

AlN/MgB₂/α-Al₂O₃ 다층막에서 MgB₂ 초전도相의 투과전자현미경 관찰 TEM observation of MgB₂ superconducting phases on AlN/MgB₂/α-Al₂O₃ multi-layer film

문원진¹, 김영민¹, 김지수¹, K. Kaneko², A. Saito³, H. Abe⁴, 김윤중¹

¹한국기초과학지원연구원 전자현미경 연구부

²Research Lab. of HVEM, Kyushu Uni., Fukuoka, Japan

³Dep. of Electrical Engineering, Yamagata Uni., Yamagata, Japan

⁴JWRI, Osaka Uni., Osaka, Japan

1. 서론

2001년에 Nagamatsu[1]에 의해 MgB₂의 초전도 특성이 발견된 이래, MgB₂의 합성과 공업적 응용 등에 크게 관심이 집중되고 있다. 이 금속간 화합물은 HCP구조($a=0.308$, $c=0.352$ nm)로서, $P6/mmm$ 의 공간군을 갖으며, 초전도 천이온도(T_c)가 39K이다. 상세한 결정구조는 Jorgensen[2], Canfield[3] 과 Buzea[4]의 논문에 잘 나타나 있다.

지금까지 MgB₂ 초전도화합물을 합성하는 다양한 방법이 소개 되어져 왔다[5-14]. MgB₂ 초전도화합물의 합성은 MgB₂의 열적 분해온도, Mg의 산화성 및 폭발성 등으로 인하여, 저온에서의 합성이 강하게 요구되고 있다. Saito 등은 특수한 장치(carrousel type magnetron sputtering system)에 의해, 564K에서 알루미늄(α-Al₂O₃) 기판 위에 MgB₂필름을 증착하는 데 성공하였다[14]. 그러나, 그들의 합성한 필름의 T_c는 약 28K로 기존의 벌크시료에서 얻어진 T_c보다 다소 낮으며, 또한 상온에서의 전기저항은 기판의 결정방위에 크게 의존하는 것으로 알려져 있다.

따라서, 이 연구는 MgB₂ 초전도 필름의 전기적 특성과 기판의 결정방위와의 관계를 명확히 하기 위하여, AlN/MgB₂/α-Al₂O₃ 다층막의 미세구조를 투과전자현미경법에 의해 조사한 것이다.

2. 실험방법

AlN/MgB₂ 다층막은 Fig. 1의 구조를 갖는 증착 장치를 이용하여 C면과 R면의 단결정 α-Al₂O₃기판(M.T.I. 製) 위에 증착된 것이다. 이 장치와 증착방법 및 증착조건에 대해서는 참고문헌[14]에 잘 나타나 있다.

이 기판들은 증착기의 스테이지에 설치하여 564K로 가열하였다. 본 증착을 실시하기에 앞서, 기판과 타겟의 표면은 예비처리를 실시하였다. 우선, 기판의 표면은

Kaufman형 이온발생기를 이용하여 5분 동안 이온연마(Ar분압 0.027Pa)하였으며, 각 타겟의 표면은 30분 동안 예비 증착을 실시하여 청결히 하였다.

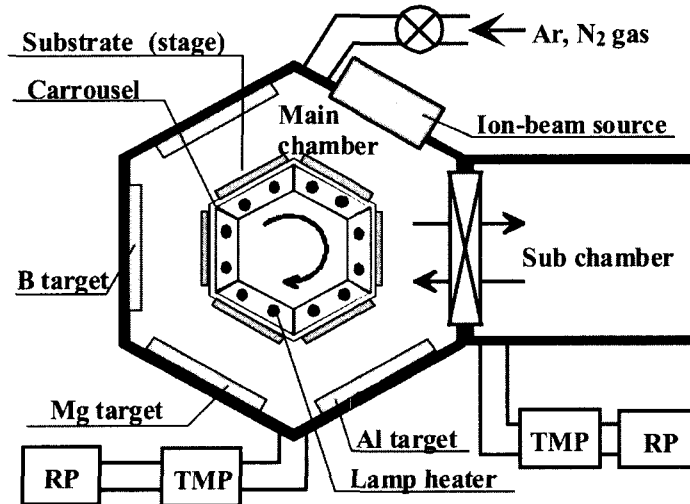


Fig. 1. A schematic diagram of carousel-type sputtering apparatus.

