

Transport properties of polycrystalline TaN_x thin films prepared by DC reactive magnetron sputtering method

Tae Jong Hwang^{a,*}, and Soon-Gil Jung^{b,c}

^a School of General Education, Yeungnam University, Gyeongsan, Korea

^b Center for Quantum Materials and Superconductivity (CQMS), Sungkyunkwan University, Suwon 16419, Korea

^c Department of Physics, Sungkyunkwan University, Suwon 16419, Korea

(Received 10 May 2021; revised or reviewed 24 May 2021; accepted 25 May 2021)

Abstract

We have investigated the electrical transport properties of polycrystalline tantalum nitride (TaN_x) films. Various compositions of tantalum (nitride) thin films have been deposited on SiO₂ substrates by reactive DC magnetron sputtering while changing the ratio of nitrogen partial pressure. The substrate temperature was maintained at 283 K during deposition. X-ray diffraction analyses indicated the presence of α -Ta and β -Ta phases in the Ta film deposited in pure argon atmosphere, while fcc-TaN_x phases appeared in the sputtering gas mixture of argon and nitrogen. The N/Ta atomic ratio in the film increased ranging from 0.36 to 1.07 for nitrogen partial pressure from 7 to 20.7%. The superconducting transition temperatures of the TaN_x thin films were measured to be greater than 3.86 K with a maximum of 5.34 K. The electrical resistivity of TaN_x thin film was in the range of 177-577 $\mu\Omega\text{cm}$ and increased with an increase in nitrogen content. The upper critical field at zero temperature for a TaN_{0.87} thin film was estimated to exceed 11.3 T, while it showed the lowest $T_c = 3.86$ K among the measured superconducting TaN_x thin films. We try to explain the behavior of the increase of the residual resistivity and the upper critical field for TaN_x thin films with the nitrogen content by using the combined role of the intergrain Coulomb effect and disorder effect by grain boundaries.

Keywords: TaN, superconductivity, upper critical field, intergrain Coulomb effect, disorder

1. INTRODUCTION

금속 질화물로 초전도 박막을 제작하면 화학적으로 안정된 성질을 가질 수 있고, 단일 금속 원소로 제작된 초전도 박막보다 초전도 전이온도 (T_c)를 높일 수 있다. 이러한 금속 질화물 초전도체중에서 탄탈륨 질화물 (tantalum nitride, TaN) 박막은 액체 헬륨의 끓는점(≈ 4.2 K)보다 높은 T_c 를 가지고 있어서 마이크로 전자소자 응용에 사용될 수 있는 박막 재료로 추천되고 있다. 특히 작은 초전도 띠 간격과 낮은 상태밀도의 특징을 가진 TaN 박막은 단일 광자 검출을 위한 기존의 NbN 박막을 대체할 만한 박막 재료로 쓰여진다 [1]. 그리고 저항이 정상 상태일 때 TaN 박막은 Cu 박막과 혼합되지 않아 적층구조에서 우수한 확산 장벽 재료로 쓰이며, 비저항의 온도 계수 (temperature coefficient)가 작아 저항체로 널리 쓰여지고 있다 [2-4].

반응성 증착 방법으로 제작된 TaN 박막은 입방체 구조로 단일상을 가지는 전이금속 질화물인 TiN_x와 δ -NbN_x에 비하여 박막에 포함된 질소 조성비에 따라 다양한 평형상 (equilibrium phase)을 가지고 있다. TaN 박막은 체심 입방 (body-centered cubic, bcc)-TaN, 육방 밀집 (hexagonal close-packed, hcp)-Ta₂N, 육방 밀집 (hcp)-TaN, 면심 입방 (face centered cubic, fcc)-TaN_x, 육방 (hexagonal)-TaN, 육방 (hexagonal)-Ta₅N₆, 정방 (tetragonal)-Ta₄N₅ 그리고 직방 정계 (orthorhombic)-Ta₃N₅ 등 다양한 구조로 된 상으로 존재한다 [5, 6].

초전도특성을 보이는 TaN 박막은 fcc-TaN_x 구조이고, $x \sim 1$ 일 때 보통 8.15 K의 T_c 를 가지고 있으며, 증착 변수가 잘 조절된 fcc-TaN_x 박막의 경우 10.8 K 정도의 상대적으로 높은 T_c 를 나타낸다 [7]. TaN_x 박막의 초전도특성을 최적화하기 위한 방법은 원소 조성 비 (N/Ta), 스퍼터링 파워, 증착 온도 등을 조절하는 것이다. 질소분압비 (P_{N_2}/P_{Ar+N_2})의 변화에 따른 TaN_x 박막의 상온에서의 비저항 값은 질소분압비가 증가할수록 단조로운 증가를 보인다 [8]. 이러한 비저항의 특성은 박막의 원소 구성비 및 결정 구조의 변화로 설명되었다 [2, 5].

