔과 기관간의 입사각 및 비틀림 각을 변화시키면서 계단형 모서리의 형성조건을 조사하였다. 이온 밀링시 기관을 회전시키면서 냉각수로 냉각시켜 이온 빔에 의한 PR의 손상을 최소화하였다. 이온 밀링후 기관위에 남아있는 잔류 DLC 박막은 RIE 공정으로 제거하였다. 그림 2-(a)는 이온밀링의 입사 빔에 대한 각도가 기관에 수직하게 입사될 경우를 0° 로 하고 기울기를 입사각 α 라 정의하였다. 그림 2-(b)에서와 같이 입사 빔과 PR의 모서리 선간의 각도를 비틀림각 θ 라 정의하였고 모서리 선이 시계 방향으로 비틀린 것을 '+', 반시계 방향으로 비틀린 것을 '-'라 정의하였다.

이렇게 제작된 계단의 각도와 높이를 주사전자현미경 (scanning electron microscope, SEM)으로 관찰하였다. 계단형 모서리가 형성된 기관위에 XeCl 엑시머 레이저 (파장 : 308nm)를 사용하여 pulsed laser deposition (PLD) 방법으로 YBCO와 STO박막을 증착하였다.¹⁰⁾ 증착하는 동안 산소압력을 100 mTorr로 유지하면서 780°C 와 700°C 에서 증착하고 *in situ*방법으로 산소압 500 Torr, 470°C 에서 1시간 동안 열처리하였다. 계단형 모서리에 증착된 YBCO박막을 포토리소그래피와 이온 밀링 공정을 거쳐 마이크로 브리지를 제작하였으며, 금속전극으로는 Au를 사용하였고 lift-off 방법으로 식각하였다. 마이크로 브리지 제작후 산소압 500 Torr, 470°C 에서 2시간 동안 열처리하여 여러 공정중에 생긴 박막의 손상을 회복하였다. 이렇게 제작된 박막의 임계온도는 88 K 이상이고 접합의 임계온도는 77 K 이상이었다.

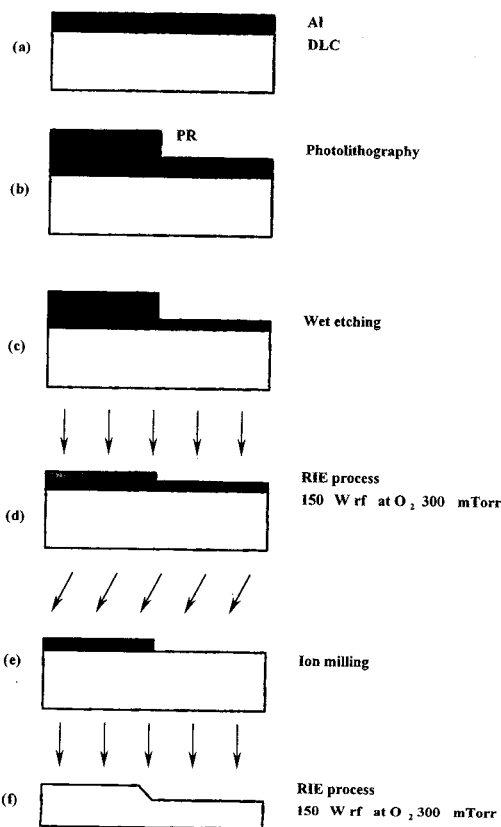


Fig. 1. Schematics of the step-edge fabrication process.

