≪연구논문≫ 한국진공학회지 제19권 6호, 2010년 11월, pp.489~494

저에너지 양전자 소멸 분광법을 이용한 Nb_3Ge 박막 특성

이종용[a]* · 배석환[b]

[a]한남대학교 물리학과, 대전 306-791
[b]건양대학교 방사선학과, 대전 302-718

(2010년 8월 25일 받음, 2010년 9월 29일 수정, 2010년 10월 30일 확정)

저속 에너지 도플러 넓어짐 양전자 소멸 분광법으로 Nb_3Ge 시료내의 원자 크기 정도 고체 구조 특성에 대하여 조사하였다. A15 화합물 구조로 된 Nb_3Ge 시료를 상온에서 초전도 특성을 갖는 상전이 온도 근처의 S-변수를 측정하였다. 양전자와 전자의 쌍소멸로 발생하는 511 keV 감마선 스펙트럼의 수리적 해석 방법인 S-변수를 사용하여, 상전이 근처 온도에서 박막의 구조 변화를 측정하였다. 양전자의 입사 에너지에 따른 S-변수는 0.598에서 0.594로 온도의 변화에 의하여 감소하였으며 이때 초전도 전이와는 무관함을 나타낸다. 고온으로 갈수록 일반적인 트랩핑 비율은 커지고 양전자 흐름은 공공(voids) 근처에서 소멸하는 것이 보였다. 이 결과로부터 양전자가 초전자와 소멸하기 보다는 상전자와 소멸하는 것으로 판단된다.

주제어 : Nb_3Ge, 초전도, S-변수, 양전자 저속 에너지, 양전자 소멸, 상전이

I. 서 론

저속 에너지 양전자 소멸 측정법들을 이용한 물질의 전자 구조, 결함 측정, 전자의 밀도분포 및 운동량 분포 등은 핵 혹은 고체 물리에서 사용하고 있다 [1,2]. 이 가운데 저속 에너지 도플러 넓어짐 양전자 소멸 분광법 [3-5] (Doppler Broadening Slow Positron Annihilation Spectrometer: SDBPAS)은 페르미 표면이나, 표면 연구 또는 물질의 전자 구조를 분석 할 수 있으며, 양전자 소멸 측정법의 한 종류로 운동량 분포를 측정하여 사용되고 있다. 양전자 소멸 측정법은 지난 30년 동안 재료의 특성이나 반도체 소자 결함 측정에 이용되었으며 [6-8], 반입자인 양전자는 전자와의 상호 작용하고 재료 내의 원자 단위의 크기 결함 특성을 측정하는 수단으로 연구되어 왔다. 특히 측정법이 용이하고 측정하는 경우에도 비파괴 방법의 하나로 시료에 전혀 영향을 주지 않으며, 나노미터 수준의 결함을 측정 할 수 있는 장점을 가지고 있다. 양전자는 전자의 반입자로서 양전자가 전자와 소멸을 할 때는 대부분의 경우 2 개의 감마선이 거의 180^o 각도를 이루면서 방출된다. 이 측정법은 운동량을 가진 전자와 양전자의 쌍 소멸에 의하여 발생하는 것을 이용한 것으로써 양전자가 전자와 소멸할 때 총에너지가 $2\ mc^2-E_b$인 두 개의 감마선이 서로 반대 방향으로 방출하는 것이다. 이때 각각 mc^2와 E_b는 전자의 정지 에너지와 결합에너지이다. 운동량과 에너지의 보존법칙에 따라서, 이 에너지는 두 광자로 똑같이 나누어지지 않고, 전자의 운동방향에 따라 한 광자 에너지는 $p_Lc/2$가 늘어나고, 반면에 다른 광자의 에너지는 같은 양만큼의 에너지가 줄어든다. 이 경우 운동량 p_L은 전자와 양전자 소멸 시 광자 방사가 일어나는 세로 방향의 성분이다. 사용되는 검출기는 광자들이 임의의 방향으로 방사하는 경우에도 blue나 red로 이동된 광자 모두의 측정을 할 수 있다. 이때에 $2\triangle E=p_Lc$에 의한 소멸광자 피크의 넓어짐이 생기게 된다. 일반적으로 이 광자를 검출하기 위하여 게르마늄 검출기를 사용하는데 그 이유는 고 에너지 광자에 대하여 충분히 좋은 분해능과 상대적인 효율이 높기 때문이다.