TaN_x 박막은 fcc 구조일 때 비저항의 온도 계수를 측정하면 음수의 값을 가진다. 음인 비저항의 온도 계수의 특성은 약 국소화 효과 (weak-localization effect) [9], 호핑 전도 (hopping conduction) 및 전자-전자 상호 작용 (electron-electron interaction effect) [10, 11], 결정립 간의 쿨롱 효과 (intergrain Coulomb effect) [12, 13] 등으로 설명되고 있으며 여전히 논쟁의 대상이다.

초전도특성을 나타내는 TaN_x 박막은 대부분 높은 온도에서 제작되었고 이들 시료에 대한 초전도 물성이 연구·보고되었다 [3, 4, 14, 15]. 하지만 소자 제작에 있어 보다 많은 장점을 가지는 저온에서의 TaN_x 박막 제작 및 이에 대한 초전도특성 연구는 아직 미미한 상황이다. 본 논문에서는 질소분압비를 변화시키면서 상온에서 스퍼터링 증착 방법으로 TaN_x 초전도 박막을 제작하고, 질소분압비에 따른 질소 원소의 함량과 TaN_x 박막의 구조를 분석하였다. 그리고 질소 원소 함량에 따른 TaN_x 박막의 전기적 수송 특성을 초전도 상태와 정상 상태에서 조사하였다.

* Corresponding author: rjonadan@yu.ac.kr

2. EXPERIMENTAL DETAILS

Ta 박막과 TaN 박막은 반응성 DC 스퍼터링 방법으로 순도 99.95 %인 Ta 타겟을 이용하여 SiO₂ 기판 위에 성장되었다. SiO₂ 기판은 초음파 진동 하에서 아세톤과 에탄올로 순차적으로 세척되었다. 박막을 제작할 때, 기판 홀더의 온도는 냉각수 순환 펌프를 이용하여 283 K 가 되도록 하였다. 증착 시스템의 2 인치 Ta 타겟과 기판 사이의 거리는 10 cm 이고, 기본 압력은 터보 펌프를 이용하여 3×10^{-7} mbar 이하가 되도록 하였다. TaN_x 박막은 Ar 가스의 유량을 일정하게 유지하고 N₂ 가스의 유량을 조절하여 제작되었다. 그리고 N₂ 가스의 유량계 조절기는 유량을 미세하게 변화시키기 위하여 Ar 가스의 유량계 조절기보다 20 배 큰 감도의 유량계를 사용하였다. 박막을 제작할 때 DC 전력공급장치의 평균 전력은 140 W 였다. 혼합 가스 (N₂+Ar)에서 질소분압비를 $PN = \frac{P_{N_2}}{P_{Ar}+P_{N_2}} \times 100\%$ 로 정의할 때, TaN_x 박막을 제작할 때 PN 수치는 0, 7, 8.6, 12.7, 15.3, 16, 18, 18.7, 19.3 그리고 20.7%이었다.

제작된 TaN 박막의 구성은 전기적 특성을 측정하기 위한 시편과 XRD 분석을 하기 위한 시편으로, PN 변화에 따라 각각 한 세트 씩 준비되었다. 전기적 수송 특성을 측정하기 위한 TaN_x 박막은 금속마스크를 이용하여 사단자 패턴으로 형성되었고, 이들의 전기적 수송 특성은 물성특성측정장비 (PPMS)을 이용하여 측정되었다. 비저항을 측정하기 위한 TaN_x 박막의 두께는 표면단차측정기 (surface profiler)로 측정되었고, PN 변화에 따른 TaN_x 박막의 구조와 원소 조성비는 X-선 회절분석기 (XRD)와 에너지 분산형 X-선 검출기 (EDS)로 조사되었다. TaN_x 박막에서 EDS 로 측정된 질소 원소 조성비는 $x = N/Ta$ 로 정의된다.

3. RESULTS AND DISCUSSION

PN 수치를 0 에서 20.7%까지 변화면서 제작된 TaN_x 박막에서 EDS 로 측정된 x 값은 0, 0.36, 0.61, 0.64, 0.72, 0.78, 0.82, 0.85, 0.87 그리고 1.07 의 크기를 보였다. 그림 1 은 PN 변화에 따른 순수 Ta 박막과 TaN_x 박막의 XRD 측정 결과이고, 관측된 박막의 XRD 피크는 그림에 지표로 각각 표시되었다. 순수 Ta 박막은 α-Ta와 β-Ta 상인 XRD 피크가 혼합된 결과를 보였다. α-Ta 상은 38.4° 와 69.5° 인 2θ에서 (110)과 (211)의 성장을 보였고, β-Ta

