

산화물 초전도 적외선 센서

■ 이상현 / 선문대학교 전자정보통신공학부 교수

1. 서 론

초전도현상이 발견된 이래 90년가량이 흘렀으나 초전도 기술을 상용화하기 위한 노력은 25년 밖에 지나지 않는다. 최근 천체관측, 고체의 격자진동에 관한 연구, 미생물의 온도변화 관측에 있어서 파장 $1\mu\text{m}$ 이상의 적외선 영역의 고감도 광 검출 소자의 출현이 요구되고 있다. 파장 $1\sim10\mu\text{m}$ 의 범위에서는 비교적 고감도의 소재로서 PbS, InSb, InAs, HgCdTe 등의 재료를 사용한 photo diode가 개발되어 $30\mu\text{m}$ 의 범위까지 응용되고 있다.

그러나, 본고에서는 $1\mu\text{m}$ 에서 마이크로파의 광범위한 파장영역에서 고감도이며, 빠른 응답속도가 기대될 수 있는 산화물 초전도체에 의한 광 검출 소자를 소개한다. 극도로 미약한 광을 검출하려면, 온도에 의한 잡음을 제거하여야 하며, 소자를 저온에서 냉각하여 측정하여야 한다. 산화물 초전도박막에 의한 적외선 검출 실험은 1975년부터 본격적으로 시도되었으며, 이때의 조성은 $\text{BaPb}_{1-x}\text{Bi}_x\text{O}_3$ (전이온도 $x=0.3$ 에서 $T_c=9\sim10\text{ K}$, 이하 BPBO로 명기한다.) 이 된다. 현재 고온 초전도 산화물의 발견으로 인하여 YBaCuO , BiSrCaCuO , TlBaCaCuO 등의 동 산화물계 박막 및 $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{BiO}_3$ (전이온도 $x=0.4$ 에서 $T_c=30\text{ K}$, 이하 BKBO로 명기) 박막에 의한 광 검출 소자가 국내는 물론 미국, 일본을 위주로 각국의 대학 및 초전도 관련 국가 연구기관을 중심으로 본격적으로 연구되고 있다.

2. 다결정 박막에 의한 광 검출

2.1 산화물 초전도체의 특징

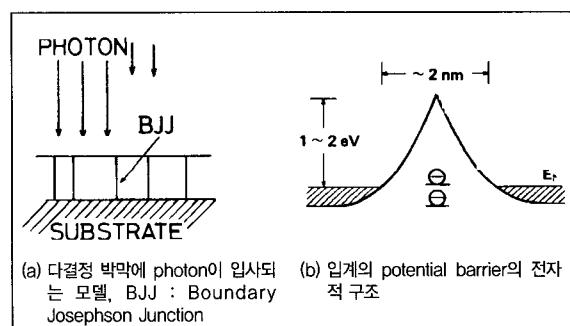


그림 1 다결정 박막 입자의 potential barrier 모델

산화물 초전도체는 carrier 밀도가 $10^{21}\sim10^{22}\text{cm}^{-3}$ 으로 매우 작기 때문에 금속 초전도체와는 상이한 특징을 갖는다. 첫째는 그림1과 같이 다결정 박막 입자의

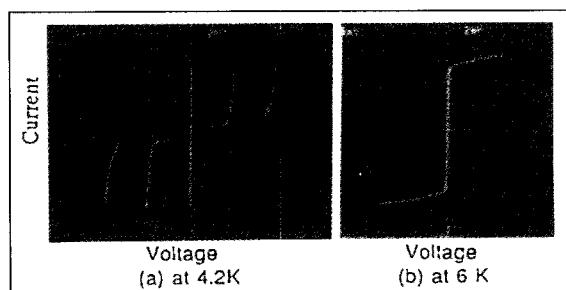


그림 2 BPBO 다결정 박막의 I-V 특성
(a) X축 2mV/div, Y축 20μV/div
(b) X축 2mV/div, Y축 10μV/div

potential barrier가 자연적으로 죄셉슨 접합을 이루게 된다. 그림2는 thickness 200nm의 BPBO박막(T_c , 9K)으로부터 길이와 폭이 10 μm 의 미세한 pattern을 형성 하며, I-V 특성을 측정한 결과이다.