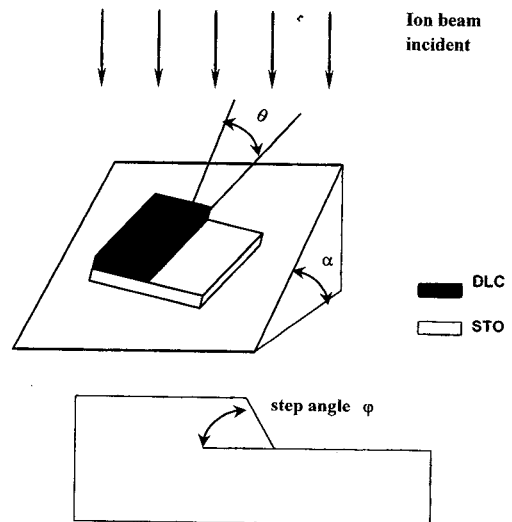


Fig. 2. Ion milling geometry of incident angle, α , mask twist angle, θ , and step angle, ϕ .

3. 결과 및 고찰

그림 3은 RIE에서 산소압 300 mTorr, 150 W rf에서 140, 150 그리고 160초 동안 식각한 시료의 단면 SEM 사진이다. 시간에 따라 DLC 박막이 undercut 됨을 볼 수 있고 상부의 PR이 무너짐을 알 수 있다. 기관위에 계단형 모서리 제작을 위한 이온 밀링시 입사각 α 가 작아질수록 이온밀링율이 낮아지는 특성을 보였다. 이는 기관에서 식각된 물질들이 다시 기관위에 재증착되어 밀링율이 감소되는 것으로 보여진다. 이온밀링의 입사각을 변화시키면서 실험한 결과를 그림 4에 나타내었는데, 각도가 증가할수록 식각율이 증가하다가 45° 이후 급격히 감소됨을 알 수 있다. 입사각이 60° 일 때는 기관에 충돌하는 이온들의 갯수가 현저하게 감소하기 때문에 이온 식각율이 급격히 감소한 것으로 보여진다.

이중접합을 제작하기 위해서는 계단의 각도가 50~60° 이어야 하며, 상층과 하층의 계단 각도가 일치하여야 한다. 또한 계단의 경사면이 매우 평탄하여야 결함이나 다른 상들이 생기는 것을 방지할 수 있다. 그림 5는 입사각을 45°

로 고정하고 θ 를 변화시키면서 이온 밀링한 계단형 모서리의 단면 SEM 사진이다. 그림 5-(a)는 $\alpha=45^\circ, \theta=-15^\circ$ 로 식각된 경우인데, 계단의 각도가 68°이고, 계단의 주변에 잔류 DLC가 관찰된다. 이 잔류 DLC는 RIE 공정으로 산소압 300 mTorr, 150 W rf의 조건으로 10분 동안 식각하면 완전히 제거되었다. 그림 5-(b)는 이온밀링 $\alpha=45^\circ, \theta=0^\circ$ 의 조건으로 이온밀링하였고, 계단의 각도는 83°이다. 그림 5-(c)는 이온밀링 $\alpha=45^\circ, \theta=15^\circ$ 로서 계단의 각도가 52°이고 계단의 경사면도 상당히 평탄한 것을 알 수 있다. 그림 5-(d)는 $\alpha=45^\circ, \theta=30^\circ$ 의 조건으로 이온밀링하였고, 계단의 각도가 45°이고 계단의 상층부에 잔류 DLC가 존재함을 알 수 있다. 이상적인 계단형 모서리 접합의 조건으로는 상층의 입계와 하층의 입계가 동일한 특성을 지녀야 하는데, 이를 위해서는 우선 계단형 모서리의 상층과 하층의 각도가 유사해야 한다. 그림 5-(c)는 이상적인 계단형 모서리 접합을 위한 상층과 하층의 각도가 거의 일치하고, 경사면이 상당히 평탄한 것을 알 수 있다. 그림 6-(a)와 (b)는 각각 계단형 모서리 접합의 2 μm 와 5 μm bridge의 SEM 사진이다. 그림 7-(a)는 계단형 모서리의