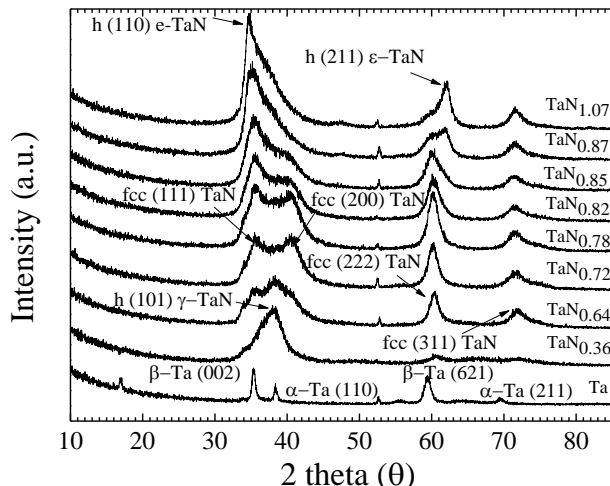


Fig. 1. X-ray diffraction patterns of TaN_x films deposited at 283 K on SiO₂ substrates at the different N/Ta ratio x.

상은 35.3° 와 59.4° 인 2θ에서 (002)과 (621)의 성장을 나타내었다. Ta 박막의 β-Ta 상의 혼합은 낮은 온도에서 스퍼터링 증착 방법으로 성장되는 경우 종종 관측된다 [16]. 그리고 스퍼터링 파워 또는 증착 압력에 변화를 준 실험 결과에서도 유사하게 α-Ta와 β-Ta가 혼합된 XRD 피크의 특징을 보였다 [16]. TaN_{0.36} 박막은 38.2° 와 60.5° 인 2θ에서 각각 hcp-γ-Ta₂N 와 fcc-TaN_x (220) 구조를 보였다 [7, 17]. PN 수치를 12.7%로 증가하여 제작한 TaN_{0.64} 박막은 35.6° 와 71.8° 인 2θ에서 각각 새로운 fcc-TaN_x의 (111)과 (311) 피크를 나타내었다 [17]. hcp-γ-Ta₂N 에 해당하는 피크는 TaN_{0.64} 박막에서도 관측되었으며, fcc-TaN_x (220)에 해당하는 피크는 TaN_{0.36} 박막에 비해 TaN_{0.64} 박막에서 보다 명확히 관측되었다. TaN_{0.72-0.87} 박막은 40.5° 인 2θ에서 fcc-TaN_x (200) 구조의 새로운 XRD 피크를 보였다 [17]. 한편으로 fcc-TaN_x (200)에 해당하는 피크는 PN 크기를 증가할수록 fcc-TaN_x (111)에 해당하는 피크에 비해 피크의 높이가 점차적으로 낮아졌다. TaN_{0.87} 박막은 62° 인 2θ에서 새로운 hcp-ε-TaN (211)인 피크를 보이고 [17], 34.6° 인 2θ에서도 약하게 XRD 피크의 흔적을 보여주고 있다. 34.6° 인 2θ에서 관측되는 hcp-ε-TaN (110)에 해당하는 피크는 TaN_{1.07} 박막에서 뚜렷이 구분되었다 [18]. TaN_{1.07} 박막에서는 fcc-TaN_x에 해당하는 피크를 보이지 않았고 hcp-ε-TaN (110), (211)에 해당하는 피크만 관측되었다.

그림 2(a)는 Ta 와 TaN_x 박막의 온도 변화에 따른 비저항의 곡선이다. T_c는 10 K 일 때의 비저항 크기를 기준으로 비저항 값이 반으로 감소될 때의 온도로 정의하였으며, 질소 원소 조성비에 따른 T_c의 값은 그림 2(b)에 나타내었다. 순수 Ta 박막은 약결합 결정립 경계때문에 영의 저항을 나타내지 않는 결정립 초전도성을 보였으며, TaN_{0.82} 박막에서 5.34 K 의 가장 높은 T_c를 나타냈다. TaN_x 박막의 T_c는 x = 0.36 에서 0.82 까지 변할 때 3.94 에서 5.34 K 까지 전반적으로 증가하는 경향성을 보였다. 그리고 T_c는 TaN_{0.85} 박막에서부터 낮아졌고, TaN_{1.07} 박막에서는 초전도 전이를 관측할 수 없었다.

Greene 그룹에서의 연구 결과에 의하면, MgO 기판을 이용하여 873 K에서 성장된 TaN_x 박막은 x = 0.94 에서 8.45 K 의 최고 T_c를 보였고 x = 1.37 에서도 초전도성을 보였다 [5]. 동일한 고온에서 석영 유리 기판과 TaN 타겟을 이용하여 제작된 TaN_x 박막은 x = 1.16 에서 3.3 K 인 최고 T_c를 보였다 [11]. 본 연구에서 283 K 에서 제작된 박막들에서 최고 T_c 일 때의 x 수치는 0.82 로 고온에서 제작된 박막과 비교하면 상대적으로 낮은 값이다.