각 결정입계의 입자가 10nm 정도 이므로 전류의 방향으로 직렬로 수 100개의 죄셉슨 접합이 존재하게 된다. (a)는 4,2K에서의 특성으로서 터널 접합적 특성으로 특이한 히스테리시스 곡선을 나타낸다. 전압을 인가하여 가면, 접합수와 비례하여 히스테리시스 곡선의 수도 증가하게 된다. 온도상승에 따라 히스테리시스는 차례로 작아지며, 6K 부근에서는 완전히 소실되어 (b)와 같은 약 결합적 특성으로 변화한다. 이와 같은 입계의 죄셉슨 접합은 저온에서는 터널 접합적 특성이 되며, 고온에서는 약 결합적 특성이 된다.

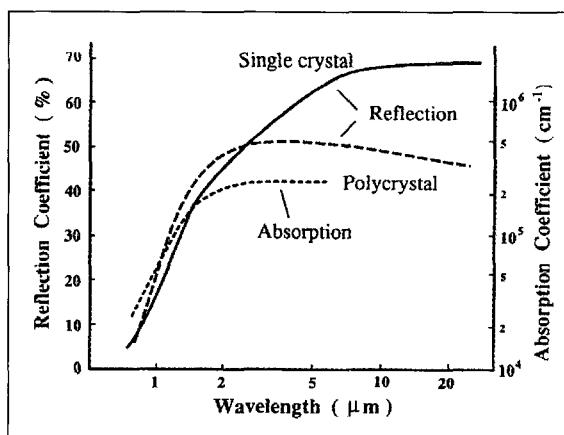


그림 3 BPBO 박막의 반사율과 흡수계수

다음의 특징으로는 일반적인 금속보다도 반사율이 작으므로 광이 내부로 침투하기 쉬운 상태로 된다. 그림3은 BPBO 단결정 박막과 다결정 박막의 반사율을 나타낸다. 단결정 박막에서는 파장이 수 μm 에서는 반사율이 70%에 이르게 되나, 다결정 박막에서는 약 50%에 미치는 수준이다.

2.2 광 검출의 원리

일반적으로 초전도체 내부에는 Cooper pair라고 하는 스핀의 방향이 상하의 2개의 전자가 결합되어 초전

도 상태를 유지하고 있다. Cooper pair가 형성되면, 에너지가 저하되어 pair를 형성하지 않을 때 보다 안정하게 되어 (원자가 결합하여 분자가 되면 안정된 상태가 되는 현상과 유사하다.) pair를 형성하지 않는 전자(준입자)와 cooper pair의 전자 간에 Cooper pair의 전자간의 Energy gap (이것을 2Δ 로 표기한다)가 발생한다. 이 2Δ 는 수 meV 정도의 크기이며, 반도체의 Energy gap보다도 1 order 정도가 작다. 따라서 0K 이외의 유한 온도영역에서는 초전도상태가 되어도 gap 위에는 얼마간의 준입자가 존재하게 된다. 준입자는 온도의 상승과 더불어 증가하며, 동시에 2Δ 가 감소하여 전이온도에서는 Cooper pair가 소실되어 2Δ 도 0이 된다. 이러한 2Δ 는 초전도 상태를 나타내는 중요한 parameter가 된다.

