

Effects of Light-ion Irradiation on Superconducting MgB₂ thin Films

N. H. Lee, W. K. Seong, Mahipal Ranot, Soyeon Kim, Sung Ha Park and W. N. Kang*

BK21 Division and Department of Physics, Sungkyunkwan University, Suwon 440-746, Republic of Korea

(Received 3 August 2009; revised or reviewed 29 September 2009; accepted 14 October 2009)

MgB₂ 초전도 박막의 경이온 조사에 의한 효과

이남훈, 성원경, Mahipal Ranot, 김소연, 박성하, 강원남*

Abstract

We investigated the effects of the irradiation of light-ions on the superconducting MgB₂ thin films fabricated by using HPCVD. Deuterium and helium ions were irradiated on MgB₂ thin films by various doses, from $1 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ to $8 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$. During these experiments some reasonable results and unpredictable results have been obtained. The reasonable results are that the peak of the reduced maximum pinning force shifts by increasing the pinning sites in MgB₂ films and the slightly change of critical current density of films. We obtained some unusual results, which are the increasing of the transition temperature and the change of residual resistance ratio. Among the data of deuterium and helium ion irradiation experiments, the results of helium ion irradiation have most notable points so we will discuss mainly about helium irradiation experiments.

Keywords : MgB₂ thin film, irradiation, light-ions, HPCVD

I. 서론

이온의 조사에 의한 물질에 대한 임의적인 파괴 작용은 여러 분야에서 각자의 여러 특성을 알아보기 위하여 사용 되어 왔다. 우주탐사가 본격화 되면서 우주의 환경과 밀접한 분위기를 조성하여 얼마나 장비가 견딜 수 있는지를 확인하는 작업에서부터 새로운 물질의 생성, 국소적인 부분의 임의적인 파괴를 통한 효과 분석에 이르기 까지 많은 연구가 진행되고 있다.

초전도의 탐구에서 역시 현실적인 응용 및 물리적 특성을 탐구하기 위하여 다양한 방법으로 이온 조사 실험을 시행하고 있다. 초전도의 실질적인 응용을 위해서는 높은 임계 전류 밀도를 가지는 것이 중요하고 이에 상응하는 높은 임계 자기장이 필수적이다. 이런 임계 자기장을 높이기 위하여 다른 원소로의 도핑 [1-3], 나노입자 첨가 [4], 임의의 구조물 생성 [5], 경이온 에너지를 중이온에 이르는 다양한 조사 실험 [6-9] 등을 실행한다.

이온 조사 실험은 비단 응용에서만 쓰이는 것은 아니다. 균질한 시료 중간에 임의적인 결점을 만들어 낼 수 있다는 장점 덕분에 이온

*Corresponding author. Fax: +82 31 290 7055

e-mail: wnkgang@skku.edu

조사 실험은 다양한 물리적 특성을 탐구하는 곳에 쓰인다. 자기 소용돌이의 움직임에 의한 홀 효과 부호의 변화를 알아보는데 쓰일 뿐만 아니라 [10] 중상자 포획 효과를 이용하여 초전도를 구성하는 특정 원자 만을 치환하여 초전도의 특성을 알아보는 실험에 아주 유용하게 활용되고 있다 [11]. 또한 2중 초전도의 특징인 자기 소용돌이의 꽃잎 자리 형성 유무에 관한 실험 및 이런 형성을 통한 꽃잎 힘의 봉우리 효과, 봉우리 이동, 꽃잎 힘 원리 등의 탐구에 유용하게 쓰일 수 있다 [12-14].

우리는 MgB_2 초전도 박막에 중수소 및 헬륨의 조사 실험을 하였고, 본 논문에서 다양한 실험 조건 중 몇몇의 실험의 결과를 살펴보고자 한다.