투과전자현미경관찰을 위한 단면시료는 우선 MgB_2 초전도층을 포함하는 $AlN/MgB_2/\alpha-Al_2O_3$ 다층막을 다이아몬드 컷터를 이용하여 $5mm \times 5mm$ 의 크기로 절단한 다음, 이를 다시 집속이온빔 가공장치(focused ion beam, Hitachi FB 2000A)에서 마이크로 샘플링법(micro sampling)에 의해 준비하였다. 고분해능(HRTEM) 관찰은 400kV의 가속 전압에서 작동되는 투과전자현미경(JEM 4000 EX)을 이용하였으며, STEM EDS분석은 200kV의 가속전압에서 작동되는 투과전자현미경(TECNAI-20)을 이용하여 실시하였다.

3. 실험결과

3.1 기판의결정방위에 따른 ρ -T 특성

Fig. 2는 C면과 R면 위에 증착된 $AlN/MgB_2/\alpha-Al_2O_3$ 다층막에서 얻어진 각각의 ρ -T 곡선이다. 이들 곡선에서 알 수 있는 바와 같이, 두 시료에서 T_c 는 약 28K로 비슷하나, 상온(298K)에서의 전기저항은, C면 기판 위에 MgB_2 초전도 필름을 합성한 경우의 전기저항은 $50\mu\Omega cm$ 을 나타내는데 반하여 R면 기판 위에 MgB_2 초전도 필름을 합성한 경우는 약 $300\mu\Omega cm$ 으로 기판의 방위에 크게 의존하는 것을 알 수 있다.

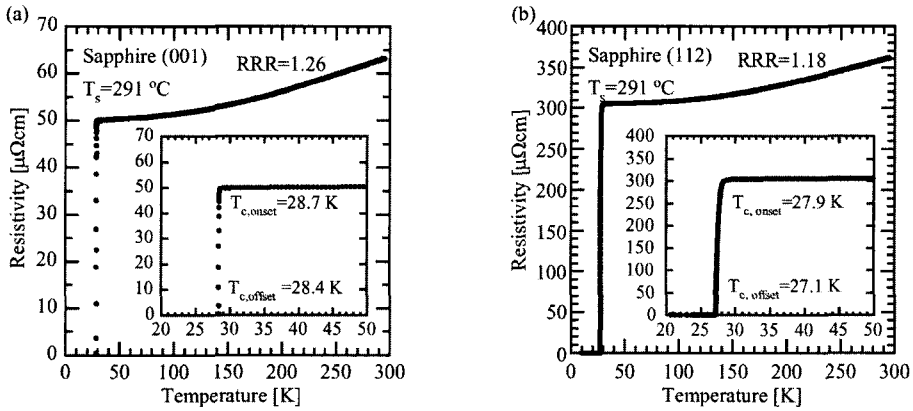


Fig. 2. Typical ρ - T curves of MgB_2 thin films deposited on the C-plane (a) and the R-plane (b) substrates.

3.2 $\text{AlN}/\text{MgB}_2/\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 다층막의 TEM 특성

3.2.1 C면시편

Fig. 3은 C면 시료의 단면 TEM사진(a)과 각층에서 얻어진 회절도형 및 지수 붙이기의 결과를 나타낸 것이다. 이 사진에서 알루미늄 기판의 전자선의 입사 방향은 $B=[210]$ 이고, 기판 경면에 수직인 역격자 벡터가 $g=[003]$ 이기 때문에 기판의 경면은 (0001)면이다.

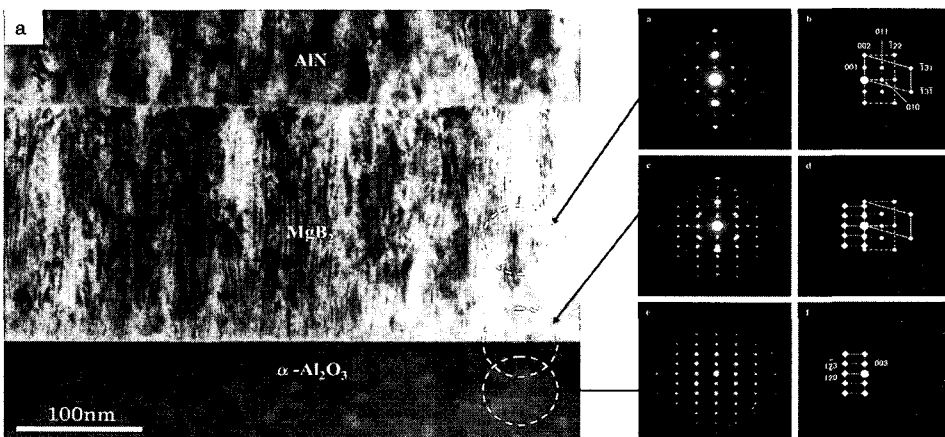


Fig. 3. A cross-sectional TEM micrograph (a), and a set of diffraction patterns (b)-(f) taken from multi-layer film deposited on $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ substrate of C-plane.