광 조사에 의하여 photon이 초전도체의 박막내부로 침투되면 Cooper pair와 충돌하여 파괴되며, 준입자를 생성하여 2Δ 가 감소하게 된다. 이론적으로는 준입자의 밀도를 n_{pq} , Fermi 준위에 있어서 상태 밀도를 $N(0)$ 로 하면, 2Δ 의 변화 ($\delta 2\Delta$)는 n_{pq} 가 작을 경우 다음과 같이 식으로 나타낸다.

$$\delta\Delta = \frac{n_{pq}}{N(0)} \quad (1)$$

$n_{pq}/N(0)$ 에 비례하여 감소하므로 $N(0)$ 가 작은 재료 일수록 변화가 크게 나타난다. BPBO의 $N(0)$ 은 $x=0.25$ 에서 약 0.15states/unit cell eV spin이며, 이 값은 일반적인 금속 초전도체보다 1 order 작기 때문에 n_{pq} 에 비

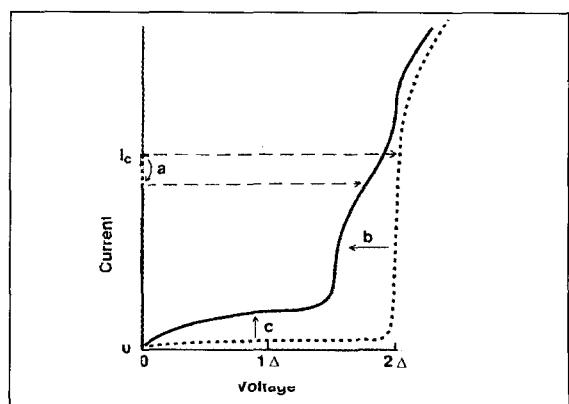


그림 4 광 검출의 원리를 설명하는 터널 접합의 특성

소 특집 ①

하여 금속 초전도체 보다도 큰 변화를 기대할 수 있다. 그림4는 광 검출의 원리를 알기 쉽게 이해하기 위하여 터널 접합의 I-V특성의 경우의 광에 의한 변화를 나타내고 있다. 점선으로 표시한 특성은 열평형 상태이며, 광 조사에 의하여 준입자가 증가한 실성의 특성으로 변화하게 된다.

그러나 죠셉슨 접합을 흐르는 초전도 전류의 크기에 제한이 있으므로 최대 전류 밀도는 다음과 같이 나타낸다.

$$I_c = \pi \left[\frac{\Delta(T)}{2eR_n} \right] \tanh \left[\frac{\Delta(T)}{2K_b T} \right] \quad (2)$$

R_n 은 접합의 상전도상태의 저항, T는 접합의 온도, K_b 는 볼츠만 상수를 나타낸다. $T < T_c/2$ 이하에서는 이식은

$$I_c \approx \pi \frac{\pi\Delta(T)}{2eR_n} \quad (3)$$

임계전류의 변화 δI_c 는

$$\delta I_c = \frac{\pi \delta \Delta}{2eR_n} = \frac{\pi n_{qp}}{2eR_n N(0)} \quad (4)$$

전압 2Δ 에 있어서 I-V 특성은 이러한 변화에 대응하여,

$$\delta V = \frac{2\delta\Delta}{e} = \frac{n_{qp}}{eN(0)} \quad (5)$$

만큼 변화한다. 다결정 입계의 접합을 이용하는 경우, 직렬접합구사 많을수록 신호는 증가한다.

2. 3. BPBO 다결정 박막에 의한 광 검출

그림5에 광 Fiber로부터 입사한 광을 검출하는 실험 배치를 설명한다.