II. 실험방법

MgB_2 초전도 박막은 혼성물리화학기상 증착법(HPCVD, hybrid physical-chemical vapor deposition) [15, 16]을 이용하여 제작하였다. 우선 성장실 내부를 10^{-3} Torr까지 진공을 만들고 99.9999% 수소를 이용하여 200 Torr를 만든다. 이후 $590^\circ C$ 까지 가열 한 후 수소에 의하여 희석된 B_2H_6 기체(수소 95%, B_2H_6 5%)를 흘려준다. 실험 시 수소는 100 sccm, B_2H_6 는 4 sccm을 흘려주었다. 기판은 (0001) Al_2O_3 기판을 사용하였고, 크기는 $10\text{ mm} \times 10\text{ mm}$ 이다. 위 실험을 통하여 두께 400 nm의 양질의 MgB_2 박막을 얻

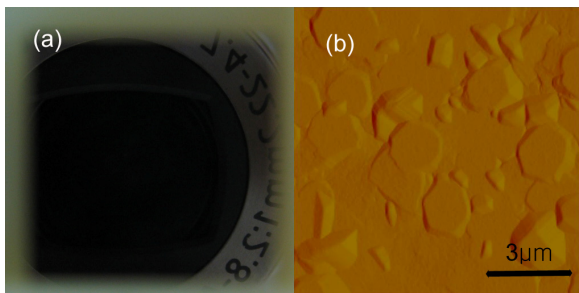


Fig. 1. The images of MgB_2 thin film. (a) shows cleanliness and homogeneity of film. The film which has size of $1\text{ cm} \times 1\text{ cm}$, reflects a lens of camera. (b) shows an AFM image of the film which indicates good grain connectivity and clean surface morphology.

을 수 있었다.

위의 방법으로 얻어진 $10\text{ mm} \times 10\text{ mm}$ 크기의 박막을 일정한 크기로 6등분하여 각각의 이온에 대한 조사실험을 수행하였다. 조사를 위한 가속기는 한국 원자력 의학원에 있는 MC-50 가속기를 이용하였다. 여러 실험 조건에 의하여 중수소 및 헬륨 이온을 조사하였고 조사량을 측정하는 방법은 다음과 같다. 우선 가속기의 인출부로 부터 일정거리 만큼 떨어진 곳에 2개의 측정기를 배치한 후 조사를 하고, 이를 바탕으로 각각의 측정기가 받아 들이는 이온의 비율을 측정한다. 그리고 한 곳의 측정기를 시료로 대체하고 또 다른 측정기에서 받아들이는 이온의 양을 바탕으로 위에서 언급했던 비율을 곱하여 실제 박막에 조사된 양을 추론한다. 측정기는 패러데이 컵을 이용한 방식으로 조사된 이온들에 의한 전류를 측정하고 이를 각각의 이온에 상응하는 전하량으로 나누어 조사된 이온의 개수를 계산하는 방식이다.

저항은 4 단자법(four-probe method)를 통하여 측정하였고, 자기모멘트의 자기장 의존성은 Quantum Design 사의 MPMS (Magnetic Property Measurement System)를 이용하여 측정하였다.

III. 결과 및 토의

초전도 박막내부의 꽃잎 자리 형성 유무를 알기 위해서는 꽃잎 힘 그래프를 관측하는 것이 하나의 방법이다 [17].

Fig. 2의 그래프는 $5\text{ MeV } 1.15 \times 10^{15}$ particles/cm²의 헬륨 이온을 조사한 후의 꽃잎 힘 곡선의 변화를 보여준다. 이 그래프에서 알 수 있듯 조사 이후의 꽃잎 힘 그래프는 조사 이전의 그래프에 비하여 훨씬 넓어 졌고, 꽃잎 힘이 최대값을 가지는 H/H_{irr} 지점이 약간 작아졌음을 알 수 있다. 이는 조사 이전의 샘플이 가지고 있던 약한 꽃잎 자리보다 더 강한 꽃잎 자리가 형성되어 H/H_{irr} 이 낮은 지점에 봉우리가 형성되었음을 의미 한다. 즉, 조사에 의하여 형성된 점 결점이 훌륭한 꽃잎 자리로서의 역할을 하고 있다고 볼 수 있다 [18]. 또한 여기서 눈 여겨 보아야 할 점은 조사된 헬륨의 양이다. 다른 논문에서보다 1/100 만큼의 [19] 조