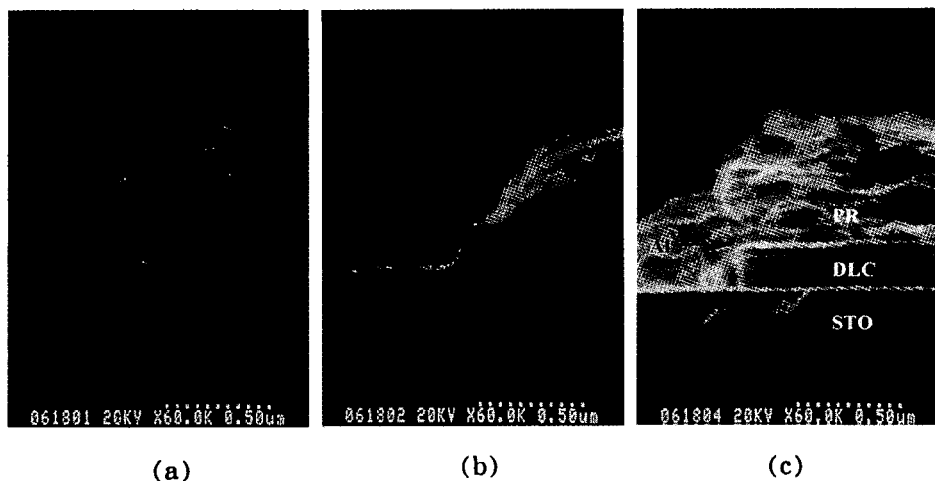


Fig. 3. Scanning electron micrographs of the cross section of the etched DLC and PR after RIE process with 150 W rf and 300 mTorr oxygen for (a) 140s, (b) 150s, and (c) 160s.

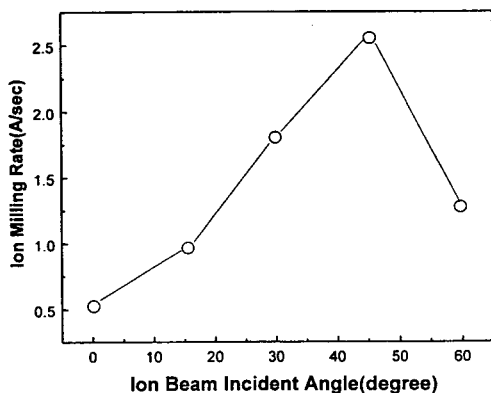


Fig. 4. Variation of the ion milling rate as a function of the ion beam incident angle.

상층과 하층에 생성된 입계의 구조에 대한 개략도이다.¹¹⁾ 상층의 입계는 대부분 SGB이고, 하층 입계는 대부분 BPGB로 이루어져 있다. Lombardi는 SGB의 임계전류밀도는 4.2 K에서 $\approx 7 \times 10^4 \text{ A/cm}^2$, 77 K에서 $\approx 5 \times 10^3 \text{ A/cm}^2$, 그리고 BPGB의 임계전류밀도는 4.2 K에서 $\approx 10^6 \text{ A/cm}^2$, 77 K에서 $\approx 7 \times 10^4 \text{ A/cm}^2$ 인 것으로 보고하였다.⁷⁾ 그림 8은 본 연구에서 제작된 계단형 모서리 조셉슨 접합을 16 K와 77 K에서 측정한 전류-전압 특성이다. 16 K에서 측정한 전류-전압 곡선을 보면 상전도 영역에서 곡선이 중간에 다시 휘어짐을 볼 수 있다. 이것은 계단형 모서리 접합에서만 볼 수 있는 상층 입계와 하층 입계간의 특성 차이에 기인한다고 보여진다. 77K에서 측정한 전류-전압 곡선은 resistively shunted junction (RSJ) 모델^{12, 13)}의 거동

