

저에너지 양전자 소멸 분광법을 이용한 MgB₂ 박막 구조 특성

이종용^{1*} · 강원남² · M. Hasegawa³ · Y. Nagai³ · K. Inoue³

¹한남대학교 물리학과, 대전 306-791

²성균관대학 물리학과, 수원 440-746

³Institute for Materials Research, Tohoku University, Sendai 980-8577 Japan

(2008년 3월 5일 받음)

저속 에너지 도플러 넓어짐 양전자 소멸 분광법으로 MgB₂ 박막내의 원자 크기 정도 고체 구조 특성에 대하여 조사하였다. 양전자와 전자의 쌍소멸로 발생하는 511keV 감마선 스펙트럼의 수리적 해석 방법인 S-변수를 사용하여, 상전이 근처 온도에서 박막의 구조 변화를 측정하였다. 비등방성 구조로 된 MgB₂ 박막에서 초전도 특성을 갖는 상전이 온도 근처에서 S-변수를 측정하였다. 양전자의 입사 에너지 10keV에서 측정된 S-변수의 최고치는 박막의 온도가 30K에서 0.567이고, 50 K에서는 0.570로 큰 변화는 없었다. 이 결과로부터 양전자가 Boron 층의 초 전자와 소멸하기 보다는 Mg층 근처의 상 전자와 소멸하는 것으로 판단된다. MgB₂의 박막의 외층은 Mg층으로 이루어졌다고 할 수 있다.

주제어: MgB₂, S-변수, 양전자, 저속 에너지 양전자소멸, 도플러 넓어짐 분광법, 상전이

I. 서 론

저속 에너지 양전자 소멸 방법은 재료분석이나 표면에서의 전자 구조, 결합 특성의 고체 물리학 연구로 잘 알려져 있다[1,2]. 양전자 소멸은 지난 20년 동안 재료의 특성이나 반도체 소자 결합 측정에 이용되었으며[3], 반입자인 양전자는 전자와의 상호 작용을 통한 재료내의 원자 단위의 크기 결합 특성을 측정하는 수단으로 연구되어 왔다. 양전자는 전자의 반입자로서 양전자가 전자와 소멸을 할 때는 대부분의 경우 2 개의 감마선이 거의 180° 각도를 이루면서 방출된다. 저속 에너지 도플러 넓어짐 양전자 소멸 분광법 [4,5,6](Doppler Broadening Slow Positron Annihilation Spectrometer : SDBPAS)은 페르미 표면이나, 표면 연구 또는 물질의 전자 구조를 분석 할 수 있으며, 양전자 소멸 측정법의 한 종류로써 소멸과정에서 전자와 양전자 쌍의 소멸에 의한 운동량 분포를 시험하여 사용되고 있다. 양전자는 전자와 소멸 할 때, 총에너지 $2m_0c^2 - E_b$ 가 보존이 되면서 방향이 반대의 두 광자(감마선)가 방사된다. 이때 m_0c^2 는 전자의 정지에너지이고, E_b 는 전자의 결합에너지이다. 운동량과 에너지의 보존법칙에 따라서, 총 에너지는 두 광

자에 동일하게 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_L 은 전자와 양전자 소멸 시 광자 방사가 일어나는 세로 방향(광자의 진행방향)의 성분이다. 사용되는 검출기는 광자들이 임의의 방향으로 방사하는 경우에도 청색이나 적색으로 이동된 광자 모두의 측정이 가능하다. 소멸된 광자 피크의 넓어짐은 $2\Delta E = p_{LC}$ 의 에너지와 전자운동량이 상관 관계를 갖는다. 일반적으로 이 광자를 검출하기 위하여 게르마늄 검출기를 사용하는데 그 이유는 고 에너지 광자에 대하여 충분히 좋은 분해능과 상대적인 효율이 높기 때문이다.

