

나노구조 박막의 Morphology에 따른 초전도 특성 변화에 관한 연구

고태준*

국민대학교, 물리학과, 서울 정릉동 861, 136-702

(2006년 1월 19일 받음, 2006년 1월 28일 최종수정본 받음)

나노구조 초전도 박막의 모폴로지를 열처리를 통해 변화시키며 이에 따른 박막의 초전도 특성을 면저항과 터널링 측정을 통해 연구하였다. 면저항 측정결과 초전도 박막의 임계온도가 열처리 온도에 따라 증가함을 알 수 있었다. 터널링 측정방법을 통해 포논 스펙트럼을 분석한 결과 열처리 후 포논 모드에 변화가 나타남을 알 수 있었다. 이러한 결과들을 통해 나노구조 박막의 모폴로지가 박막의 초전도 특성에 미치는 영향을 이해할 수 있다.

주제어 : nanostructured thin film, morphology, superconductivity

I. 서 론

최근까지도 끊임없이 제시되고 있는 문제 중의 하나는 electronic system들이 가질 수 있는 여러 가지 상들의 존재 가능성에 관한 것이다. 그 중에서도 2-dimensional(2D) electronic system이 절대영도에서 어떠한 상태로 존재할 수 있는 지에 대해 지속적으로 연구되어 지고 있다. 절대영도에서 초전도와 절연 상태의 존재에 대해서는 잘 알려져 있으며, 실험적으로 관측된 현상들은 이론적으로 충분히 해석되어져 왔다. 이에 반하여 금속상의 존재여부에 대해서는 아직까지도 명확하지 않으며, 이 문제에 대한 해답을 찾기 위해 많은 실험들이 시도되고 있고, 여러 가지 이론적인 모델들이 제안되고 있다 [1, 2].

이러한 2D electronic system에서의 양자상전이 현상에 관한 연구는 금속 박막들을 사용하여 시도되어 왔다. 그 중 한 예는 면저항이 높은 박막에서 보이는 초전도체-절연체 양자상전이현상이다. 이러한 현상들은 대부분 quench condensed 박막들을 통해 관측되고 연구되어 왔다. Quench condensed 박막들은 저온상의 기판에 증착된 금속 박막들을 지칭한다. Quench condensed 박막들은 냉각상의 기판위에서 원자들이 가지는 thermal mobility가 급격히 감소함으로 인해 단일층 원자 두께에서도 전기적으로 연속적이며, 초전도 결맞음길이와 같은 박막의 특성길이(characteristic length scale)가 박막 두께보다 크기 때문에 2D electronic system을 연구하기에 적합하다.

이러한 박막들이 가지는 나노구조는 박막의 초전도상의 특성들에 큰 영향을 끼칠 수 있다. 예를 들어 Anderson이 지

적한 바에 의하면 박막을 구성하고 있는 결정립의 크기가 줄어들수록 초전도 질서도는 감소하며, 결정립 안의 에너지 준위 간격이 초전도 에너지 간격에 가까워 질 경우 완전히 사라진다[3]. 하지만, 저온에서 증착된 박막의 구조는 저온 scanning tunneling microscope(STM)의 개발과 함께 최근들어 직접적인 관찰이 가능하게 되었으나 박막구조가 초전도 특성에 미치는 영향은 완전히 이해되고 있지는 않다[4, 5].

저온에서 절연체상으로 전이하는 얇은 quench condensed 박막들은 임계온도 근방에서 약간의 면저항 감소를 보이는데, 이 reentrant 현상은 작은 결정립계에 존재하는 조셉슨 연계와 결정립 사이의 충전효과 사이의 상호작용으로 이해되어 왔으나, 직접적인 모폴로지(morphology) 관찰이 불가능하였으므로 단지 quench condensed 박막들이 granular 모폴로지를 지닌 것으로 추정되어 왔다. 최근 *in situ* 저온 STM 연구는 quench condensed Pb 박막의 경우 결정립으로 구성된 나노구조를 가지고 있으며 granular 모폴로지를 지니고 있는 것을 확인하였다. STM의 관찰결과는 초전도 박막들에서 긴버링 질서가 존재하지 않음에도 불구하고 각각의 결정립 내에 local superconductivity가 존재하는 것을 암시하는 이러한 reentrant 현상을 설명할 수 있는 직접적인 증거를 제시할 수 있었다 [6]. 또한 박막의 나노구조는 박막 기판의 온도가 증가함에 따라 비가역적인 변화를 나타내는데, 이 논문에서는 이러한 직접적인 모폴로지 관찰 결과에 바탕을 두고 나노구조 Pb 박막의 열처리를 통해 박막의 모폴로지가 박막의 초전도 특성에 미치는 영향을 연구해 보고자 한다.