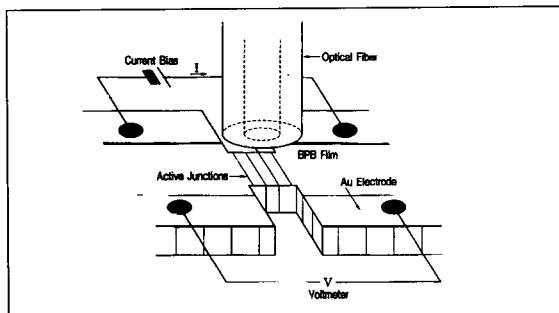


그림 5 광 Fiber로부터 입사한 광을 검출하는 실험

sappier 단결정기판 ($t=0.4\text{mm}$) 위에 sputtering법으로 BPBO 박막을 형성하였다. 두께 150-200nm의 $\text{BaPb}_{0.7}\text{Bi}_{0.3}\text{O}_3$ 다결정 박막을 이용하여 박막의 일부를 $10 \times 10\mu\text{m}^2$ 또는 $50 \times 50\mu\text{m}^2$ 의 미세한 부분을 갖는 패턴을 형성하고, 양측에 두터운 부분을 전류 bais와 전압 변화를 측정하기 위한 전극으로 하였다. 광 Fiber를 통하여 이 미세한 부분을 $1.3\mu\text{m}$ 또는 $3.2\mu\text{m}$ 의 laser광을 조사하여 이때의 변화를 4단자 법으로 측정하였다.

그림6의 I-V특성은 $10 \times 10\mu\text{m}^2$ ($t=150\text{nm}$)의 부분에 파장 $1.3\mu\text{m}$ 의 광을 $1\mu\text{W}$ 조사하여, (a) 4.2K 또는 (b) 6K에서 측정한 결과이다. 그림2와 같이 터널 접합적 특성으로부터 약 결합적 특성으로 변화한다. 다결정 박막의 경우에는 그림6(a)와 같이 다수의 곡선이 있게 되면, 동작점이 곡선 간을 이동하여 불안정하기 때문에 9(b)의 약 결합적 특성을 이용하여 이하의 실험을 수행하였다.

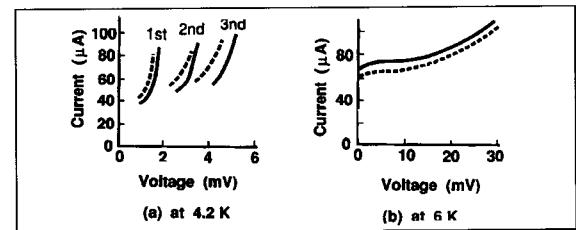


그림 6 입계 죠셉슨 접합을 갖는 BPBO박막의 I-V 특성

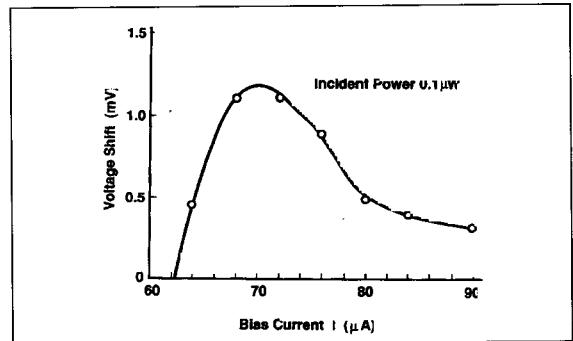


그림 7 BPBO 박막의 전압변화에 따른 전류 bais 특성

그림7에는 6K에 있어서 파장 $1.3\mu\text{m}$, 입사광량 $0.1\mu\text{W}$ 의 조건에서 각 전류 bais에 대한 전압변화에 따른 전류 bais의 존성을 제시한다. 전류 $70\mu\text{A}$ 에 있어서 전

압 변화가 최대 값을 보이며, 이 값은 그림6에서 관측한 것과 같은 임계전류에 근접한 수치이다. 그림7을 설명하기 위하여 1개의 약 결합 접합에 대하여 bias 전류와 전류변화분의 관계를 계산하여 본다. 약 결합의 I-V 특성은 RSJ모델에 의하여 다음과 같은 식으로 나타낸다.

$$V = R_n \sqrt{I^2 - I_c^2} \quad (6)$$

광조사에 의하여 임계전류 변화 분 δI_c 에 대하여, 전압shift는

$$\delta V = R_n \cdot \sqrt{I^2 - (I_c - \delta I_c)^2} - \sqrt{I^2 - I_c^2} \quad (7)$$