이 측정법의 약점 중의 하나는 상대적으로 신호대비 커다란 잡음이며 특히 저에너지 방향의 피크에 영향이 크다. 그러나 Lynn과 공동 연구자 [9]들은 게르마늄 검출기의 반대 방향으로 NaI 검출기를 추가하였으며, 이것은 방사하는 광자를 양 방향 동시에 측정하여 잡음을 줄이기 위한 것이었다. 이 방법은 최근에도 저렴한 가격으로 다른 또 하나의 검출기를 추가하여 설치하기 때문에 여전히 사용되고 있다. 그 다음해에 Lynn과 공동 연구자들은 NaI 검출기를 게르마늄 검출기로 바꾸어 에너지에 대한 정보를 얻게 되었

* [전자우편] cylee@mail.hannam.ac.kr

다 [10]. 이것은 관례적으로 동시 계수 도플러 넓어짐 측정법(Coincidence-DBPAS or CDB)이라 부른다. 상당히 많은 잡음을 줄임으로서, 이 측정 방법으로 코아 전자들의 높은 운동량 소멸에 대한 정보를 얻을 수 있고 이론적 계산과 비교할 수 있게 되었다. 지난 몇 년 사이에는 이 방법을 통하여 소멸된 격자들에서의 화학적 성분을 구하게 되었다. 즉 낮은 운동량의 valance나 전도 전자들과의 양전자 소멸은 작은 도플러 이동을 보여주지만 코아 전자들과의 양전자 소멸은 상대적으로 큰 도플러 이동이 나타난다. 그러므로 511 keV에너지 분포에서 큰 에너지 부분에 기여하게 된다. 일반적으로 코아 전자들의 에너지 분포는 각 원자들의 고유한 화학적 성분에 대한 특성으로 나타나고 주변의 화학적 영향을 많이 받지 않는 것으로 알려져 있다. 그리고 동시 계수 측정법으로 얻은 높은 에너지 분포에서의 코아 전자와 양전자 소멸은 물질의 화학적 성분에 대한 정보를 얻을 수 있다. 그러므로 양전자 소멸 방법은 초전도체 내의 전자의 밀도 분포나 전자 운동량의 분포 등의 연구에 중요하다. 고온 초전도를 발견한 이래로 고온 초전도의 역학적인 것을 이해하기 위하여 양전자 소멸 측정 방법을 포함한 방법이 다양하게 거론되고 있기 때문이다 [11,12]. 이 방법은 양전자와 전자밀도에 대한 소멸 관계의 특성으로서 초전자를 직접적으로 나타내지는 않지만 전이온도 근처에서의 변화에 대하여 S-변수가 고체 구조나 전자의 운동량에 따라 민감하기 때문에 양전자 소멸법은 변수의 차이가 나타날 수 있다.

본 연구에서는 저속 에너지 양전자 소멸법과 동시 계수 측정법을 사용하여 온도 변화에 따른 단결정 Nb_3Ge 초전도의 특성을 온도 범위 15~300 K에서 측정하고자 한다. Nb_3Ge 초전도는 A15 화합물의 비 평형 조건으로 제조된 시료로써, 전이 온도가 가장 높은 장점이 있다. 그리고 최근에 각광을 받는 동시 계수 측정법은 도플러 넓어짐 측정 방법의 사용을 보완하고 측정 시의 잡음을 줄이기 위한 새로운 측정 방법으로 많이 사용되고 있다. 측정된 총감마선의 수와 도플러 넓어짐 측정법 그리고 동시 계수 도플러 측정법을 통한 511 keV±수 keV의 영역에 해당하는 감마선의 비인 S-변수를 이용한 온도 변화에 따른 크기를 비교하고자 하며, 시료 두께에 따른 특성을 분석함으로서 초전도 구조 특성 연구에 대한 실험을 목적으로 수행하였다.

