

## 고온 초전도체 $Y_{1-x}Ho_xBa_2Cu_3O_{7-y}$ 의 초전도성에 관한 연구

김 채욱, 김 재욱, 김 의훈, 나 훈균\*

한양대학교 자연과학대학 물리학과, \*기초과학 지원센터

초록 : 고온 초전도체  $Y_{1-x}Ho_xBa_2Cu_3O_{7-y}$  에서 Y 대신 Ho 를 치환시킨 시료를 제작하여 수송 임계전류밀도를 측정하였으며, 적외선 투과율과 Raman 스펙트럼 측정을 상온에서 실시하였다. 특히 Raman 측정은 수직으로 편광한 경우와 수평으로 편광한 경우를 비교하였다. 치환량의 변화에 따른 수송 임계전류밀도 값은  $110\sim 217 A/cm^2$  범위에 있었고 자기장이 증가됨에 따라 감소됨을 알 수있었다. 적외선 투과율과 Raman 스펙트럼 측정으로부터 얻은 Cu(1)-O(4) stretching mode는 초전도체의 결정 구조를 좌우하며 산소의 영향에 강한 영향을 받는다. 또한 이것은 치환량이 증가됨에 따라 감소하는 경향을 보였다. Raman 스펙트럼에서 수직 편광한 경우와 수평 편광한 경우 모두 asymmetric 한 형태를 이루었다. 특히 수평 편광한 경우는  $BaCuO_2$  phase의 강도가 증가했다.

### I. 서 론

1987년 초에 Chu<sup>1)</sup> 등에 의해서 처음으로 질소의 액화온도보다 훨씬 높은 90K 이상에서 초전도체가 되는 Y-Ba-Cu-O 계가 발견되었고, 그 단일상의 조성식은  $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-y}$  이며 Y 대신에 여러가지 희토류 원소를 대치 하여도 동일한 구조인 산소 결핍형 perovskite 임이 알려진 후 산소의 이탈에 의해 직방정계에서 정방정계로 바뀌면서 초전도성을 잃어버리게 된다는 사실이 일련의 중성자 회절실험<sup>2)</sup>에 의해서 확인되었다.

고온 초전도체에서 적외선 흡수가 일어난다는 것은 강한 광학적 phonon 현상으로 인한 공명 현상에 의한 것이라는 발표가 있었고, 이 적외선 현상은 산화물 초전도체에서 매우 특이하고<sup>3)</sup> low-lying electronic mode를 나타낼 수 있으리라고 생각된다.

$Y_1Ba_2Cu_3O_7$ 에 대한 Raman 스펙트럼은 10K~300K 범위의 온도에서 측정되었으며<sup>4)</sup>, 정상 상태와 초전도 상태라는 특이한 상태를 가지고 있다. 정상 상태에서 Cu-O 평면내에서 편광된 것은 에너지와는 무관하게 강한 전자기적인 연속성을 갖고 있으며 초전도 상태에서는 에너지에 의존된다고 발표되었다<sup>5)</sup>.  $YBa_2Cu_3O_7$ 과 유사하게  $HoBa_2Cu_3O_7$  초전도체도  $CuO_2$  평면, Cu-O chains, 그리고 단위세포에서의 산소의 양과 같은 고온 초전도체의 필수적인 특징을 갖고 있으리라 생각된다. 또한 Raman 스펙트럼의 편광의존성은 격자 운동과 산소의 결핍을 이해하는데 중요한 자료가 되며, 몇몇의 진동하는 Raman Band는 편광에 강하게 의존한다. 그리고 산소 vacancy disorder와 관련된  $500\sim 600\text{ cm}^{-1}$  범위의 진동수에서는 broad한 특징을 갖고 있다<sup>6)</sup>.

본 연구에서는 자기장이 인가 되지 않는 경우와 인가된 경우에 있어서 치환량의 변화에 따른 수송 임계전류밀도를 측정하였다. 적외선 투과율과 Raman 스펙트럼을 측정하여 Cu-O stretching mode의 변화를 알아 보았다. Raman 스펙트럼에서 수직 편광한 경우와 수평 편광한 경우를 비교하여 보았다.