이식은 $I < I_c$, $I = I_c$, $I > I_c$ 의 조건에서 다음과 같이 근사식으로 나타낼 수 있다.

$$\begin{aligned} \delta V_{I < I_c} &= R_n \sqrt{I^2 - (I^2 - I_c^2)^2} \\ \delta V_{I = I_c} &= R_n \sqrt{2 I_c \delta I_c} = \pi \sqrt{\Delta \delta \Delta / 2 e^2} \\ \delta V_{I > I_c} &= \frac{-R_n I_c \delta I_c}{\sqrt{I^2 - I_c^2}} = -\frac{\pi \delta \Delta I_c}{2 e \sqrt{I^2 - I_c^2}} \end{aligned} \quad (8)$$

(6)식에 의하여 I-V 특성을 계산한 결과가 그림8(a)식이 된다. 그림8(b)는 그림8(a)로부터 각 전류 값에 대하여 δV 를 구하여 나타낸 특성이다. 그림 8(b)는 그림6의 결과 보다 첨예한 특성을 나타낸다. 그림6의 결

과는 접합1개의 경우의 계산이나, 그림8(b)는 특성의 차이가 적은 접합이 다수 중복되어 나타난 결과로 사료되며, 이 결과는 일치하며, RSJ모델로 설명할 수 있는 것으로 생각된다. 다음으로 감도의 두께 의존성에 대하여 설명한다. 그림 3에서 제시한 흡수 계수가 반도체 재료와 비교하여 크기 때문에, 광량의 두께 방향의 감쇠는 크게 나타난다. 이 점은 감도의 두께 의존성에 영향을 미칠 수 있다.

그림9는 박막의 두께를 parameter로 하여, 광량과 최대 전압변화의 관계를 나타낸 결과이다. 두께의 역수에 비례하여 감도는 향상되고 있음을 알 수 있다. 이 결과는 두께 d에 대하여 $\exp(-\alpha d)$ 에 비례하여 광량이 감소하기 때문에 (α : 감쇠상수), 준입자가 생성되는 밀도는 d값이 작을수록 크게 나타남을 알 수 있다.