TaN_x 박막은 입방상 (cubic phase), 육방상 (hexagonal phase), 정방상 (tetragonal phase) 등의 결정 상을 가진다. 그 중에서 육방상과 정방상은 열역학적으로 안정된 상이나 초전도 전이를 나타내지 않는 반면 입방상은 초전도성을 가진다고 보고되었다 [4]. TaN_x 박막의 XRD 분석에서 TaN_{0.36-0.64} 박막은 38.2° 인 2θ에서 육방상이 관측되고 더불어 60.5° 인 2θ에서 입방상의 피크도 관측되었다. TaN_{0.72-0.87} 박막에서는 fcc-TaN_x 구조에 해당하는 여러 개의 입방상만 관측되었다. 반면에 초전도성이 나타나지 않는 TaN_{1.07} 박막에서는 60.5° 인 2θ에서 나타나는 입방상의 XRD 피크를 보이지 않고 육방상만 관측되었다. 이는 구조적 관점에서 TaN_x 박막의 초전도성을 연구한 결과와 잘 일치하였다 [7].

그림 2(b)는 x = N/Ta인 원소 조성비 변화에 따른 10 K와 280 K에서 측정한 비저항 값의 결과이다. 제작된 순수 Ta 박막의 비저항은 상온에서 177 μΩcm의 크기를 보였다. α-Ta상의 비저항은 15 - 30 μΩcm이고, β-Ta 상의 비저항은

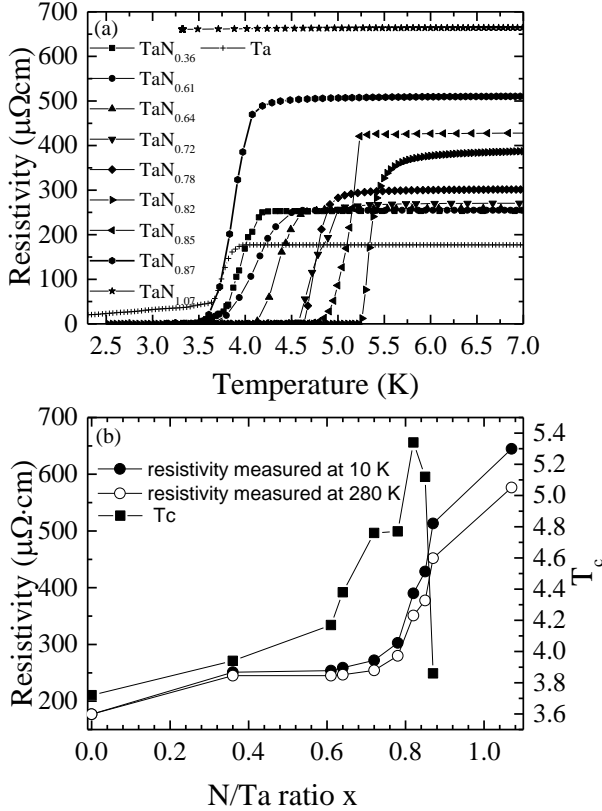


Fig. 2 (a) Resistivity versus temperature for a series of TaN_x films. The T_c of a series of the TaN_x is defined as the half of the resistance of the normal state resistance at 10 K and listed in the figure. (b) The resistivity as a function of the N/Ta ratio x measured at 10 K and 280 K, respectively.

$\sim 150 - 200 \mu\Omega\text{cm}$ 정도의 크기를 가진다고 보고되었다 [19].

비저항의 크기로 판단하면, 현 Ta 박막은 β -Ta 상의 특성을 보다 많이 나타내는 것으로 여겨진다. 그림 1의 순수 Ta 박막의 XRD 피크의 특성에서 α -Ta 상보다 β -Ta 상의 세기가 큰 것을 확인할 수 있으며, 이러한 XRD 피크의 특성은 비저항의 크기와 어긋나지 않는다. TaN_x 박막의 상온 비저항은 $x = 0.36$ 에서 0.64까지 바뀔 때 250에서 260 $\mu\Omega\text{cm}$ 까지 작은 증가 추세를 보이다가, $x = 0.72$ 에서 1.07까지 변화에서는 271에서 665 $\mu\Omega\text{cm}$ 까지 가파르게 증가하는 양상을 보였다. T_c 가 가장 높은 TaN_{0.82} 박막의 비저항은 351 $\mu\Omega\text{cm}$ 이었고 고온 성장된 TaN_x 박막에 비해 다소 큰 수치를 보였다. 참고로 고온에서 성장된 TaN_x 박막은 200 $\mu\Omega\text{cm}$ 보다 작은 크기의 비저항을 가진다고 보고되었다 [2]. 10 K에서 측정된 x 의 수치에 대한 비저항의 경향성은 상온에서 측정된 비저항과 거의 유사한 양상을 보인다. 다만 10 K의 비저항이 상온 비저항보다 약간 크게 나타났다. 잔류저항비 (RRR)를 구해보면 x 의 수치가 증가할수록 RRR 값이 약간씩 줄어드는 경향성을 보였다.