Ⅱ. 실 험

본 연구에서 사용된 Nb_3Ge 시료는 알곤 기체 분위기에서 분말로 부터 압축시킨 급냉한 벌크 시료로써 기 발표된 방법 [13]인 LTSCHEM 사로 부터 실험 편의상 10×10×1 mm^3의 크기의 시료를 제작하였다. 저 에너지 동시계수 도플러 넓어짐 측정 실험을 하기 위하여 양전자 소스는 활성화 면적의 직경이 5 mm인 50 mCi ^{22}Na 소스를 사용하였다. 베타 붕괴에 기인하므로 소스에서 나오는 양전자의 에너지는 540 keV에서 0 keV까지의 가우스 분포로 퍼진 에너지로 이루어져 있다. 측정하려는 Nb_3Ge 초전도 시료의 경우 특성을 연구하기 위해서는 온도의 변화에 따른 스펙트럼을 측정하고자 10 K에서 300 K까지 사용할 수 있는 헬륨 기체 압축 냉동기를 사용하였으며, 온도 측정은 백금 저항기로써 시료의 근처에 접촉시켰다. 높은 운동량을 지닌 양전자는 열적 투과 깊이가 100 μm 정도이므로 고속 양전자 에너지를 저속 양전자 에너지 빔으로 바꿀 필요가 있었다. 그러므로 50 mCi ^{22}Na 소스 앞에 1 μm 텅스텐 막으로 조절기를 사용하여 백색 양전자 빔을 단색 양전자 빔으로 만든 후 방출 전압을 통하여 수 eV 양전자 빔이 Fig. 1과 같이 시료에 조사 될 수 있도록 한다. 방출된 빔의 변환 효율은 10^{-4} 정도로 되므로 측정 시간이 길어지게 된다. Fig. 1은 저속 에너지 동시 계수 도플러 넓어짐 양전자 소멸 측정 실험 장치를 보여 주고 있으며, 이때 시료로 부터 나온 양전자 소멸에 의한 511 keV 감마선 에너지 검출을 위하여 두 개의 Ortec사 Gem 20180-P 검출기 그리고 증폭기를 사용하여 측정하였다. 2D CDB 경우는 동시에 ADC를 사용 하였으며 동시 계수기를 3 μsec로 맞추고, Fast Comtec사의 메모리 박스와 PC를 이용하여 스펙트럼을 측정하였다. 2D CDBPAS 의 경우는 초 당 10~100개의 데이터를 얻을 수 있으므로 충분한 통계를 위해 하나의 스펙트럼 당 24시간 정도 진행하였다.

Ⅲ. 결과 및 고찰

Nb_3Ge 시료는 초전도 전이온도를 높이기 위하여 상온까지 급속 냉동하고 비 평형인 담금질한 상태로 소결하여 제작한다. Nb_3Ge 결정 구조는 Ge 원소가 체심 입방을 형성하며, Nb 원자는 입방격자면 내에서 세 방향에 1 차원 고리 상으로

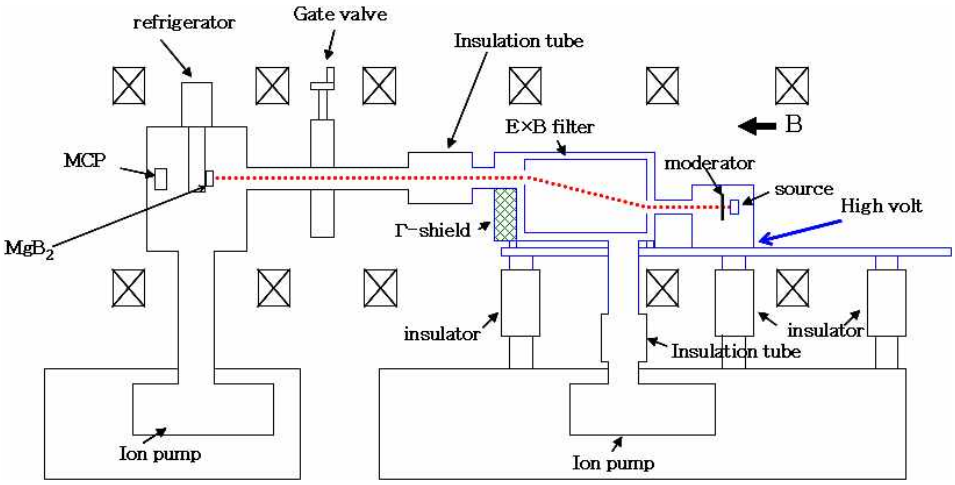


Figure 1. Schematic diagram of the slow positron and the coincidence positron annihilation system.