### II. 실험 방법

실험에 사용한 시료는 고상 반응법으로 제작하였으며, 수송 임계전류 밀도는 4단자 방법을 이용하여 측정 하였고  $1\mu V$ 의 전위차가 발생하는 전류를 임계전류( $I_c$ )로 정하여 수송 임계전류밀도를 결정하였다. 여기서 인가된 자기장은 Helmholtz coil 을 이용하여 전류값으로

환산한 값이다. 적외선 투과율 측정은 KBr 방법으로 하였고 실온에서 파수범위 400 ~ 1000 $\text{cm}^{-1}$ 로 scanning 하였다. Raman spectrum측정은 후방 산란 방법을 이용하였으며, pellet 시료를 가지고 실온에서 100 ~ 700  $\text{cm}^{-1}$  범위에서 측정된 것이다. 이때 레이저 광원은 Nd<sup>3+</sup> YAG 레이저의 SHG 광인 532 nm ( 100mW ) 를 사용하였다.

### III. 결과 및 고찰

그림 1 에는 치환량의 변화에 따른 수송 임계전류밀도( $J_c$ )의 변화를 나타내었으며, 수송 임계전류밀도의 값은 110 ~ 217  $\text{A}/\text{cm}^2$  범위에 있었다. 그림 2 에는 자기장이 인가되었을 때의 수송 임계전류밀도의 변화를 나타내었다. 여기서 자기장은 Helmholtz coil을 이용하여 가한 전류를 환산한 값이다. 자기장이 증가 함에 따라 수송 임계전류밀도의 값은 감소하였다. 이와같이 약한 자기장하에서도  $J_c$ 가 감소하는 것은 임계전류가 임계면에서 작아지면 입자내에서는 아무리 임계밀도가 높다하더라도 수송 임계전류밀도는 낮아질 수 밖에 없는 것이다. 또한 임계면이 초전도체가 아니기 때문에 bulk형 고온 초전도체는 수 많은 조셉슨 접합을 직렬 및 병렬로 연결한 형태가 되므로 전류밀도가 낮고 낮은 자기장하에서도 민감하게 변하는 것이다.

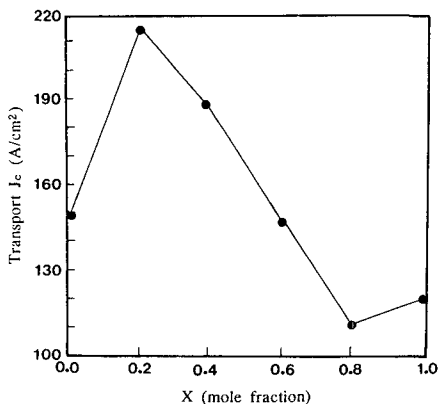


Fig.1. The variation of transport critical current densities at 77K as a function of Ho concentration X in  $\text{Y}_{1-x}\text{Ho}_x\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}$ .

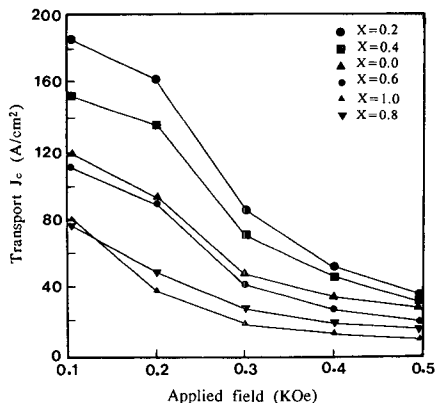


Fig.2. Transport  $J_c$  at 77K versus applied magnetic field for  $\text{Y}_{1-x}\text{Ho}_x\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}$

그림 3 에는  $\text{Y}_{1-x}\text{Ho}_x\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}$  의 치환량에 따른 적외선 스펙트럼 변화를 나타내었다. 치환량에 따른 Cu(1)-O(4) stretching mode범위는 457.84 ~ 493.26  $\text{cm}^{-1}$ 에 있었고, X의 양이 증가함에 따라 Cu(1)-O(4) stretching mode 값은 대체로 감소하는 경향을 보였으며,  $x=1.0$  인 경우에는 약간 증가 하였다. 이것은 Cu원자와 O원자로 이루어진 면의 decoupling으로 인하여 결합력이 약해지므로 원자간 거리가 짧아지는 것이다. 결과적으로 Cu원자와 O원자간의 진동이 약해지는 것으로 생각해 볼 수 있다.  $x=0.0\sim 1.0$ 인 시료들의 경우에는 442.59 ~ 673.65  $\text{cm}^{-1}$ 범위에서 적외선 투과 peak가 컸다. 이렇게 적외선 투과 peak가 drop되는 현상은 특이할 정도의 low-lying plasmlike edge 와 낮은 에너지의 전기적인 여기가 존재함을 나타내고<sup>7)</sup> 이런 전자기적 특징으로 인한 공명은 강한 광학적 phonon에 의한 것이다. 치환량에 따른 Cu(1)-O(4) stretching mode의 투과값으로 부터 Beer-Lambert공식<sup>8)</sup>을 이용하여 구한 보정해준 흡수값은 치환량에 따라 0.051 ~ 0.354 범위에 있었다.