II. 실험 방법

나노구조 Pb 박막의 열처리를 통한 초전도 특성변화연구

*Tel: (02) 910-4873, E-mail: tkouh@kookmin.ac.kr

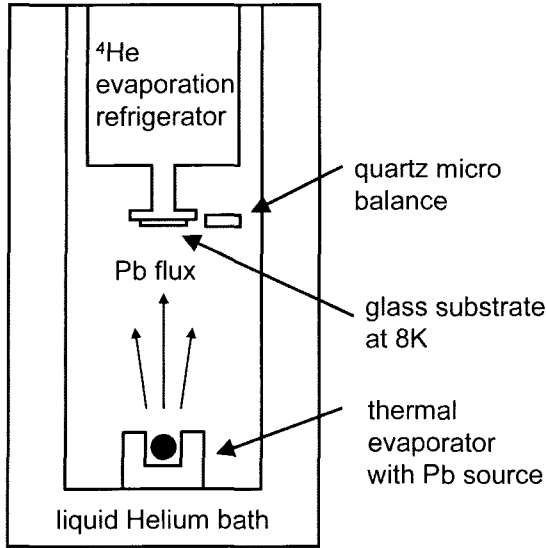


Fig. 1. Schematic diagram of the cryostat.

는 ^4He evaporation refrigerator 안에서 *in situ*로 수행되었다 (Fig. 1). Pb 박막의 *in situ* 증착을 위해 저온 냉각장비 밑 바닥에 텅스텐 코일을 이용한 열진공증착장비가 제작되어 부착되었다. Pb 박막의 증착은 99.999%의 Pb를 유리 기판위로 증착시키므로 이루어졌으며, 증착시 기판의 온도는 8 K로 유지되었다. 박막의 두께 측정을 위해 quartz micro balance 를 사용하였다.

열처리 실험은 망가닌(manganin) 전선과 금속 박막 저항기를 히터로 사용하여 이루어졌다. 망가닌 전선과 Linear Research LR130 온도 조절기를 사용함으로써 박막의 온도를 50 K까지 증가시킬 수 있었으며, 망가닌 전선에 90 mA의 전류를 흘려보냄으로써 150 K까지 조절이 가능하였다. 박막의 온도를 상온까지 증가시키기 위해 1 K pot에 금속 박막 저항기를 부착하였으며, 500 mA의 전류를 흘려보내서 박막의 온도를 250 K까지 증가시킬 수 있었다. 열처리 동안 온도측정을 위해 게르마늄 저항기와 platinum resistance temperature detector가 사용되었다. 온도가 증가되는 동안, 저온 냉각장비는 액체헬륨 안에 잠겨있었으며, 4.2 K로 유지되는 저온 냉각장비의 벽에 의한 cryopumping 효과로 인해 실험 중 항상 진공상태가 유지되어 열처리에서 유발될 수 있는 박막의 오염을 방지할 수 있었다.

면저항 측정을 위하여 8개의 Au/Ge 접촉패드들이 기판위에 증착되었고, 터널링 측정을 위해서는 상온에서 Mn이 포함된 13 nm 두께의 Al 전극이 증착되었으며 공기중에서 Al 산화막이 성장되었다. 면저항과 터널링 측정실험은 standard 4 terminal DC와 AC lock-in 방법으로 측정하였다. Quench condensation 기법으로 성장된 박막들은 매우 불안정한 상태에서 증착됨으로 모든 실험은 *in situ*로 수행되었다.

III. 결과 및 논의

Fig. 2는 열처리 이전과 이후의 나노구조 Pb 박막의 초전도 임계온도, Tc 부근에서의 면저항 측정 실험 결과이다. 측정된 박막의 두께는 7.02 nm와 9.99 nm이다. 열처리 후 박막들의 임계온도 값은 벌크 값인 7.2 K에 가깝게 증가하는 경향을 보여주며, 면전기전도 또한 증가한다. 이 현상은 *in situ* 저온 STM 연구를 통해 관찰된 quench condensed 박막성장 모델로써 정성적으로 이해할 수 있다. 나노구조 박막의 열처리는 결정립의 성장을 유발시킨다. 이러한 결정립의 크기 증가는 벌크에 가까운 특성을 지니게 됨을 의미하며, 그 결과 임계온도 역시 벌크 값에 가까워지게 된다.