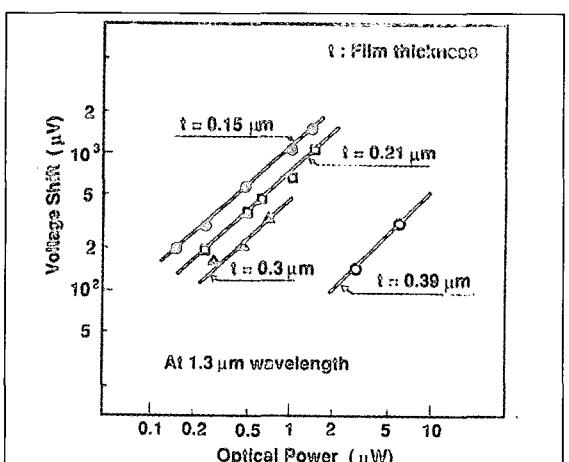


그림 9 BPBO 박막의 두께를 parameter로 한 광량과 최대 변화량의 관계

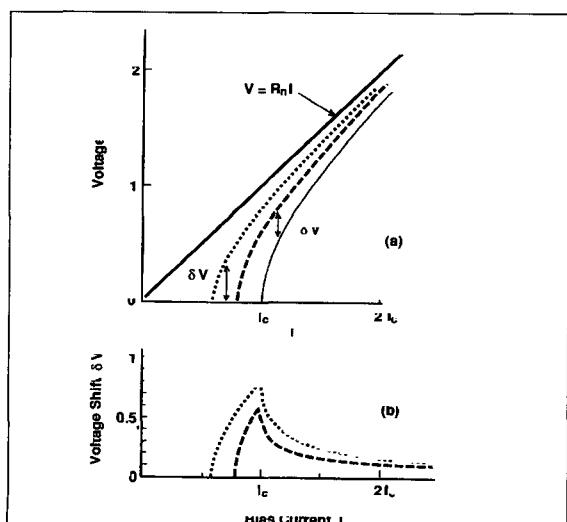


그림 8 RSJ모델에 의한 1개의 약 결합 접합에 광조사한 결과

그림10은 검출부의 면적(또는 광빔의 면적, 두께 약 200nm)과 전압변화의 관계를 제시한다. 생성 되는 준입자는 광 조사를 받는 전류 방향의 접합의 수와 광량의 밀도(면적에 역 비례한다.)에 비례하므로, 결과적으로 검출부의 폭에 역 비례 한다. 그림10은 이러한 경향을 나타내고 있다. 면적 $10 \times 10 \mu\text{m}^2$ 의 경우에 대하여 전압변화를 입력광량으로 나눈 값을 검출감도라고 하면, $1.5 \times 10^3 \text{ V/W}$ 가 된다.

소 특집 ①

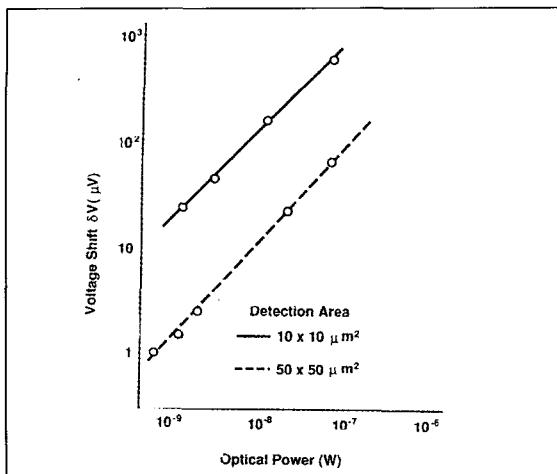


그림 10 BPBO 박막의 검출부 면적과 검출감도의 관계

그림11 은 검출 감도의 파장 의존성을 나타낸다. 같은 광량에서 photon의 수는 파장과 함께 증가하므로, 파장의 길이가 길수록 검출감도는 증가한다. 검출 가능한 파장의 한계는, 준입자가 생성되는 한계, 즉 energy gap(1mW정도) 으로 결정된다고 사료되므로, 파장1mm 까지가 한계로 생각된다.

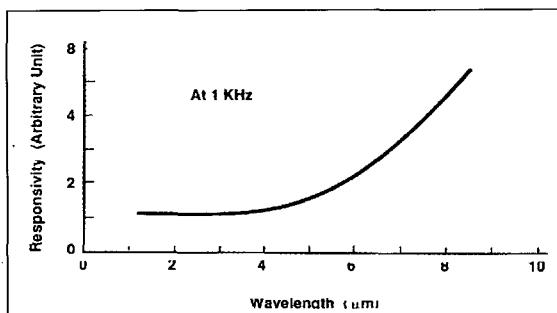


그림 11 BPBO박막의 검출감도의 파장의존성

분류기를 통과한 1kHz 변조의 광을 광원으로 하여, 출력을 6K에서 증폭기로 검출하였다. 그림12는 파장 1.3μm laser광의 변조 주파수에 관한 응답결과를 나타낸다. 50-700 MHz에 있어서 감도는 미세하게 감소하고 있다. 700-800 MHz에 있어서의 급격한 변화는 측정 회로로 인하여 나타난 결과이다.