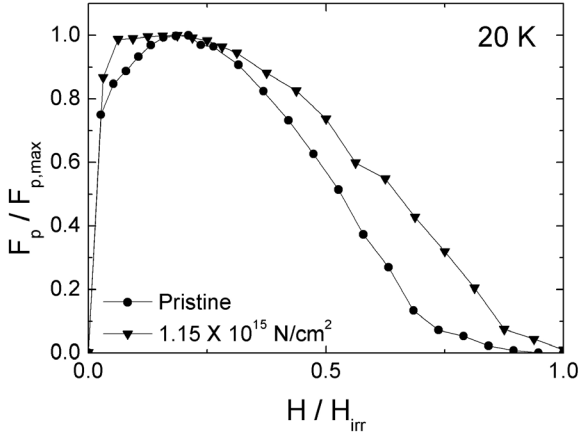


Fig. 2. Normalized pinning force versus reduced magnetic field curves for a pristine sample and a helium ion irradiated sample. The curve for pinning force of irradiated sample become broader than pristine one.

사 양으로도 이만한 성과를 얻을 수 있었던 것은 본래의 샘플이 매우 우수한 박막임을 암시한다고 볼 수 있다.

이와 연관되어 알 수 있는 것이 잔류 저항 비이다 [20]. 원자 반지름이 보론 보다 큰 마그네슘이 조사 시 충돌 할 확률이 높고, 조사에 의하여 생성된 결점들은 마그네슘의 부족에 의한 것일 수 있으며, 이는 잔류 저항 비를 낮추는 결과를 가져온다. Fig. 3은 41.5 K의 값을 1으로 틀 맞추어 한 저항 값이다. 그래프 (a)에서 알 수 있듯 조사 이전의 시료는 잔류 저항 비 값이 22에 이르지만 조사량이 7.11×10^{13} particles/cm², 5.92×10^{14} particles/cm² 그리고 1.15×10^{15} particles/cm²으로 증가할수록 잔류 저항 비 값은 17, 14, 12로 점차적으로 작아 짐을 알 수 있다.

또한 여기서 특이할 점은 전이 온도의 상승이다. 일반적인 조사 실험에서는 조사량이 증가할 수록 전이온도는 감소하는 경향을 보인다 [6-9, 19]. 하지만 이번 실험에서는 비록 미비하긴 하지만 1 K 가량 증가하는 경향을 보이고 있다. 이점이 있을 수 있겠으나 조사에 의한 격자상수의 증가가 그 원인이 아닐까 추론하고 있다 [21].