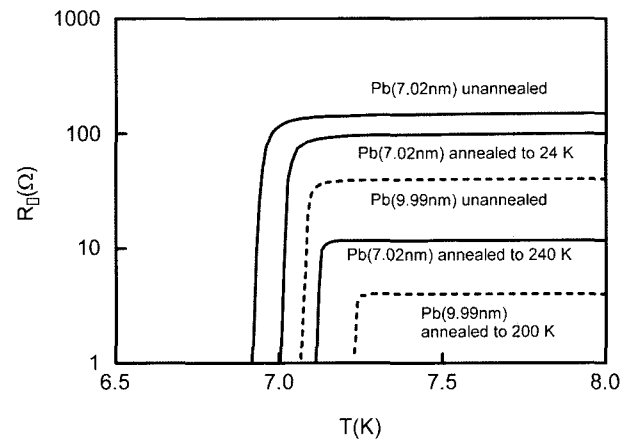


Fig. 2. Sheet Resistance vs. temperature of nanostructured Pb films before and after annealing. Pb (7.02 nm) film is shown as a solid line (From the top, taken right after deposition, and after annealed to 24 K and 240 K, respectively). A dotted line shows the transition of Pb (9.99 nm) film (Also, from the top, transition right after deposition and after annealed to 200 K).

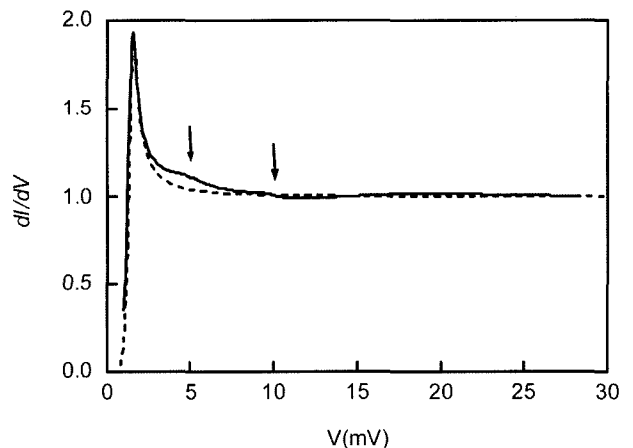


Fig. 3. Normalized tunnel junction conductance of Pb film ($d=5.34$ nm) is shown as a solid line. BCS density of states is shown as dotted line and two structures deviating from BCS form are shown.

Fig. 3는 터널링 실험을 통해 얻어진 tunneling density of states(DOS) 측정결과를 나타낸다. 초전도 에너지 간격 밖에서 강한 전자-포논 짝지움으로 인한 포논 구조를 보여주는데, 이들은 포논 DOS, $F(\omega)$ 안에서 포논 피크에 상응한다[7-12].

터널링 실험을 통해 얻어진 dI/dV 와 d^2I/dV^2 곡선들을 자세히 분석해 본 결과, 피크들은 4.5 meV와 8.6 meV 부근에 위치해 있으며, 각각 횡(TA)과 종(LA) 음향적 포논 모드에 해당한다(Fig. 4). 이 값들은 Schrieffer, Scalapino, Wilkins가 고려한 4.4 meV와 8.5 meV의 포논 에너지 값에 근사하며, 또한 중성자 산란 실험 결과와도 일치한다[13-15]. 열처리 이전 나노구조 Pb 박막은 매우 넓게 분포된 포논 스펙트럼을 보여주는데 비해, 7.09 nm 두께의 Pb 박막이 150 K까지 열처리 된 이후 포논 스펙트럼은 벌크 결정질 Pb가 가지고 있는 포논 스펙트럼의 모습을 나타내기 시작한다. 4 meV 이상에서 포논 스펙트럼의 전반적인 모습은 박막두께에 따라 변하지 않으며 5.34 nm와 7.09 nm 두께의 Pb 박막들의 d^2I/dV^2 곡선들은 서로 일치한다. Pb 결정립 사이에서는 전자-포

논 짝지움이 존재하지 않으리라 기대되므로 박막두께에 따른 차이가 없다는 점은 단일 결정립 효과를 암시한다.