다음으로 준입자가 재결합하여 cooper pair가 될 때

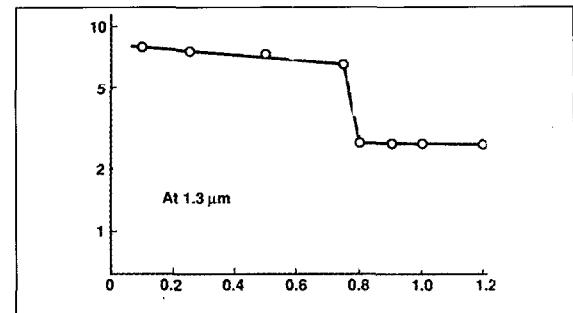


그림 12 BPBO 박막의 주파수 응답

까지의 완화 현상을 설명하고자 한다. energy gap 위의 준입자 재결합시간을 τ_r 라고 하고, 충돌시간을 τ_b 라고 한다. photon의 energy는 energy gap 보다 훨씬 크므로 여분의 열은 photon이 된다. 준입자의 완화 시간은 Rothwart 와 Taylor의 식으로부터

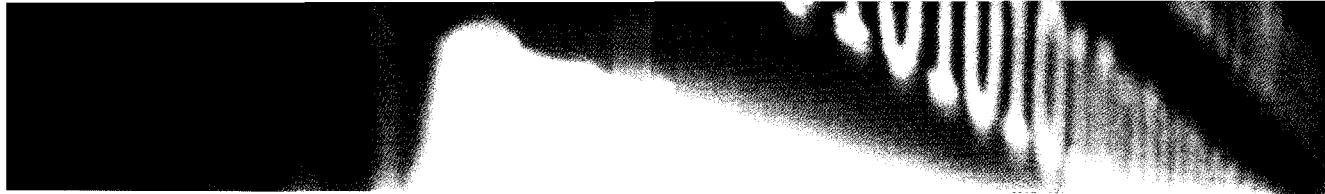
$\tau_{eff} = \tau_r + \tau_r \tau_b / \tau_b$ 로 주어지며, 10°정도의 값으로 된다. 이 결과는 본 실험의 주파수 응답으로부터 구한 결과와 일치한다.

2. 4. CuO를 포함한 산화물 초전도체에 의한 광검출

YBCO 초전도체의 준입자 효과에 의한 광 검출은 S.G.Han에 의해서 보고 되었다. S.G.Han에 의하면, τ_r 은 5 psec로 매우 짧은 결과로 인하여 전체적으로 완화 시간은 길게 나타난다. 또한 감도는 20V/W로 작게 검출된다. TlBaCaCuO 초전도체에서도 X.Wang 등의 준입자 효과에 의한 광 검출이 성공하였으며, YBCO와 같은 정도의 결과를 나타내었다. 이와 같이 CuO를 포함한 화합물에서 τ_r 이 길게 관측 되는 이유는, 이들 화합물이 CuO층과 절연 층이 상호 중복되는 2차원적인 구조를 하고 있어서, 열전도율이 감소하여, phonon이 소실되기 어려운 구조를 하고 있음에 원인이 있다.

3. 결 론

10μm 이상의 파장의 적외선을 고감도로 검출할 수 있는 소자의 출현은 천체 관측, 고체의 격자 진동 등의 적외선을 이용하는 연구영역에서는 매우 중요한 연구 과제로 여겨진다. 산화물 초전도체에 의한 적외선 검



출소자는 유력한 대안으로 사려 됐으나, 상용화를 위하여는 극복하여할 문제점이 있다.

- (1) 다결정 박막의 입계에서 발생하는 죄셉슨 접합을 이용하는 경우에는 조성의 변동이 I-V특성을 좌우하며, 조성의 제어가 어려우므로 현재 상황에서는 감도가 1order 변동 한다.
- (2) 광 Fiber를 통한 광과 같이 미세하게 압축된 광을 검출하기 위하여는 photon의 밀도가 높을수록 유리하다. 넓게 퍼지는 광을 검출하기 위하여 그림 13에서 나타내는 meander line 구조로 하여 검출 부분을 길게 하면, 동작속도와 감도는 저하 된다. 또한 전압 bias에 의한 전류의 변화를 검출하면, 전류는 면적에 비례하여 증가하기 때문에, 넓게 퍼지는 광의 검출에는 특히 적합하다.