TaN_{0.82} 박막에 대하여 자기장 하에서 온도에 따른 비저항을 측정된 결과를 그림 3(a)에 나타내었다. 이 때, 인가한 자기장은 0-6 T 범위 내에서 박막 면에 수직방향이다. 여기서 $T_c(B)$ 는 10 K일 때 비저항의 크기가 정상 상태의 반으로 줄어들었을 때의 온도로 정하였다. TaN_{0.82} 박막의 T_c 는 자기장을 0에서 6 T까지 변화하는 동안 5.34에서 2.4 K까지 변화하였으며, 전이 폭에 해당하는 ΔT_c 는 0 T에서 0.42 K, 6 T에서는 0.65 K이다. 다른 TaN_x

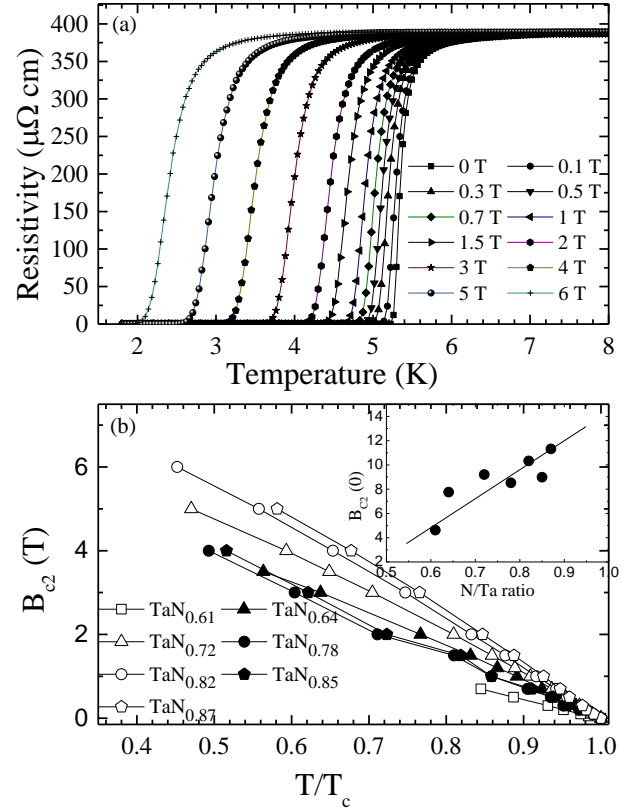


Fig. 3. (a) The variation of resistivity of TaN_{0.82} film as a function of temperature for magnetic fields from 0 to 6 T. (b) The variation of B_{c2} as a function of temperature, with B_{c2} being defined as the field where the resistance is the half of the normal state resistance at 10 K. The inset shows the variation of $B_{c2}(0)$ as a function of the N/Ta ratio x and the solid line in figure is a guide to the eye.

박막들의 ΔT_c 도 TaN_{0.82} 박막의 경우와 유사한 결과를 보였다.

그림 3(b)는 상부임계자기장 (B_{c2})을 규격화된 온도 ($t = T/T_c$)의 함수로 나타낸 결과이다. 그림에서 보여지듯이 측정된 구간에서 대략 $B_{c2}(T) \sim (1-t)$ 의 의존성을 보인다. 이는 박막에 수직방향으로 자기장이 가해진 경우, B_{c2} 는 결맞음길이 (coherence length: ξ)에 의해서만 결정되기 때문이다. 결맞음길이의 온도 의존성은 T_c 근처에서 $\xi(T) = \xi(0)/\sqrt{1-t}$ 인 식으로 주어지는데, 결맞음길이와 상부임계자기장 간의 관계식인 $\xi^2 = \Phi_0/2\pi B_{c2}$ 로부터, T_c 근처에서 B_{c2} 의 온도의존성이 $(1-t)$ 에 대해 선형적으로 나타남을 알 수 있다.