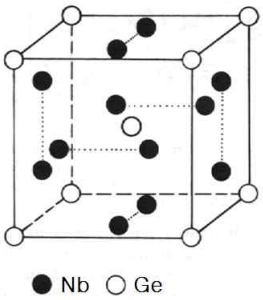
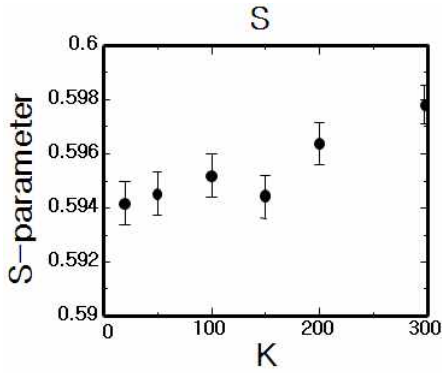


Figure 2. Crystal structure of the Nb_3Ge with black and white circles representing, the Nb and Ge atoms.



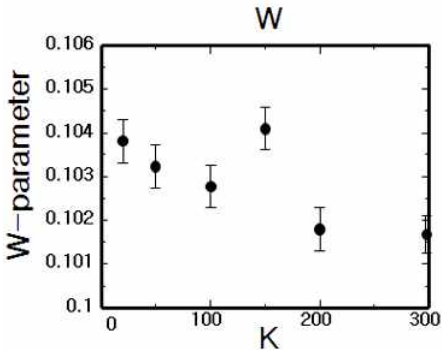


Figure 3. Temperature dependence of the S and W parameters.

연결 되어 있는 형태를 띠고 있다. 일반적으로 A15 화합물은 Nb가 전이 원소이고, Ge는 금속 혹은 비금속으로 Fig. 2와 같이 되어 있다. 정방 결정구조이며, Ge-Ge는 4.47 Å 정도이고, Ge는 12개의 Nb 최인접 원소로 구성되어 있다. Saini 등 [14]에 따르면 온도의 변화(300~10 K)에 따라서 Ge-Nb 결합에 기인하여 변하는 것으로 알려져 있다.

Fig. 3은 온도 변화에 따른 Nb_3Ge 초전도 시료에서의 S-변수 값을 나타낸 그래프이다. 두 개의 고 순도 갈륨을 이용한 감마선 계측기인 동시 계수 측정법으로 양전자 소멸 후의 감마선이 180도 양 방향으로 발생하는 것을 착안하여 양 방향의 신호를 동시에 측정하면 잡음에 의한 신호와 차별 할 수 있음을 이용하여 측정하였다. 도쿄 대학 [15]이나 도호쿠 대학 [16]에서 사용하는 2D CDBPAS의 경우로써 2차원 에너지 스펙트럼을 보여준다. 측정하는 에너지 구간의 크기는 큰 결합에너지 때문에 충분히 커다란 운동량의 분포를 포함 할 수 있도록 넓게 잡아야 하고, 스펙트럼은 잘 보일 수 있도록 매끄러운 곡선으로 나타나게 했다. 이때 결함을 측정하는 경우에는, 일반적으로 S값들이 증가하고, W값들은 감소한다 [17]. 데이터를 측정하는 경우 신호 대비 잡음은 한 방향 검출 방법인 DBPAS보다 대략 1,000배 정도 이상 좋아지며, 잡음은 주로 511 keV와 비슷한 영역의 컴퓨턴 산란 광자로부터 일어 날 수 있다. 화합

물 초전도체는 단위격자 구조가 상대적으로 크기 때문에 E. C. von Stetten 등 [18]의 고온 초전도에서와 비슷한 결과로 나타난다. Stetten에 의하면 양전자는 비 국소화된 상태로서 대부분 상전자가 분포되어 있는 O(1)의 근처에 있는 공공에서 소멸하는 것으로 O(1)−Cu(1)−O(4) 2 차원 평면에 있는 전자 밀도와 소멸함을 보여 주고 있다. Nb_3Ge 초전도체에서도 전이 온도 이하에서 총 전하 운반자는 변화가 없으나 초 전류의 생성으로 초전자와 양전자 소멸이 이루어지는 것보다는 초전도 내의 상전자와의 소멸로 인한 것으로 보여진다.

Fig. 3(a)와 Fig. 3(b)에서 상온으로부터 전이온도 이하의 온도에 따라서 S−변수 및 W−변수의 크기가 변하는 것은 첫째는 온도가 낮아짐으로 인하여 이온의 격자 반지름의 차이가 나타나기 때문이다. 입사에너지가 30 keV인 양전자는 시료에 따라 약간의 차이는 있지만 가우시안 최고치의 경우 표면으로 부터 약 1 μm 깊이까지 투과할 수 있다.