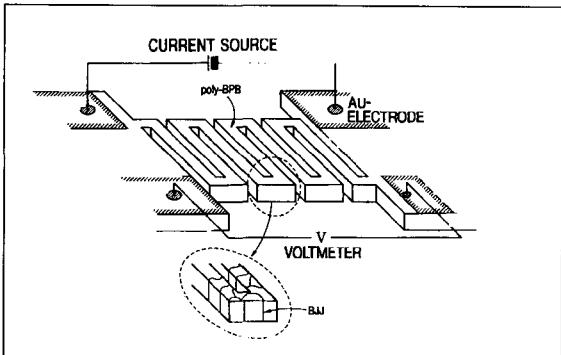


그림 13 mean line 검출부 구조

이와 같은 문제점을 극복하기 위하여는 산화물 초전도체와 같은 폐로브스카이트형 결정구조를 갖는 단결정 기판위에, 기판과 평행한 접합면을 갖는 죄셉슨 접합 구조의 소자의 개발로 해결할 수 있다. 이 경우에는 전압 bias로서 면적에 비례한 전류 변화로 광량을 검출 할 수 있으므로 넓게 퍼지는 광 검출에는 적합 하며, 소자 간 특성의 효율도 향상 시킬 수 있다.

[참고문헌]

- [1] Y. Enomoto, M. Suzuki and T. Murakami, Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 23, L.333, 1984.

- [2] Y. Enomoto, M. Suzuki and T. Murakami, J. Appl. Phys., Vol. 59, p. 3807, 1986.
- [3] A. W. Sleight, J. L. Gillson and P. E. Bierstedt, Solid State Comm., Vol. 17, p. 27, 1975.
- [4] J. G. Bednorz and K. A. Muller, Z. Phys. B64, p. 189, 1986.
- [5] M. K. Wu, J. Ashburn, C. J. Trong, P. H. Meng, L. Gao, Z. J. Huang, U. Q. Wang and C. W. Chu, Phys. Rev. Lett., Vol. 58, p. 908, 1988.
- [6] Z. Z. Sheng and A. M. Hermann, Nature, Vol. 332, No. 55, p. 138, 1988.
- [7] R. J. Cave, B. Batlogg, J. J. Krajewski, R. Farrow, L. W. Rupp, Jr., A. E. White, K. Sort, W. F. Pect, and T. Kometani, Nature, Vol. 332, p. 814, 1988.
- [8] T. D. Thanh, A. Koma, and S. Tnaka, Appl. Phys., Vol. 22, p. 205, 1980.
- [9] M. Suzuki, Y. Enomoto and T. Murakami, J. Appl. Phys., Vol. 56, p. 2083, 1986.
- [10] T. Itoh, K. Kitazawa, and S. Tnaka, J. Phys. Soc. Jpn\l{n}, Vol. 53, p. 2668, 1984.
- [11] V. Ambegaokar and A. Baratoff, Phys. Rev. Lett., Vol. 10, p. 486, 1963.
- [12] D. E. McCumber, J. Appl. Phys., Vol. 39, p. 3113, 1968.
- [13] A. Rothwarf and B. N. Taylor, Phys. Rev. Lett., Vol. 19, p. 27, 1967.
- [14] S. G. Han, Z. V. Vardeny, K. S. Wong, and O. G. Symko, Phys. Rev. Lett., Vol. 65, p. 2708, 1990.
- [15] K. Tanabe, Y. Enomoto and M. Suzuki, Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 29, L. 466, 1990.
- [16] X. WANG, X. Jin and X. Yao, Physica C., Vol. 175, p. 577, 1991.
- [17] K. Tanabe, Y. Enomoto and A. Yamaji, Appl. Phys. Lett., Vol. 57, p. 2719, 1990.
- [18] Y. Enomoto, J. Noda, Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 26, L. 26, 1987.