그림 3(b)의 삽화는 전체 온도 영역에서 $B_{c2}(T) = B_{c2}(0)(1-t)$ 의 관계식이 성립한다고 가정하고 구한 0 K일 때 $B_{c2}(0)$ 에 대한 것이다. 여기서 $x \geq 0.61$ 일 때 $B_{c2}(0)$ 는 4 T보다 크게 나타났으며, x 의 수치가 증가할수록 $B_{c2}(0)$ 의 크기도 전반적으로 증가하는 양상을 보였다. 가장 높은 T_c 를 보이는 TaN_{0.82} 박막의 $B_{c2}(0)$ 는 ~ 10.3 T로 추정되었고, 이 크기는 석영 유리 기판에 증착된 TaN_x 박막의 $B_{c2}(0) \sim 9$ T와 유사한 결과이다 [11]. 특히 T_c 가 3.86 K인 TaN_{0.87} 박막의 경우 $B_{c2}(0) \sim 11.3$ T로 제작된 TaN_x 박막 중에서 가장 높은 $B_{c2}(0)$ 의 값을 보였다. $\xi^2 = \Phi_0/2\pi B_{c2}$ 를 적용하여 $\xi(0)$ 를 구하면 TaN_{0.82} 박막에서 56 nm가 되고, TaN_{0.87} 박막에서는 53 nm가 된다.

작은 에너지 간격을 가진 다결정 초전도 박막에서 결정립

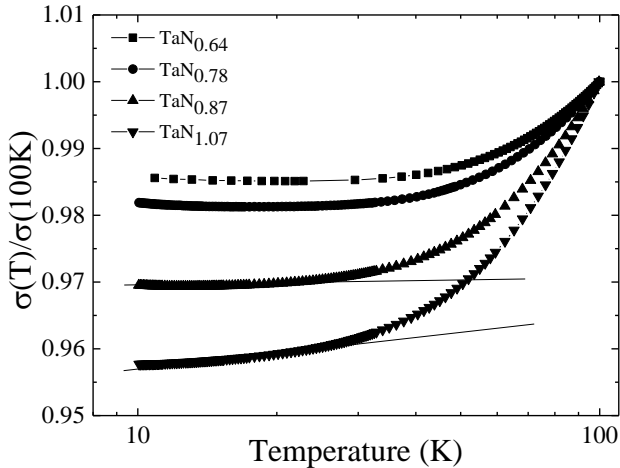


Fig. 4. Normalized conductivities versus temperature from 10 to 100 K for the polycrystalline TaN_x films. The solid line in figure is a guide to the linear slope.

효과는 초전도성을 위축시켜 T_c 를 낮게 만든다. 예로서, Nb 박막의 경우 결정립의 크기가 작으면서 이웃한 결정립 사이에 Nb₂O₃와 같은 산화물이 생성되면 Nb 박막의 T_c 가 낮아지는 결과가 나타난다 [20]. 본 연구에서 제작된 TaN_x 박막의 최고 T_c 는 5.34 K으로 고온 증착된 결과인 8.45 K와 비교할 때 낮게 나왔다. 고온 증착된 박막에 비해 상온 증착된 TaN_x 박막의 T_c 가 낮은 하나의 원인으로 Nb의 경우와 유사하게 Ta이 고르게 질화되지 못하고, 결정립 내부에 비해 더 높은 질소 원소비를 가진 TaN이 결정립 경계에 생성됨을 들 수 있다. 앞서 설명되었 듯이 상온 증착의 경우 $x = 1.07$ 이상에서는 초전도성을 보이지 않았으나 고온 증착된 시료에서는 $x = 1.37$ 에서도 초전도성을 보였다. 이는 고온 증착 과정에서 질화가 더 고르게 일어난다는 점을 반영한다. 본 시료의 경우 고온 증착의 경우 보다 상대적으로 질소 함유량이 높은 결정립계가 형성되어 TaN_x 박막의 초전도성을 위축시킨다고 볼 수 있다.

전도체-절연체로 구성된 결정립 구조에서 전기적 수송 특성에 대하여 다방면에서 연구가 진행되어왔다. 그 중에서 전도체-절연체로 구성된 결정립 구조의 박막에서 온도에 따른 전도도(σ)의 특성은 결정립 간의 쿨롱 효과로 인해 $\Delta\sigma \sim \frac{e^2}{\pi h} \ln(T)$ 를 따른다고 한다 [12, 21]. 그림4는 10에서 100 K까지 온도 변화에 따른 규격화된 전도도를 나타낸 곡선이다. 이 온도 영역에서 TaN_{0.72} 박막과 TaN_{0.78} 박막의 규격화된 전도도는 $\ln T$ 의 변화에 대하여 음의 기울기를 보인 반면, PN수치가 큰 환경에서 제작된 TaN_{0.87} 박막과 TaN_{1.07} 박막의 규격화된 전도도는 양의 기울기를 보였다. 즉 10에서 20 K까지 온도에서 TaN_x 박막의 온도에 따른 전도도의 변화는 PN 크기가 증가할수록 음의 기울기에서 양인 기울기로 변하는 양상을 보인다. 그림4에 나타난 4개의 시료 중에서 질소량이 높은 TaN_{0.87} 박막과 TaN_{1.07} 박막의 저온 정상상태의 전도현상은 결정립 간의 쿨롱효과로 정성적으로 설명될 수 있다. 즉 높은 질소 함량의 경우 결정립계가 절연체가 된다는 점인데, 절연체라 하여도 결정립계의 두께가 충분히 얇으면 이를 통한 조셉슨 결합으로 초전도성이 유지 될 수 있다. 아마도 TaN_{0.87} 박막은 이 경우에 해당된다고 생각된다. 이러한 결정입계는 TaN_x 박막의 비저항을 증가시키는 요인으로도 작용하여 TaN_{0.87} 박막과 TaN_{1.07} 박막의 비저항이 다른 시료에 비해 훨씬 더 크게 나타나는 결과를 보인다.