Quench condensation 기법으로 증착된 박막들은 구조적으로 매우 무질서하다고 알려져 있으며, 포논 스펙트럼이 넓게 나타나는 것은 무질서 힘상수 모델로 설명될 수 있다. 이러한 무질서한 힘상수의 분포를 고려한 무질서 격자구조에 대한 계산결과에 의하면 정상 모드 에너지 스펙트럼들은 넓게 분포되어 있다[16, 17]. 상온에서 증착된 결정질 박막의 경우, 원자들은 균일한 단일 힘상수의 영향을 받으며, 포논 스펙트럼은 잘 정의된 정상 모드를 취한다. 이와 반면, 균일한 무질서를 지닌 박막의 경우에는 원자들이 불규칙적으로 분포되어 있는 힘상수의 영향을 받으므로 넓게 분포된 포논 에너지 스펙트럼을 나타내게 된다. 하지만, 박막의 열처리 이후 격자의 대칭성이 복원되고 긴버링 질서 상태가 형성된다.

d^2I/dV^2 곡선으로부터 TA 포논 모드의 에너지는 열처리된 Pb 박막이나 벌크 Pb 박막의 값보다 작다는 것을 알 수 있다. 화살표로 표시된 바와 같이 열처리 이전에는 ω_{TA} 가 4.2 meV에서 존재하는 반면, 열처리 후에는 벌크 값에 가까운 4.5 meV로 증가한다. 하지만, LA 포논 모드의 경우 아무 변화도 관찰되지 않았다. 이러한 포논 피크의 변화는 박막의 나노구조를 통해 이해될 수 있다. Garland 등의 연구결과에 의하면[18], 작은 결정질 입자로 구성된 무질서 구조의 경우 입자의 표면근방에서 대칭성의 소멸에 의해 최인접물 원자의 수가 감소한다. 그로 인하여, 입자 표면의 원자들은 벌크 결정에서보다 약한 힘의 영향을 받게 되고 보다 낮은 포논 에너지에서 큰 진폭의 국소된 이온 진동을 겪는다. 작은 입자 상에서 낮은 에너지를 가지는 표면 포논의 역할과 중요성은 분자 동력학적 계산[19] 등을 통해 연구되었다. Fig. 4에서 보인 바와 같이 횡 포논만이 열처리에 의해 영향을 받았다는 것은 넓게 분포된 포논 스펙트럼이 낮은 표면 포논 에너지로 이동하는 것을 설명하는 위에 언급된 softened 격자 모델과 일치한다.

IV. 결 론

결정립으로 구성된 나노구조 Pb 박막의 모폴로지를 열처리를 통해 변화시키며 면저항과 터널링 측정실험을 수행하였다. 면저항 측정실험에 의하면, 열처리 이후 박막의 초전도 임계온도가 증가하며 벌크 Pb와 비슷한 값을 가지는 것을 알 수 있었다. 터널링 측정결과를 분석한 결과, Pb 박막은 넓게 분포된 포논 스펙트럼을 보이며, 열처리 이후에는 벌크 결정질 Pb에 비슷한 모습을 취한다. 열처리 이전의 포논 스펙트럼의 모습은 무질서 구조에 의한 포논 수명의 감소에 의한 것으로 설명될 수 있다. 터널링 연구는 박막의 모폴로지의 중요성을