초기의 측정법은 하나의 검출기를 사용하여 상대적으로 신호 대 노이즈의 비율이 높아 정확한 측정에 어려움이 있었다. 1976년에 Lynn과 공동 연구자[7]들은 게르마늄 검출기의 반대 방향에 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 검

* [전자우편] cylee@mail.hannam.ac.kr

출기를 고 분해능 게르마늄 검출기로 바꾸어 에너지에 대한 정보를 얻게 되었다[8]. 이것은 관례적으로 동시 계수 도플러 넓어짐 측정법(Coincidence-DBPAS or 2D CDB)이라 부른다. 상당히 많은 잡음을 줄임으로서, 이 측정 방법으로 특히 화학적 성분을 알 수 있는 코아 전자들의 높은 운동량 소멸에 대한 정보를 얻을 수 있고 이론적 계산과도 비교 할 수 있게 되었다. 지난 몇 년 사이에는 이 방법을 통하여 소멸된 격자들에서의 화학적 성분을 구별하게 되었다. 즉 낮은 운동량의 valance나 전도 전자들과의 양전자 소멸은 작은 도플러 이동을 보여주지만 코아 전자들과의 양전자 소멸은 상대적으로 큰 도플러 이동이 나타난다. 그러므로 511 keV 에너지 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. 그러므로 동시 계수 측정법으로 얻은 높은 에너지 분포에서의 코아 전자와 양전자 소멸은 물질의 화학적 성분에 대한 정보를 얻을 수 있다. 기존의 박막 연구와[9,10] 다른 방법이다. 고온 초전도를 발견한 이래로 고온 초전도의 역학적인 것을 이해하기 위하여 양전자 소멸 측정 방법을 포함한 방법이 다양하게 거론되고 있으며[11,12], 특히 양전자 소멸 방법은 초전도체 내의 전자의 밀도 분포나 전자 운동량의 분포 등의 연구에 중요하다. 이 방법은 초 전자를 직접적으로 나타내지는 않지만 전이온도 근처에서의 변화에 대하여 S-변수가 고체 구조나 전자의 운동량에 따라 민감하기 때문에 양전자 소멸법은 변수의 차이가 나타날 수 있다. 기존의 고온 초전도체와는 다르게 산소 원자가 없이 전이온도가 39K 인 MgB₂, 초전도체는 전이 온도가 상대적으로 높으며 금속 성질을 갖는 육각 모양을 띠고 있으므로 기계적인 응용의 장점 때문에 많은 연구가 되고 있다[13,14]. 하지만 MgB₂ 금속성 초전도체는 Mg 사이에 B층이 끼여 있는 두 개의 다른 층을 형성하는 비등방적인 고온 초전도체와 비슷한 형태를 나타내고 있다.

본 연구에서는 저속 에너지 양전자 소멸법과 동시 계수 측정법을 사용하여 온도 변화에 따른 단결정 MgB₂ 초전도 박막의 특성을 측정하고자 한다. 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 511keV ±

수 keV의 영역에 해당하는 감마선의 비인 S-변수를 이용한 온도 변화에 따른 크기를 비교하고자 하며, 박막 두께에 따른 특성을 분석함으로써 초전도 구조 특성 연구에 대한 실험을 목적으로 수행하였다.

II. 실험

본 연구에서 사용된 MgB₂ 박막 시료는 Seong 등에 의하여 발표[15]된 방법을 통하여 제조된 박막으로써 (0001)면의 사파이어 기판 10 × 10 × 0.5mm³ 위에 MgB₂ 박막은 HPCVD(Hybrid Physical Chemical Vapor Deposition)) 방법을 사용한 것이다. Mg 펠릿을 넣고, 순도(99.9999%) 알곤과 수소 기체로 챔버를 깨끗이 한 다음 200 torr 수소 기체 분위기에서 기판 온도는 섭씨 700도로 유지하였다. B₂H₆ 수송 가스는 수소를 사용하였으며, B₂H₆ 가스의 농도가 1.25%가 되도록 조절하고 200 sccm으로 흘리며 박막을 증착한 후에, 수소 분위기에서 상온까지 냉각하였다. MgB₂ 박막은 1분당 1000 Å으로 증착하였다.