그림 3(b)의 삽화에서, 3.86 K의 낮은 T_c 를 보였던 TaN_{0.87} 박막이 가장 큰 $B_{c2}(0)$ 를 가짐을 알 수 있었다. 이 현상은, 질소 함량이 적당하게 증가하면 초전도성은 비록 위축되긴 하지만, 결정립계에 존재하는 TaN에 의해서 무질서도(disorder)가 증가하고 이로 인해 전자의 평균 자유 행로가 짧아짐에 따라 결맞음길이가 감소해서 $B_{c2}(0)$ 가 증가하는 것으로 여겨진다 [22]. 나노결정 물질에서 무질서도는 결정립의 크기보다 아주 작은 평균 자유 행로를 유도하여 $B_{c2}(0)$ 를 증가시킨다는 결론과 본 연구의 결론과 유사하다고 생각된다 [23]. 이들보다 낮은 질소 원소비의 박막에서는 결정립계에 의한 무질서도가 수송현상 및 초전도 특성에 전반적 영향을 미치는 것으로 여겨진다.

4. CONCLUSION

DC 반응성 스퍼터링 방법으로 PN 크기를 7에서 20.7%까지 변화시키면서 TaN_x ($0.36 \leq x \leq 1.07$) 박막을 제작하였다. 제작된 TaN_x 박막의 구조는 XRD 분석에서 PN 크기가 증가할수록 육방상과 입방상이 혼합된 상태에서 입방상으로 바뀌다가 최종적으로 육방상으로 변하는 것을 보았다. 입방 상인 TaN_{0.82} 박막은 5.34 K인 최고 T_c 를 보였고, 상온에서 $351 \mu\Omega\text{cm}$ 인 비저항의 크기를 보였다. TaN_x 박막의 온도에 따른 B_{c2} 를 측정하였을 때 TaN_{0.87} 박막이 가장 높은 $B_{c2}(0) = 11.3$ T를 보였다. 질소 원소비 x 값이 증가할수록 TaN_x 박막의 $B_{c2}(0)$ 와 비저항 값은 전반적으로 증가하는 추세를 보였고, 10에서 20 K까지 규격화된 전도도는 $\ln T$ 에 대하여 음의 기울기에서 양의 기울기의 선형적 변화로 바뀌었다. 온도에 따른 전도도를 측정할 결과로부터 $x \geq 0.87$ 인 시료에서 저온 정상상태의 전도현상은 결정립 간의 쿨롱효과로 설명될 수 있었다. 그리고 박막의 질소 함량 증가에 따른 무질서 증가는 전자의 평균 자유 거리를 줄어든게 함으로서 $B_{c2}(0)$ 와 비저항의 특성에도 전반적으로 영향을 주는 것으로 유추할 수 있었다.

ACKNOWLEDGMENT

This work was supported by a National Research Foundation (NRF) of Korea grant funded by the Korean Ministry of Science, ICT and Planning (No. 2012R1A3A2048816).

REFERENCES

- [1] K. Il'in, M. Hofherr, D. Rall, M. Siegel, A. Semenov, A. Engel, K. Inderbitzin, A. Aeschbacher, and A. Schilling, "Ultra-thin TaN film for superconducting nanowire single-photon detectors," *J. Low Temp. Phys.*, vol. 167, pp. 809-814, 2012.
- [2] N. Arshi, J. Lu, Y. K. Joo, J. H. Yoon, and B. H. Koo, "Effects of nitrogen composition on the resistivity of reactively sputtered TaN thin films," *Surf. Interface Anal.*, vol. 47, pp. 154-160, 2015.
- [3] T. Oku, E. Kawakami, M. Uekubo, K. Takahiro, S. Yamaguchi, and M. Murakami, "Diffusion barrier property of TaN between Si and Cu," *Appl. Surf. Sci.*, vol. 99, pp. 265-272, 1996.
- [4] T. Riekkinen, J. Molarius, T. Laurila, A. Nurmela, I. Suni, and J. K. Kivilahti, "Reactive sputter deposition and properties of Ta_xN thin films," *Microelectron. Eng.*, vol. 64, pp. 289-297, 2002.
- [5] C. S. Shin, D. Gall, Y. W. Kim, P. Desjardins, I. Petrov, J. E. Greene, M. Odén, and L. Hultma, "Epitaxial NaCl structure δ -TaN_x(001): Electronic transport properties, elastic modulus, and