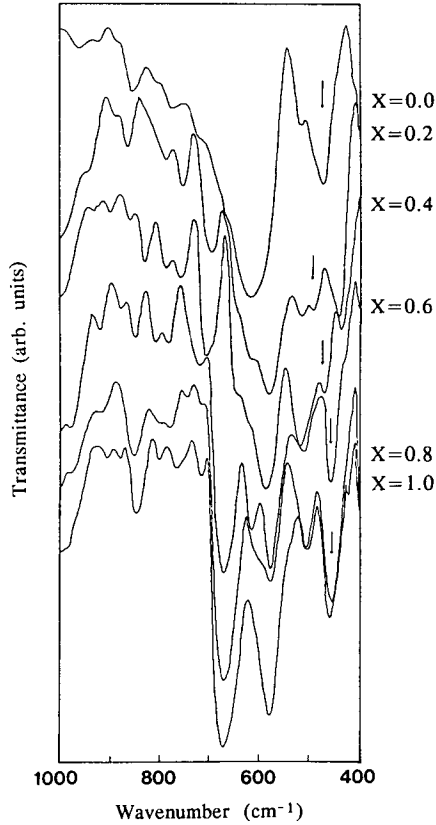


Fig.3. IR transmittance spectra of  $Y_{1-x}Ho_xBa_2Cu_3O_{7-y}$  with varying concentration X.

그림 4 에는  $Y_{1-x}Ho_xBa_2Cu_3O_{7-y}$ 의 치환양에 따른 수직 편광한 경우의 Raman spectrum 변화를 나타내었다. Cu(1)-O(4) stretching mode는 초전도체의 결정구조를 좌우하는 중요한 mode이며 산소의 양에 강한 영향을 받는다. 이것은 치환양의 변화에 따라  $502.30 \sim 506.60 \text{ cm}^{-1}$  범위에 있었으며, X의 양이 증가함에 따라 감소하는 경향을 보였다. 그리고 X=1.0인 경우에는 약간 증가하였다. 이러한 변화는 IR변화와 잘 일치했다. Cu(2)-O(2,3) out of bending mode는 치환양의 변화에 따라  $334.50 \sim 346.40 \text{ cm}^{-1}$  범위에 있었다. 또한 Raman mode에서 불순물 상들도 나타났다. 예를 들면 Ba상,  $Y_2BaCuO_5$ 상, 그리고  $BaCuO_2$ 상은 각각  $108 \sim 119 \text{ cm}^{-1}$ ,  $436.50 \sim 450 \text{ cm}^{-1}$ , 그리고  $635.50 \sim 656.60 \text{ cm}^{-1}$  범위에 있었다.  $141 \sim 150 \text{ cm}^{-1}$  범위에 있는 mode는 cooper-isotope 이동에 의한  $CuO_2$  평면에서의 Cu원자 mode 이고, Ba진동에 의한 mode는 강한 electron-phonon coupling을 나타내는 asymmetric한 불연속적인 phonon line의 형태 즉 Fano line의 형태<sup>10)</sup>이다. 그리고  $570 \sim 589.40 \text{ cm}^{-1}$  범위의 mode는 chain Cu-O stretching을 나타내는 것이다. 수평 편광된 경우에 있어서의 Raman spectrum은 그림 5 에 나타내었다. 그림 4와 그림 5에서 볼 수 있는 바와같이 Raman 스펙트럼들은 모두 asymmetric한 형태를 이루고 있었다. 특히 수평 편광된 시료들에 있어서는  $BaCuO_2$ 상의 강도가 증가 했다. 이것은 electron background와 관련된 강도의 강한 증가에 의한 것이다.

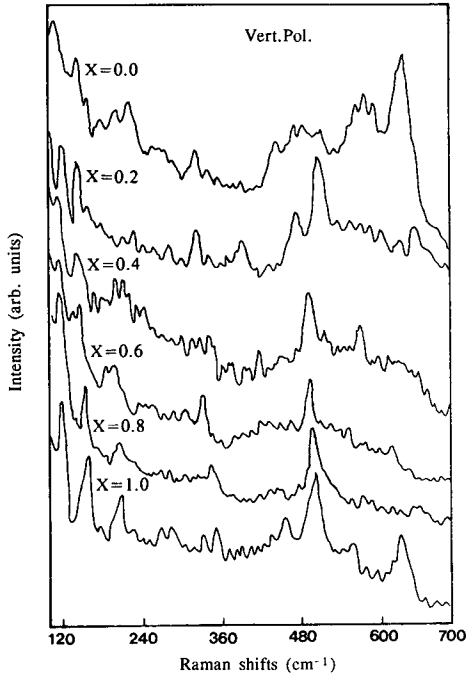


Fig.4. Polarized Raman spectra of  $Y_{1-x}Ho_xBa_2Cu_3O_{7-y}$ .