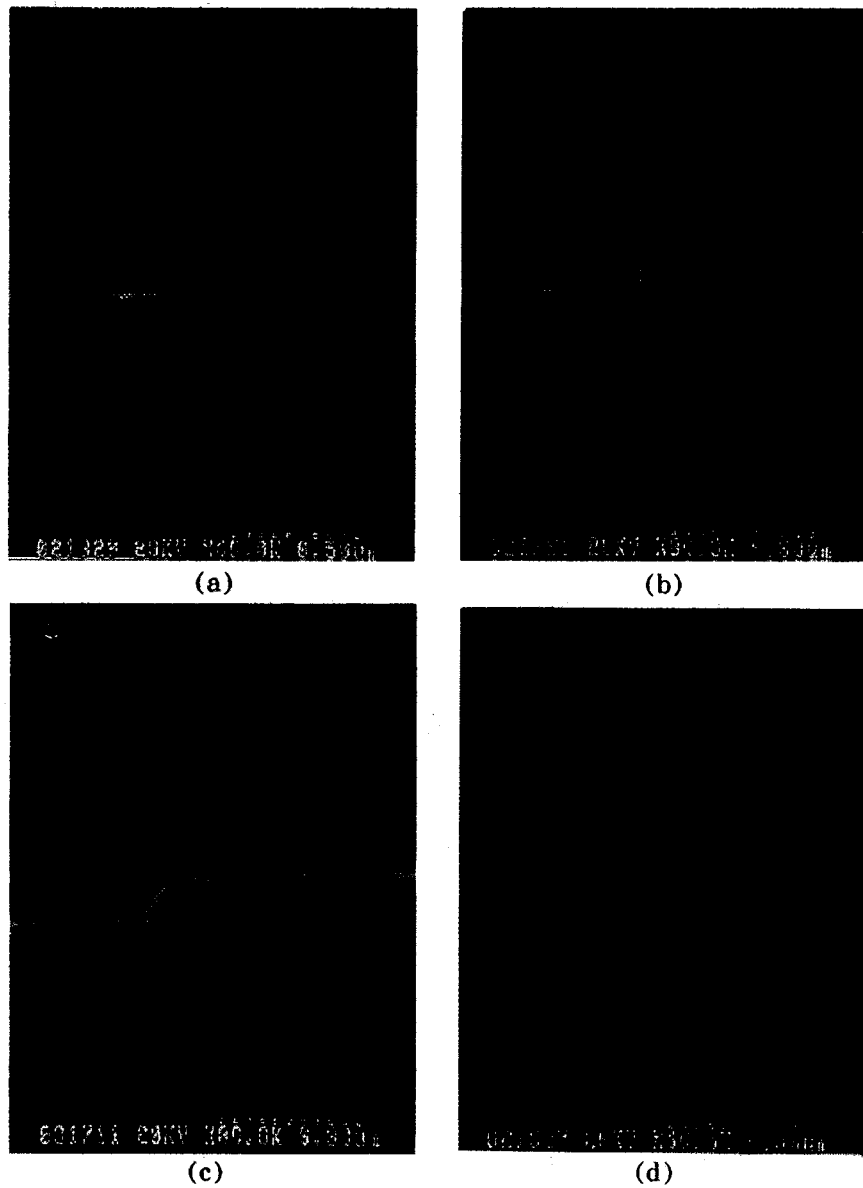


Fig. 5. Scanning electron micrographs of the cross section of the steps after ion milling with the geometry of (a) $\alpha=45^\circ$, $\theta=-15^\circ$, (b) $\alpha=45^\circ$, $\theta=0^\circ$, (c) $\alpha=45^\circ$, $\theta=15^\circ$, and (d) $\alpha=45^\circ$, $\theta=30^\circ$.