저에너지 양전자의 소멸에 의하여 S−변수 값은 양전자가 Ge−Nb 결합의 사이에 존재하는 빈자리에 트랩되고, 소멸하는 것으로 여겨진다. 그 이유는 온도에 따라 S−변수 값이 변하는데, Saini 등 [14]에 따르면 이것은 EXAFS 스펙트라에서 FT의 값이 온도가 내려 갈수록 Fig. 4에서와 같이 k^2의 값이 커지기 때문이다. 그에 따르면 이것은 Debye−Waller Factor의 온도의존성에 의하여서도 설명될 수 있을 것이다. 초전도 전이 온도 근처에서는 흥미로운 변화가 나타나는데, 이 변화는 고온 초전도체 [19]에서도 일부 나타나지만, 양전자 소멸 측정에서의 S−변수 값은 그러한 경향을 볼 수가 없다.

양전자의 경우에는 Debye−Waller Factor에 의한 온도의존성 보다는 양전자 소멸 현상이 결정 구조에 따른 빈자리 형태로서 주로 나타난다 [7,20]. 만일 트랩이 작으면, 트랩의 비율에 따라서 작아지며, 크면 양전자 열적 파장에 의한 트랩과의 상호작용에 따라서 값이 커지는 것을 알 수 있다. 반고전적 모델에 따르면 양전자의 트랩 비율은 2가지 형태로 나타나는데, 첫째 양전자가 열화 후 확산이 빈자리에 안착되는 경우와 둘째 트랩에 포획된 양전자의 주변에 의한 소멸율 때문이다. 일정한 양전자 트랩 핑 비율은 빈자리 안착과 트래핑의 포획의 중첩으로 나타나기 때문이다. 특히 시료내의 큰 공공(voids)에서는 일반적으로 트래핑 비율이 온도에 의존하게 되며, 저온에서는 양전자의 확산 상수가 크며, 다발(flux)은 일정하지만 고온으로 갈수록 일반적인 트래핑 비율은 커지고 양전자 흐름은 공공(voids) 근처에서 고갈되기 때문이다.

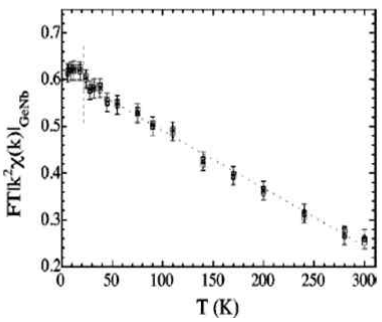


Figure 4. Temperature dependence of the Ge−Nb FT [14].

Ⅳ. 결 론

본 연구는 Nb_3Ge 특성을 저속양전자 빔을 이용하여 분석한 것이다. 저속 에너지와 2D 도플러 넓어짐 양전자 소멸 분광법을 사용하여 S−변수를 측정하였으며, 특히 기존의 단일 검출기를 이용한 소멸 분광법이 잡음의 비가 커서 데이터를 신뢰하기가 어렵기 때문에 신호 대비 잡음비가 1,000배 이상 좋은 2차원의 동시 계수 양전자 소멸 분광법으로 Nb_3Ge 시료를 측정하였다. 그 결과 온도의 변화에 따라 S 변수 값이 변화함을 알게 되었다. 그 이유는 시료내의 큰 공공(voids)에서는 일반적으로 트래핑 비율이 온도에 의존하게 되어 S 변수 값이 큰 폭으로 변화하는 것을 알 수 있었다. 상전이 근처에서 온도 변화에 따른 초전도성에 대한 양전자 소멸의 민감도는 상전자에서 소멸이 더 잘 발생하여 고온 초전도체의 특성과 비슷하다는 것을 알 수 있었다.

감사의 글

본 연구는 2010년도 한남대학교 학술 연구비 지원에 의해 수행하였습니다. 실험을 도와준 Tohoku 대학 Prof. K. Inoue와 Prof. Y. Nagai께 감사를 드립니다.

참고문헌

[1] P. Hautojarvi and C. Corbel, in: A. Dupasquier, A. P. Mills Jr. (Eds.), Positron Spectroscopy of Solids, IOS Press, Ohmsha, Amsterdam, 1995. p. 491.

[2] J. P. Schaffer, A. Rohatgi, A. B. DeWarld, R. L. Frost, and S. K. Pang, J. Elec. Mat. **18**, 737 (1989).