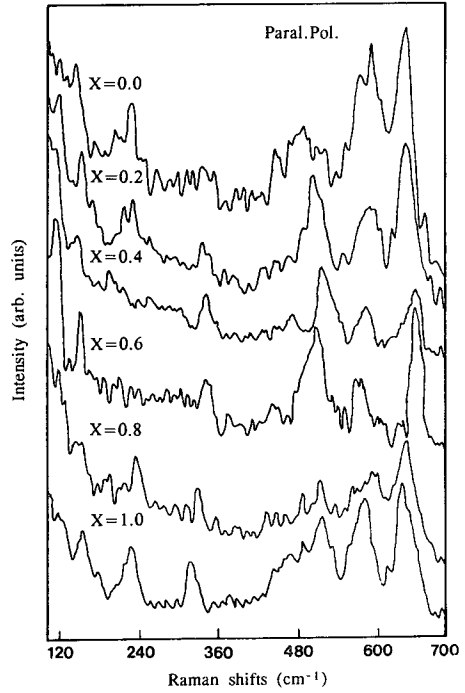


Fig.5. Polarized Raman spectra of  $Y_{1-x}Ho_xBa_2Cu_3O_{7-y}$ .

#### IV. 결 론

고온 초전도체  $Y_{1-x}Ho_xBa_2Cu_3O_{7-y}$ 를 고상반응법으로 제작하여 수송 임계전류밀도, 적외선 투과율 그리고 Raman spectrum 측정 등으로부터 다음과 같은 결과를 얻었다.

- 1) 수송 임계전류밀도 값은 치환량의 변화에 따라 110 ~ 217 A/cm<sup>2</sup> 범위에 있었으며 자기장이 증가함에 따라 감소 하였다.
- 2) 적외선 투과율 측정에서 치환량에 따른 Cu(1)-O(4) stretching mode 값은 457.84 ~ 493.26 범위에 있었으며 대체로 감소하는 경향을 보였다. 이것은 Cu 원자와 O 원자로 이루어진 면의 decoupling으로 인한 결합력의 약화로 생각된다.
- 3) 수직 편광된 경우의 spectrum 변화에서 Cu(1)-O(4) stretching mode 값은 502.30 ~ 506.60 cm<sup>-1</sup> 범위에 있었으며, Cu(2)-O(2,3) out of bending mode 는 334.50 ~ 346.40 cm<sup>-1</sup> 범위에 있었다. 또한 수직 편광된 경우와 수평 편광된 경우에 있어서의 Raman spectrum은 모두 asymmetric한 형태를 이루고 있었다. 특히 수평 편광된 시료들에 있어서는 635.50 ~ 656.60 cm<sup>-1</sup> 범위에 있는 BaCuO<sub>2</sub> 상의 강도가 증가했다. 이것은 electron background와 관련된 강도의 증가에 의한 것이다.

## 참 고 문 헌

- 1) M.K.Wu, J.R.Ashburn, C.J.Throng, P.H.Hor, R.L.Meng, L.Gao, et al,  
Phys.Rev.Lett., 58, 908, (1987).
- 2) J.D.Jorgensen, et al, Phys. Rev., B36, 3608(1987).
- 3) Y.Tajima, S.Uchida, A. Madaki, et al, Phys. Rev., B32, 6302(1985).
- 4) R.M.Macfarlane, H.Rosen and M.Seki, Solid State Commun., 63, 831 (1987).
- 5) S.L.Cooper, M.V.Klein, B.G. Pazol, J.P.Rice and D.M. Ginsberg, Phys.Rev.,  
B37 5920 (1988).
- 6) D.M.krol, M.Stavolaq, W.Weber, et al, Phys. Rev., B36. 8325(1987).
- 7) Z.Schlesinger, R.T.Collins and M.W.Shafev, Phys. Rev., 35. 7232(1987).
- 8) W.O.George, P.S.Mcintye, Infrared Spectroscopy, pp.228,  
John Wiley and Sons (1987).
- 9) A.Mascarenhas, H.Katayama, J. Parkove and S.K. Deb,  
Phys. Rev., B39, 4699(1989).
- 10) S.L.Cooper, M.V.Klein, B.G.Pazol, J.P.Rice and D.M.Ginsberg,  
Phys. Rev., B37, 5920(1988).