마지막으로 중수소 조사에 의한 실험 결과를 기술하겠다. 중수소는 헬륨 이온 조사 실험에서와 동일한 조건에서 만들어진 시료를 바탕으로

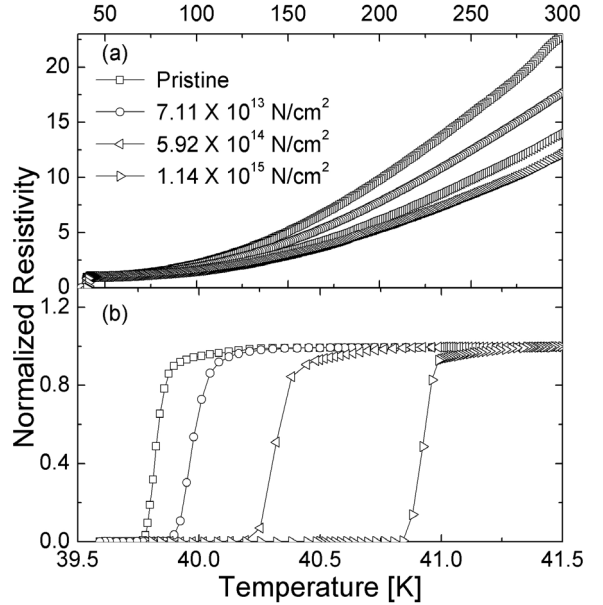


Fig. 3. Normalized resistance versus temperature graphs for pristine and helium ion irradiated samples. Resistance data were normalized at 41.5 K (a) shows that the RRR value of the pristine sample has highest value. The most upper curve of graph (a) is the data of pristine sample, and the second, third, and fourth are 7.11×10^{13} particles/cm², 5.92×10^{14} particles/cm², and 1.15×10^{15} particles/cm² respectively. (b) shows the magnified view near the superconducting transition temperature. Transition temperature of samples increases as the irradiation dose increases.

로 실험을 진행하였다. 헬륨 이온에서의 실험 결과는 위와 같은 변화가 눈에 띄었으나 중수소의 조사 실험은 Fig. 4와 같이 약간의 변화만을 보여 주고 있다.

6.68×10^{14} particles/cm² 인 지점이 가장 높은 임계 전류 밀도의 값을 보인다. 이는 다른 그룹에서 한 실험의 결과들과는 많이 상반되는 결과를 나타낸다 [6-8]. 일반적으로 10^{18} particles/cm²를 초과하는 조사량에 가서야 임계 전류 밀도가 감소하는 특성을 보이지만 본 실험에서는 그 값이 일찍 감소하는 경향을 보이고 있다 [22].

IV. 결론

MgB₂ 초전도 박막에 중수소 및 헬륨 이온 등을 조사하였다. 여러 경이온 조사 실험 중에

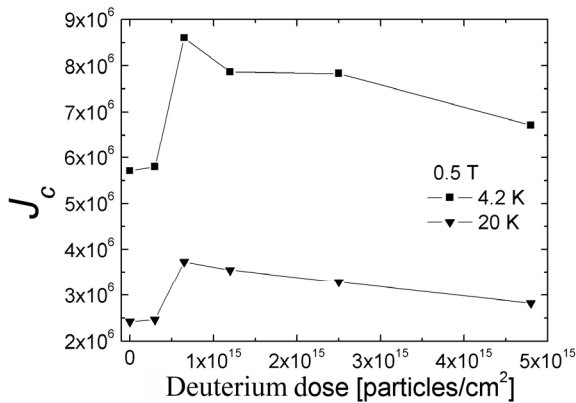


Fig. 4. Critical current density versus deuteron dose of pristine and deuteron irradiated samples. The point of first one from left indicates a pristine sample and from second to sixth indicate 3.58×10^{14} particles/cm², 6.68×10^{14} particles/cm², 1.24×10^{15} particles/cm², 2.43×10^{15} particles/cm², and 4.81×10^{15} particles/cm² respectively.

서 그 중에서 가장 무거운 헬륨 이온이 가장 효과적인 결과를 보여 주었다. 실험에 사용된 시료의 양질은 다른 연구 그룹에서 보지 못한 낮은 조사량에서의 실험을 가능하게 하였고, 이런 실험 결과들은 여러 가지 특성을 보여주었다. 1.15×10^{15} particles/cm²의 헬륨 이온을 조사한 시료와 조사 전의 시료를 비교한 결과 콧음 힘의 봉우리의 변화를 보여 주었다. 또한 조사한 시료들의 경향성을 분석하는 가운데 마그네슘의 이탈로 인한 잔류 저항 비의 감소를 보여다.

Acknowledgements

이 논문은 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국 연구재단의 원자력 연구 개발사업으로 지원받았습니다(연구과제 관리 코드 : M2008 - 02247).