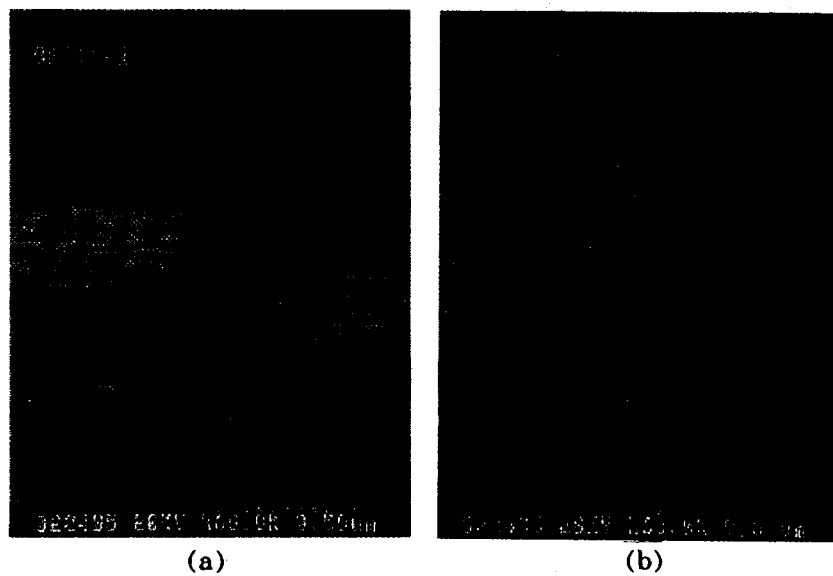


Fig. 6. Scanning electron micrographs of the step-edge junctions with the width of (a) $2 \mu\text{m}$, and (b) $5 \mu\text{m}$.

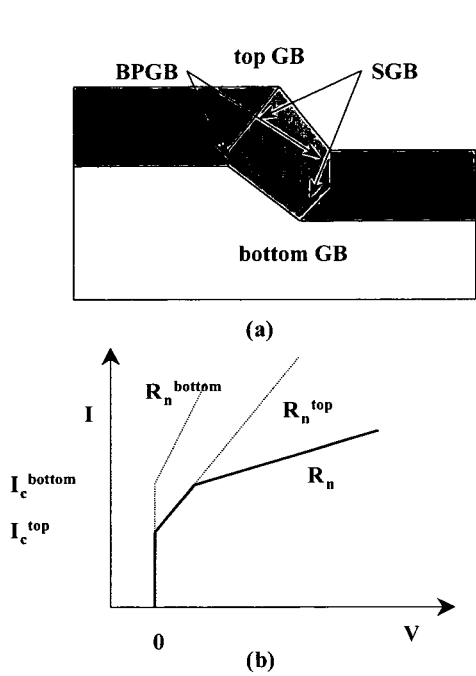


Fig. 7. (a) Schematic of the GBs formed at the step and (b) the I-V characteristics of the step-edge double junction.

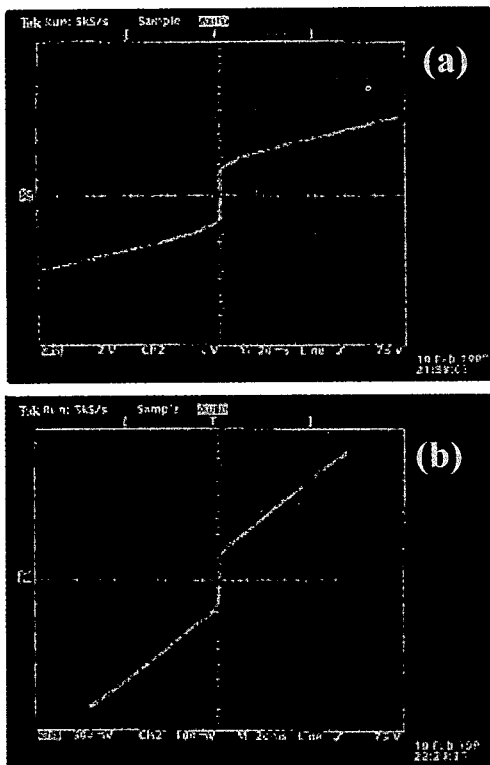


Fig. 8. I-V characteristics of the step-edge junction at (a) 16 K ($X=2$ mV/div., $Y=1$ mA/div.), and (b) 77 K ($X=0.2$ mV/div., $Y=0.05$ mA/div.).