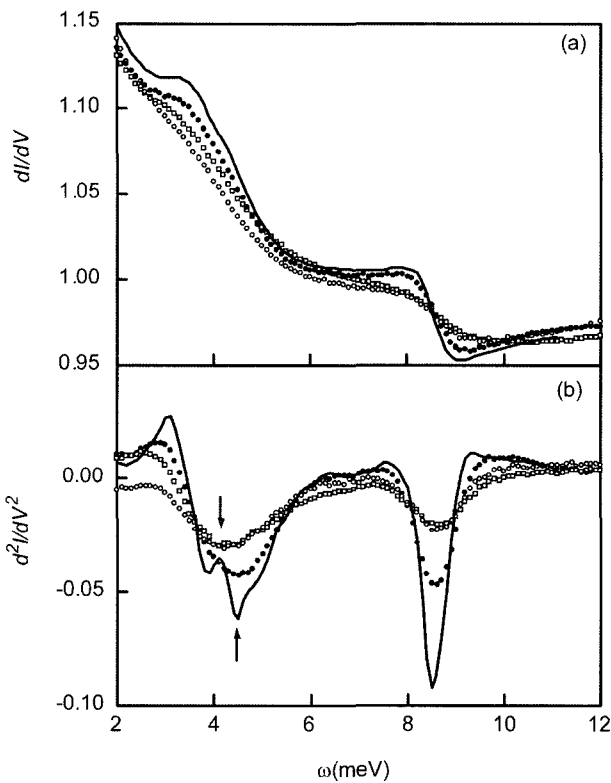


Fig. 4. Normalized tunnel junction dI/dV and d^2I/dV^2 of several Pb films as a function of energy, $\omega=eV-\Delta_0$ with $\Delta_0=1.4$ meV. The thickness of Pb films are 5.34 (\square), 7.09 (\circ), and 7.09 nm annealed to 150 K (\bullet). The solid line in (a) is the numerically calculated density of states of bulk, crystalline Pb film and the solid line in (b) is the first derivative of the density of states with McMillan program [11, 12]. The arrows indicate the locations of transverse phonon peaks.

한층 더 강조한다. 열처리 이전 나노구조 Pb 박막에서의 횡 포논 모드는 벌크 Pb보다 낮은 에너지에서 존재하는데 이 현상은 박막이 granular 모폴로지를 지니고 있으며 초전도 박막을 구성하고 있는 작은 결정립 내에서 표면 모드의 중요성을 의미한다.

참고문헌

- [1] M. V. Feigel'man and A. I. Larkin, Chem. Phys. **235**, 107 (1998).
- [2] B. Z. Spivak, A. Zyuzin, and M. Hruska, Phys. Rev. B **64**, 132502(2001).
- [3] P. W. Anderson, J. Phys. Chem. Solids **11**, 26(1959).
- [4] K. L. Ekinci and J. M. Valles Jr., Acta Mater. **46**, 4549(1998).
- [5] K. L. Ekinci and J. M. Valles Jr., Phys. Rev. Lett. **82**, 1518 (1999).
- [6] B. G. Orr, H. M. Jaeger, and A. M. Goldman, Phys. Rev. B **32**, 7586(1985).
- [7] J. R. Schrieffer, D. J. Scalapino, and J. W. Wilkins, Phys. Rev. Lett. **10**, 336(1963).
- [8] D. J. Scalapino, J. R. Schrieffer, and J. W. Wilkins, Phys. Rev. **148**, 263(1966).
- [9] I. Giaever, H. R. Hart, and K. Megerle, Phys. Rev. **126**, 941 (1962).
- [10] J. M. Rowell, P. W. Anderson, and D. E. Thomas, Phys. Rev. Lett. **10**, 334(1963).
- [11] W. L. McMillan and J. M. Rowell, Phys. Rev. Lett. **14**, 108 (1965).
- [12] W. L. McMillan and J. M. Rowell, in Superconductivity, edited by R.D. Parks (Marcel Dekker, New York, 1969).
- [13] R. Stedman, L. Almqvist, G. Nilsson, et al., Phys. Rev. **162**, 545(1967); **163**, 567(1967).
- [14] G. Gilat, Solid St. Commun. **3**, 101(1965).
- [15] B. N. Brockhouse, T. Arase, G. Caglioti, et al., Phys. Rev. **128**, 1099(1962).
- [16] D. N. Payton III and W. M. Visscher, Phys. Rev. **154**, 802 (1967); **156**, 1032(1967); **175**, 1201(1968).
- [17] P. Dean, Rev. Mod. Phys. **44**, 127(1972).
- [18] J. W. Garland, K. H. Bennemann, and F. M. Mueller, Phys. Rev. Lett. **21**, 1315(1968).
- [19] J. M. Dickey and A. Paskin, Phys. Rev. Lett. **21**, 1441(1968).

Effects of Morphology on Nanostructured Superconducting Thin Film

Taejoon Kouh*

Department of Physics, Kookmin University, Seoul 136-702, Korea

(Received 19 January 2006, in final form 28 January 2006)

Transport and tunneling measurements of nanostructured superconducting thin films are presented. To understand the effects of film morphology on their superconducting properties, thermal annealing experiments have been performed. The transition temperature increases with thermal annealing temperature towards the bulk value. Also, thermal annealing results in a shift of transverse phonon mode. These can be understood with changes in film morphology and suggest its importance on the superconducting state properties.

Key words : nanostructured thin film, morphology, superconductivity