References

- [1] J. H. Kim, S. Zhou, S. A. Hossain, A. V. Pan, and S. X. Dou, "Carbohydrate doping to enhance electromagnetic properties of MgB₂ superconductors", *Appl. Phys. Lett.* 89 142505 (2006).
- [2] S. Zhou *et al.*, "Sugar Coating of Boron Powder for Efficient Carbon Doping of MgB₂ with Enhanced Current-Carrying", *Adv. Mater.* 19, 1373 (2007).
- [3] Y. Feng *et al.*, "Improvement of critical current density in MgB₂ superconductors by Zr doping at ambient pressure", *Appl. Phys. Lett.* 79, 3983 (2001).
- [4] G. J. Xu *et al.*, "Enhancement of the irreversibility field in bulk MgB₂ by TiO₂ nanoparticle addition", *Physica C* 406, 95 (2004).
- [5] P. N. Barnes *et al.*, "Flux pinning behavior of incomplete multilayered lattice structures in YBa₂Cu₃O_{7-d}", *Appl. Phys. Lett.* 85, 4088 (2004).
- [6] Y. Bugoslavsky *et al.*, "Enhancement of the high-magnetic-field critical current density of superconducting MgB₂ by proton irradiation", *Nature* 411, 561 (2001).
- [7] M. Putti *et al.*, "Neutron irradiation of Mg₁₁B₂: From the enhancement to the suppression of superconducting properties", *Appl. Phys. Lett.* 86, 112503 (2005).
- [8] I. Pallecchi *et al.*, "Enhanced flux pinning in neutron irradiated MgB₂", *Phys. Rev. B* 71, 212507 (2005).
- [9] Y. Yan *et al.*, "Thermal stability of correlated defects introduced by heavy ion irradiation in YBa₂Cu₃O_{7-d}", *Phys. Rev. B* 64, 134527 (2001).
- [10] W. N. Kang *et al.*, "Pinning strength dependence of mixed-state Hall effect in YBa₂Cu₃O₇ crystals with columnar defects", *Phys. Rev. Lett.* 76, 2993 (1996).
- [11] V. Ferrando *et al.*, "Neutron irradiation effects on two gaps in MgB₂", *Physica C* 456, 134 (2007).
- [12] H. S. Lessure *et al.*, "Flux pinning in neutron irradiated YBa₂Cu₃O₇", *IEEE Trans. Magnetics* 27, 1043 (1991).
- [13] M. Zehetmayer *et al.*, "Fishtail effect in neutron-irradiated superconducting MgB₂ single crystals", *Phys. Rev. B* 69, 054510 (2005).
- [14] M. Mudgel *et al.*, "Significant improvement of flux pinning and irreversibility field in nano-carbon-doped MgB₂ superconductor", *Solid State Commun.* 146, 330 (2008).
- [15] X. Zeng *et al.*, "In situ epitaxial MgB₂ thin films for superconducting electronics", *Nat Mater.* 1, 1 (2002).
- [16] W. K. Seong *et al.*, "Growth of epitaxial MgB₂ thick films with columnar structures by using HPCVD",

- Chem. Vap. Deposition* 13, 680 (2007).
- [17] E. J. Kramer, "Scaling laws for flux pinning in hard superconductors", *J. Appl. Phys.* 44, 1360 (1973).
- [18] A. Talapatra *et al.*, "Magnetization measurements of neon ion irradiated MgB₂ superconductors", *Supercond. Sci. Technol.* 20, 1193(2007).
- [19] R. Gandikota, "Effect of damage by 2MeV He ions in the normal and superconducting properties of magnesium diboride", *Appl. Phys. Lett.* 86, 012508 (2005).
- [20] X. H. Chen *et al.*, "Correlation between the residual resistance ratio and magnetoresistance in MgB₂", *Phys. Rev. B* 65, 024502 (2001).
- [21] A. V. Pogrebnyakov *et al.*, "Enhancement of the superconducting transition temperature of MgB₂ by a strain-induced bond-stretching mode softening", *Phys. Rev. Lett.* 93, 147006 (2004).
- [22] I. Pellicchi *et al.*, "Increased in-field critical current density in neutron-irradiated MgB₂ films", *Supercond. Sci. Technol.* 22, 015023 (2009).