이 보이고, 약간의 과잉전류가 관찰된다. Lombardi가 보고한 SGB와 BPGb의 임계전류밀도 값을 고려해보면 일반적으로 계단형 모서리 접합의 특성은 SGB의 그것임을 알 수 있다. 그러나 상층과 하층에 형성된 임계의 임계전류밀

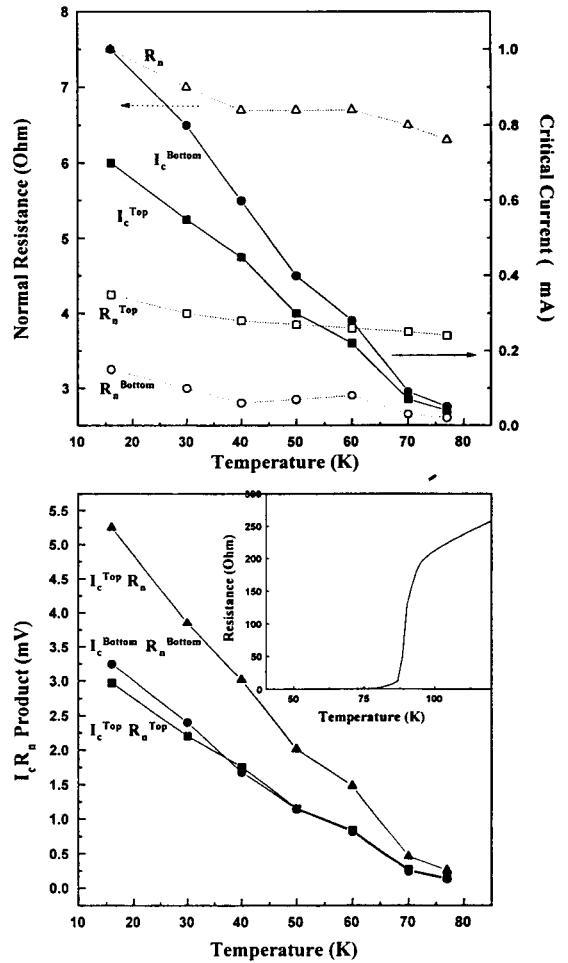


Fig. 9. Variation of (a) R_n and I_c , and (b) $I_c R_n$ of the step-edge double junctions as a function of temperature.

도와 정상 저항 값의 차이가 크지 않을 경우 두 입계의 특성이 혼재될 수 있다. 이러한 접합의 전류-전압 특성은 two noisy resistively shunted Josephson junctions 모델¹⁴⁾에 의해 상층의 접합 특성과 하층의 접합 특성으로 분리하여 그림 7-(b)에 도시하였다. 즉, 상층과 하층 입계의 전류-전압 특성을 합성하면 이중 접합의 전류-전압 특성이 얻어짐을 알 수 있다. 이러한 상층과 하층 그리고 이중접합 특성을 16 K와 77 K에서의 임계전류밀도, 정상저항, 그리고 $I_c R_n$ 을 표 1에 나타내었다.

이중 접합의 온도-저항 특성을 그림 9-(b) 안에 삽입하였다. 그림 9-(a)는 온도에 따른 정상 저항의 변화를 도시한 것이다. R_n^{top} 은 16 K에서 4.25 Ω 이고 온도에 따라 다소 감소함을 보이지만 그 차이는 크지 않고 R_n^{bottom} 은 16 K에서 3.25 Ω 이고 온도에 따른 감소가 상부에서의 정상 저항보다는 더욱 온도에 의존함을 알 수 있다. 접합의 정상 저항은 $R_n^{top} + R_n^{bottom}$ 이므로 16 K에서 7.5 Ω 이고 77 K에서는 6.3 Ω 으로 상당히 큰 저항을 가짐을 알 수 있다. 그림 9-(b)는 온도에 따른 상층과 하층 그리고 이중 접합의 $I_c R_n$ product이다. 여기서 보면 두 접합은 직렬로 연결된 것과 마찬가지로의 효과이다. 즉, 전류의 특성은 변함이 없이 저항만이 상부와 하부의 직렬연결의 효과를 볼 수 있다. 이상적

Table 1. Characteristics of the top, bottom, and double junctions.