저 에너지 동시계수 도플러 넓어짐 측정 실험을 하기 위하여 양전자 소스는 활성화 면적의 직경이 5mm인 50mCi ²²Na 소스를 사용하였다. 베타 붕괴에 기인하므로 소스에서 나오는 양전자의 에너지는 540keV에서 0keV까지의 가우스 분포로 퍼진 에너지로 이루어져 있다. 높은 운동량을 지닌 양전자는 열적 투과 깊이가 100µm 정도이므로 측정하려는 MgB₂ 초전도 박막 시료의 경우 표면의 두께가 1µm 로써, 측정이 불가능하다. 박막의 특성을 연구하기 위해서는 고속 양전자 에너지를 저속 양전자 에너지 빔으로 바꿀 필요가 있다. 그러므로 50mCi ²²Na 소스 앞에 1µm 텅스텐 막으로 조절기를 사용하여 백색 양전자 빔을 단색 양전자 빔으로 만든 후 방출 전압을 통하여 수 eV 양전자 빔이

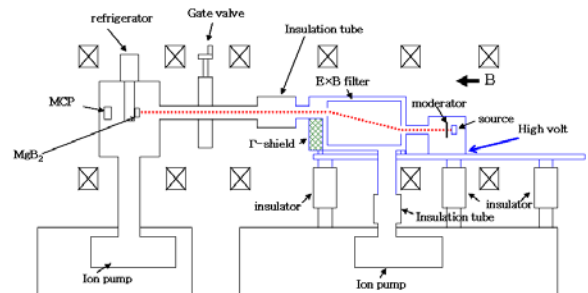


Fig. 1. Schematic diagram of the slow positron and the coincidence positron annihilation system.

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 시료로부터 나온 양전자 소멸에 의한 511keV 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 μ sec로 맞추고, Fast Comtec사의 메모리 박스와 PC를 이용하여 스펙트럼을 측정하였다.

III. 결과 및 고찰

양질의 MgB₂ 초전도 박막을 제작하기 위하여 MgB₂ 구조가 P6/mmm이며, 육면체이므로 사파이어 기판을 선택하게 되었다. 기판으로 사용된 사파이어는 육면체이다. 격자 상수가 a=3.086, c=3.524이고 MgB₂ 와 격자 어긋남이 23%정도이며, 단결정 (001) MgB₂ 박막의 결정학적 축은 XRD를 이용하여 얻은 스펙트럼 Fig. 2에서 잘 보여준다.

Fig. 3은 온도 변화에 따른 1 μ m, 4 μ m MgB₂ 박막에서의 S-변수 값을 나타낸 그래프이다. 두 개의 고 순도 갈륨을 이용한 감마선 계측기인 동시 계수 측정법으로 양전자 소멸 후의 감마선이 180도로 양 방향으로 발생하는 것을 착안하여 양 방향의 신호를 동시에 측정하면 잡음에 의한 신호와 차별 할 수 있음을 이용하였다. 도쿄 대학[16]이나 도호쿠 대학[17]에서 사용하는 2D CDBPAS의 경우는 2차원 에너지 스펙트럼을 보여준다. 이 경우 측정하는 에너지 구

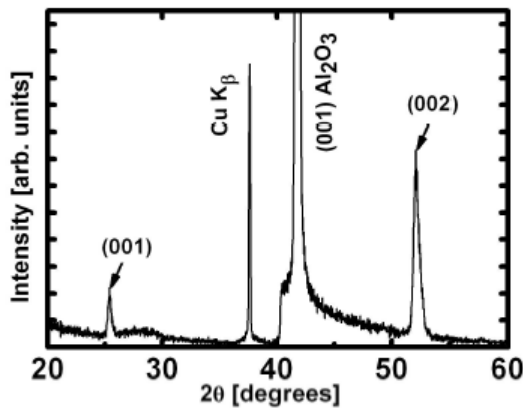


Fig. 2. X-ray diffraction of MgB₂ thin film on sapphire substrate by Seong et. al.[15].