[3] A. P. Druzhkov, R. N. Yeshchenko, S. M. Klotsman, A. N. Martem'Yanov, and G. G. Taluts, Phys. Met. Metall. **66**, 117 (1988).

[4] J. L. Lee and J. T. Waber, Meta. Trans. **21a**, 2037 (1990).

[5] J. G. Shin, C. Y. Lee, S. H. Bae, J. H. Kim, and J. H. Kwon, Kor. J. Mater. Res. **18**, 427 (2008).

[6] B. Mantl and W. Triftshauser, Appl. Phys. **5**, 177 (1974).

[7] C. Y. Lee, W. N. Kang, Y. Nagai, K. Inoue, and M. Hasegawa, J. Kor. Vacuum Soc. **17**, 160 (2008).

[8] J. H. Kim, Y. Nagai, and C. Y. Lee, J. Kor. Vacuum Soc. **18**, 447 (2009).

[9] K. G. Lynn, J. R. MacDonald, R. A. Boie, L. C. Feldman, J. D. Gabbe, and M. F. Robbins, Phy. Rev. Lett. **38**, 241 (1977).

[10] K. G. Lynn, J. E. Dickman, W. L. Brown, and M. F. Robbins, Phy. Rev. B **20**, 3566 (1978).

[11] S. Ishibashi, A. Yamaguchi, Y. Suzuki, M. Doyama, H. Kumamura, and K. Togano, Jpn. J. Appl. Phys. **26**, L688 (1987).

[12] M. Chakrabarti, A. SarKar, D. Sanyal, G. P. Karwasz, and A. Zecca, Phys. Lett. A **321**, 376 (2004).

[13] N. N. Mikhailov, I. V. Voronova, O. A. Lavrova, E. V. Melnikov, and M. N. Smirnova, JETP Lett. **19**, 271 (1974).

[14] N. L. Saini, M. Filippi, H. Oyanagi, H. Ihara, A. Iyo, and A. Bianconi, Phys. Rev. B **68**, 104507 (2003).

[15] M. Fujinami, T. Sawada, and T. Akahane, Rad. Phys. Chem. **68**, 631 (2003).

[16] T. Onitsuka, M. Takenaka, H. Abe, E. Kuramoto, H. Ohkubo, Y. Nagai, and M. Hasegawa, Mater. Sci. Forum **445-446**, 168 (2004).

[17] J. H. Kim, Y. S. Lee, E. S. Chung, C. Y. Lee, and G. H. Lee, Phys. & High Tech. **11(3)**, 41 (2002).

[18] E. C. von Stetten, S. Berko, X. S. Li, R. R. Lee, J. Brynestad, D. Singh, H. Krakauer, W. E. Pickett and R. E. Cohen, Phys. Rev. Lett. **60**, 2198 (1988).

[19] N. L. Saini,, A. Bianconi, and H. Oyanagi, J. Phys. Soc. Jpn. **70**, 2092 (2001).

[20] R. M. Nieminen, J. Laakkonen, P. Hautojarvi, and A. Vehanen, Phys. Rev. B **19**, 1397 (1979).

≪Research Paper≫ Journal of the Korean Vacuum Society Vol.19 No.6, November 2010, pp.489~494

The Characterization of Nb_3Ge by Slow Positron Annihilation Spectroscopy

C. Y. Lee[a*] and S. H Bae[b]

[a]*Department of Physics, Hannam University, Taejon 306-791*
[b]*Department of Radiological Science, Konyang University, Taejon 302-718*

(Received August 25, 2010, Revised September 29, 2010, Accepted October 30, 2010)

Enhance signal-to-noise ratio, slow positron coincidence Doppler Broadening method has been applied to study of characteristics of Nb_3Ge superconductor film, which were performed from 20 K to 300 K sample temperature near Tc of it. In this investigation the numerical analysis of the Doppler spectra was employed to the determination of the shape parameter, S, defined as the ratio between the amount of counts in a central portion of the spectrum and the total counts of whole spectrum. The S-parameter values between 0.598 and 0.594 were decreased while the temperature were decreasing, that indicated the voids into the samples. The temperature dependence came from specific positron trapping rate into the vacancy-type defects. It is believed that the positrons annihilate with normal-electrons instead of super-electrons in the Nb_3Ge superconductor.

Keywords : Nb_3Ge, Superconductivity S-parameter, Slow positron, Positron annihilation, Phase Transition

* [E-mail] cylee@mail.hannam.ac.kr