	Top Junction		Bottom Junction		Double Junction	
	16 K	77 K	16 K	77 K	16 K	77 K
Critical Current Density, J_c (kA/cm ²)	220	12.5	310	15.6	220	12.5
Normal Resistance, R_n (Ohm)	4.25	3.7	3.25	2.6	7.5	6.3
$I_c R_n$ Product(μ V)	2980	148	3250	130	5250	252

인 이중접합은 상부와 하부의 임계전류와 저항이 같기 때문에 전류-전압 곡선에서 구별이 불가능하지만, 제조된 이중접합은 전류-전압 특성에서 상층과 하층간의 차이를 볼 수 있다.

4. 결 론

고온 초전도 YBCO 박막과 STO기판의 계단을 이용한 계단형 모서리 접합을 제작하였다. DLC박막을 이온빔 식각용 마스크로 사용하여 원하는 형태의 계단형 모서리를 얻었다. 제작된 계단형 모서리 접합은 상층과 하층에 모두 임계가 형성된 이중 접합으로 판명되었다. 이 접합의 임계온도는 77 K 이상이었고 액체 질소온도에서 약간의 열적 진동이 있지만 RSJ 거동을 보였다. 접합의 $I_c R_n$ 값은 16K 에서 7.5 mV, 77 K에서 0.3 mV이었다. 제작된 계단형 모서리 접합은 완전한 이상적인 이중접합은 아니지만 지금까지 보고되어진 문헌과 비교할 때 상층과 하층간의 접합 특성을 상당히 줄였다.

참 고 문 헌

1. D. Dimos, P. Chaudhari and J. Mannhart, Phys. Rev. B., **41**, 4038 (1990)
2. K. Char, M.S. Colclough, S.M. Garrison, N. Newman and G. Zaharchuk, Appl. Phys. Lett., **59**, 733 (1991)
3. R.H. Ono, J.A. Beall, M.W. Cromar, T.E. Harvey, M.E. Johansson, C.D. Reintsema and D.A. Rudman, Appl. Phys. Lett., **59**, 1126 (1991)
4. C.L. Jia, B. Kabius, K. Urban, K. Herrman, G.J. Schubert, W. Zander, A.I. Braginski and C. Heiden, Physica C **175**, 545 (1991)
5. C.L. Jia, B. Kabius, K. Urban, K. Herrman, G.J. Schubert, W. Zander and A.I. Braginski, Physica C **196**, 211 (1992)
6. M. Gustafsson, E. Olsson, H.R. Yi, D. Winkler, and T. Claeson, Appl. Phys. Lett., **70**, 2903 (1997)
7. F. Lombardi, Z.G. Ivanov, G.M. Fischer, E. Olsson and T. Claeson, Appl. Phys. Lett., **72**, 249 (1998)
8. C.P. Foley, G.J. Sloggett, K.H. Muller, S. Lam, N. Savvides and A. Katsaros, IEEE Trans. Appl. Supercond., **5**, 2805 (1995)
9. J.Z. Sun, W.J. Gallagher, A.C. Callegari, V. Foglietti and R.H. Koch, Appl. Phys. Lett., **63**, 1561 (1993)
10. G.Y. Sung and J.D. Suh, Appl. Phys. Lett., **67**, 1145 (1995)
11. K. Herrmann, G. Kunkel, M. Siegel, J. Schubert, W. Zander, A.I. Braginski, C.L. Jia, B. Kabius and K. Urban, J. Appl. Phys., **78**, 1131 (1995)
12. D.E. McCumber, J. Appl. Phys., **39**, 3113 (1968)
13. W.C. Stewart, Appl. Phys. Lett., **12**, 277 (1968)
14. J.A. Edwards, J.S. Satchell, N.G. Keen and O.D. Dosser, Appl. Phys. Lett., **60**, 2433 (1992)