- hardness versus N/Ta ratio.” *J. Appl. Phys.*, vol. 90, pp. 2873-2885, 2001.
- [6] N. Terao, “Structure of tantalum nitrides,” *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 10, pp. 248-259, 1971.
- [7] S. Chaudhuri, L. J. Maasilta, L. Chandernagor, M. Ging, and M. Lahtinen, “Fabrication of superconducting tantalum nitride thin films using infrared pulsed laser deposition,” *J. Vac. Sci. Technol.*, vol. 31, pp. 061502-061506, 2013.
- [8] K. Radhakrishnan, N. G. Ing, R. Gopalakrishnan, “Reactive sputter deposition and characterization of tantalum nitride thin films,” *Mater. Sci. Eng. B*, vol. 57, pp. 224-227, 1999.
- [9] A. Tiwari, H. Wang, D. Kumar, and J. Naryan, “Weak-localization effect in single crystal TaN(001) films,” *Mod. Phys. Lett. B*, vol. 16, pp. 1143-1149, 2002.
- [10] K. Lal, P. Ghosh, D. Biswas, A. K. Meikap, S. K. Chattopadhyay, S. K. Chatterjee, M. Ghosh, K. Baba, and R. Hatada, “A low temperature study of electron transport properties of tantalum nitride thin films prepared by ion beam assisted deposition,” *Solid State Commun.*, vol. 131, pp. 479-484, 2004.
- [11] M. Očko, S. Žonja, G. L. Nelson, J. K. Freericks, L. Yu, and N. Newman, “Low-temperature transport properties of Ta_xN thin films (0.72 ≤ x ≤ 0.83),” *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 43, pp. 445405-445416, 2010.
- [12] R. Sachser, F. Porrati, C. H. Schwalb, and M. Huth, “Universal conductance correction in a tunable strongly coupled nanogranular metal,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 107, pp. 206803-206807, 2011.
- [13] Y. C. Sun, S. S. Yeh, and J. J. Lin, “Conductivity and tunneling density of states in granular Cr films,” *Phys. Rev. B*, vol. 82, pp. 054203-054209, 2010.
- [14] R. Li, X. Z. Duan, X. Zhu, Y. Yang, D. B. Zhou, and Z. Q. Li, “Granular-composite-like electrical transport properties of polycrystalline cubic TaN_x thin films prepared by rf sputtering method,” *Solid State Commun.*, vol. 279, pp. 34-38, 2018.
- [15] N. P. Breznay, M. Tendulkar, L. Zhang, S. C. Lee, and A. Kapitulnik, “Superconductor to weak-insulator transitions in disordered tantalum nitride films,” *Phys. Rev. B*, vol. 96, pp. 134522-134530, 2017.
- [16] A. A. Navid and A. M. Hodge, “Nanostructured alpha and beta tantalum formation-Relationship between plasma parameters and microstructure,” *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 536, pp. 49-56, 2012.
- [17] C. S. Shin, Y. W. Kim, D. Gall, J. E. Greene, and I. Petrov, “Phase composition and microstructure of polycrystalline and epitaxial TaN_x layers grown on oxidized Si(001) and MgO(001) by reactive magnetron sputter deposition.” *Thin Solid Films*, vol. 402, pp. 172-182, 2002.
- [18] S. M. Kang, S. G. Yoon, S. J. Suh, and D. H. Yoon, “Control of electrical resistivity of TaN thin films by reactive sputtering for embedded passive resistors,” *Thin Solid Films*, vol. 516, pp. 3568-3571, 2008.
- [19] J. J. Senkevich, T. Karabacak, D. L. Bae, and T. S. Cale, “Formation of body-centered-cubic tantalum via sputtering on low-κ dielectrics at low temperatures,” *J. Vac. Sci. Technol. B*, vol. 24, pp. 534-538, 2006.
- [20] S. Bose, P. Raychaudhuri, R. Banerjee, P. Vasa, and P. Ayyub, “Mechanism of the size dependence of the superconducting transition of nanostructured Nb,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 95, pp. 147003-147006, 2005.
- [21] K. B. Efetov and A. Tschersich, “Coulomb effects in granular materials at not very low temperatures,” *Phys. Rev. B*, vol. 67, pp. 174205-174219, 2003.
- [22] V.L. Ginzburg and L.D. Landau., “On the theory of superconductivity,” *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* vol. 20, pp. 1064-1082, 1950.
- [23] H. J. Niu and D. P. Hampshire, “Disordered nanocrystalline superconducting PbMo₆S₈ with a very large upper critical field,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 91, pp. 027002-027005, 2003.