MgB₂층으로부터 얻어진 회절도형(左上)은 MgB₂층을 기판의 (0001)면에 평행한 방위에서는 시료의 방향에 관계없이 회절도형(中上)과 같이 항상 일정한 회절도형이 얻어진다. 이 회절도형은 세 가지 결정방위(B=[100], B=[210], B=[310])가 혼합되어 나타나는 것이다. 또한 이들 세 결정 모두의 역격자 벡터 $g=[001]$ 은 기판의 $g=[003]$ 방위와 평행하다(회절도형(左中)). 따라서, 모든 MgB₂결정의 결정성장방위는 [001]이고, 각 방위의 결정사이에는 Fig. 4와 같은 트위스트 입계(twist boundary)가 발달한다.

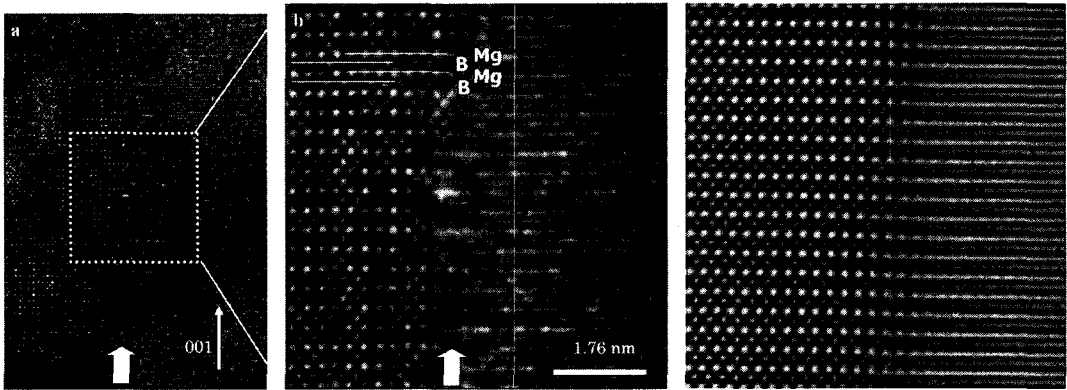


Fig. 4. HRTEM (left and center) and IFFT (right) images of a twist boundary taken from MgB₂ layer deposited on a C-plane substrate.

3.2.2 R면 시편

Fig. 5는 R면 시료의 단면 TEM사진(a)과 각층에서 얻어진 회절도형을 나타낸 것이다. R면 시료의 MgB₂층의 회절도형은 다음과 같은 점에서 C면 시료와 차이가 있다. 즉, MgB₂층의 회절도형은 결정 회절에 의한 회절반점 이외에 비정질 산란에 의한 halo ring이 관찰된다. 이 halo ring 도형은 MgB₂/ α -Al₂O₃ 계면에서 강하게 나타나고 있는 것으로 보아, 비정질은 MgB₂/ α -Al₂O₃ 계면에서 발달하는 것으로 보인다. 또한 MgB₂층의 회절도형에서 투과반점을 제외한 각 회절반점들은 C면 시료와 달리 양쪽으로 길게 늘어져 있다. 이는 R면 시료에서는 MgB₂상의 결정 성장방위가 모두 일치하지 않고, [001]방위를 중심으로 성장하고 있음을 나타내는 것이다.

Fig. 6은 R면 시료의 MgB₂층에 결정과 비정질의 분포를 나타내는 고분해능 사진이다. 이와 같이 MgB₂상과 MgB₂/ α -Al₂O₃ 계면에 비정질상을 포함하는 R면 시료 경우, 비정질상에 의해 전자산란에 영향을 초래 할 수 있다. 결국, 전자산란 효과가 지

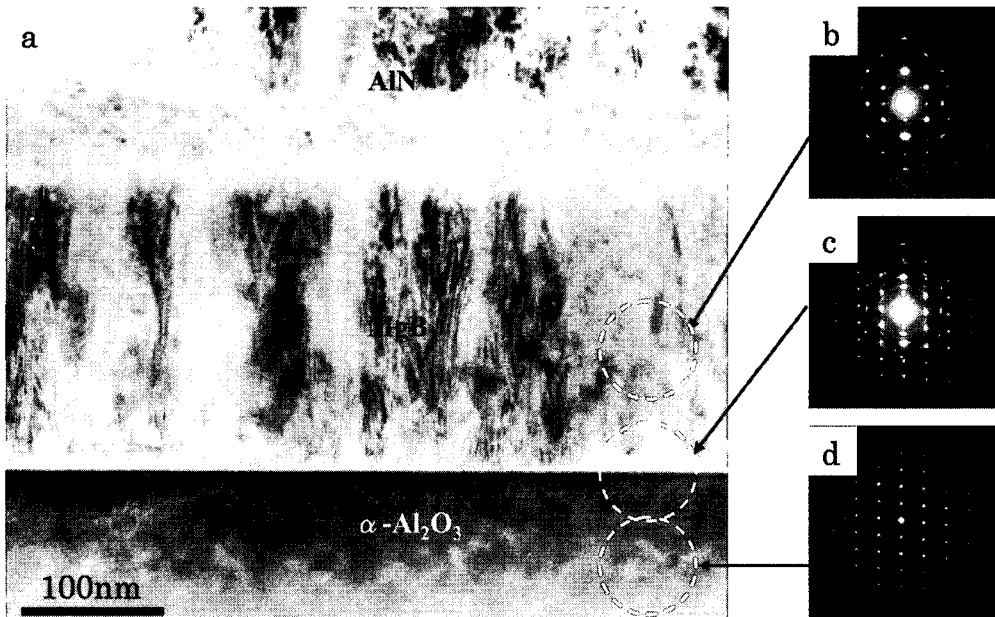


Fig. 5. A cross-sectional TEM micrograph(a) and a set of diffraction patterns ((b) ~ (d)) taken from multi-layer film deposited on α - Al_2O_3 substrate of R-plane.

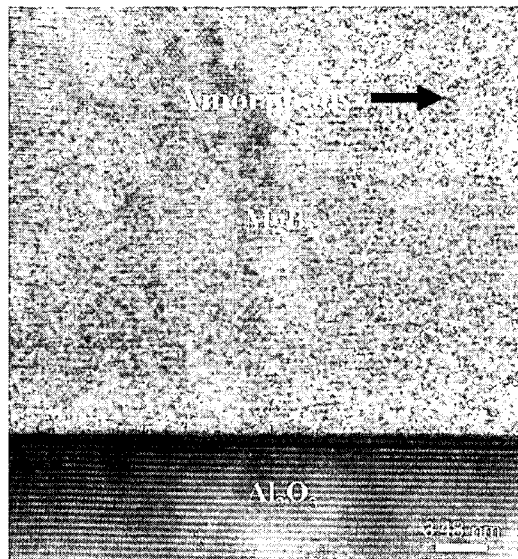


Fig. 6. HRTEM images of MgB₂ layer and interface boundary of AlN/MgB₂ R-plane specimen.

배되는 T_c 이상에서는 비정질상의 유무에 따라 전기저항이 차이가 나타나나, 전자산란 효과가 무시되는 T_c 이하의 초전도 영역에서는 비정질상의 유무에 따른 전기저항이 차는 없어질 것으로 사료된다.

References

1. Nagamatsu J., Nakagawa N., Muranaka T., Zenitani Y. and Akimitsu J., 2001 *Nature* 410 63
2. Jorgensen J. D., Hinks D. G. and Short S., 2001 *Phys. Rev. B*, 63 224522-1
3. Canfield P. C., Bud'ko S. L. and Finnemore D. K., 2003 *Physica C*, 385 1
4. Buzea C. and Yamashita T., 2001 *Supercond. Sci. Technol.*, 14 R115
5. Ueda K. and Naito M., 2001 *Appl. Phys. Lett.*, 79 2046
6. Chen Y. X., Li D. X. and Zhang G. D., 2002 *Mater. Sci. Eng. A*, 337 222
7. Kang W. N., Kim H.-J., Choi E.-M., Jung C. U. and Lee S.-I., 2001 *Science*, 292 1521
8. Blank D. H. A., Hilgenkamp H., Brinkman A., Mijatovic D., Rijnders G. and Rogalla H., 2001 *Appl. Phys. Lett.*, 79 394
9. Przybylski K., Stobierski L., Chmist J. and Kołodziejczyk A., 2003 *Physica C*, 387 148
10. Kim H.-J., Kang W. N., Kim H.-J., Choi E.-M., Kim K. H. P., Lee H. S., Lee S.-I. and Mun M.-O., 2003 *Physica C*, 391 119
11. Brinkman A., Mijatovic D., Rijnders G., Leca V., Smilde H. J. H., Oomen I., Golubov A. A., Roesthuis F., Harkema S., Hilgenkamp H., Blank D. H. A. and Rogalla H., 2001 *Physica C*, 353 1
12. Shinde S. R., Ogale S. B., Greene R. L., Venkatesan T., Canfield P. C., Bud'ko S. L., Lapertot G. and Petrovic C., 2003 *Appl. Phys. Lett.*, 79 227
13. Abe H., Naito M., Nogi K., Matsuda M., Miyake M., Ohara S., Kondo A. and Fukui T., 2003 *Physica C*, 391 211
14. Saito A., Kawakami A., Shimakage H. and Wang Z., 2002 *Supercond. Sci. Technol.*, 15 1325