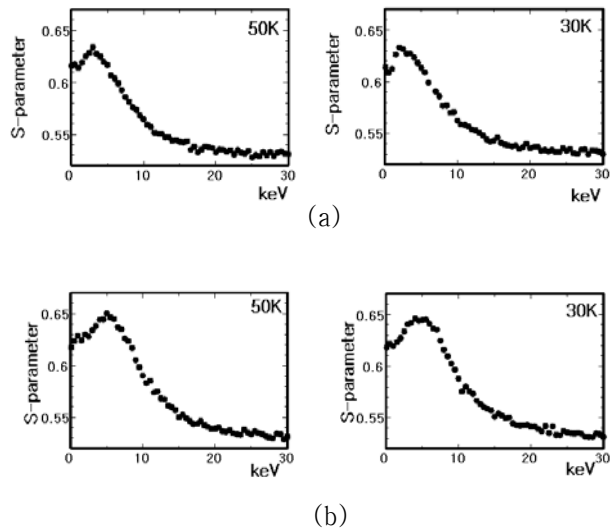


Fig. 3. Variation of the S-parameters vs. positron implanted energies of (a) 1 μ m (b) 4 μ m MgB₂ thin films.

간의 크기는 큰 결합에너지 때문에 충분히 커다란 운동량의 분포를 포함 할 수 있도록 넓게 잡아야 한다. 또한 스펙트럼은 잘 보일 수 있도록 매끄러운 곡선으로 나타나게 한다. 데이터 측정 시 신호 대비 잡음은 한 방향 검출 방법인 DBPAS보다 대략 1000배 정도 이상 좋아지며, 이 경우에서 잡음은 주로 511keV와 비슷한 영역의 컴퓨터 산란 광자로부터 일어 날 수 있다. 2D CDBPAS 의 경우는 초 당 10-100개의 데이터를 얻을 수 있으므로 충분한 통계를 위해 하나의 스펙트럼 당 24시간 정도 진행하였다.

Fig. 3 (a)는 두께가 1 μ m MgB₂ 박막의 상전이 온도가 40K이므로 30K와 50K에서 S-변수를 양전자 입사에너지에 따라 얻어진 결과이다. 이 그래프에서 양전자 입사에너지가 2.5keV에서 S-변수 최고치가 보이는 것은 박막 표면에 Mg입자가 넓게 분포되어 있음을 알 수 있다. 즉 수십 나노미터 두께인 Mg입자의 전도 전자가 양전자 소멸에 기여하고 있는 것이다. MgB₂ 박막 내부에서는 S-변수가 작아지고 있으며, 입사 에너지가 증가함에 따라서 계속 감소하고 있음을 알 수 있다. 그 이유는 양전자 입사에너지의 증가에 따라서 단결정 사파이어 기판의 전자와 소멸이 일어나므로 결합 정공의 수가 상대적으로 적은 단결정 사파이어 내부에서의 소멸로 S-변수는 줄어들게 되어 있다. 그리고 온도가 30K와 50K에서 1 μ m MgB₂ 박막의 S-변수는 거의 차이가 없으며, 4 μ m MgB₂ 박막에서도 같은 결과를 보이고 있는데, 이것은 MgB₂ 초전도체에서 전이 온도 이하

에서 총 전하 운반자는 변화가 없으나 초 전류의 생성으로 초 전자와 양전자 소멸이 이루어지는 것 보다는 초전도 내의 상 전자와의 소멸로 인한 것이다. 초전도체는 단위격자 구조가 상대적으로 크기 때문에 기 발표[18]된 고온 초전도에서와 비슷한 결과로 볼 수 있다. Fig. 3 (a)와 Fig. 3 (b)에서 온도에 따라서 S-변수의 크기가 미세(~ 0.003)하게 변하는 것은 온도가 낮아짐으로 인하여 이온의 격자 반지름의 차이가 나타나기 때문이다. 또한 양전자 입사에너지가 10 - 25keV 근처에서 S-변수의 값이 4 μ m MgB₂ 박막의 경우 1 μ m MgB₂ 박막보다 크게 나타나는 것은 양전자의 입사에너지에 따라서 시료마다 약간의 차이는 있지만 투과하는 깊이가 다르게 된다. 30keV인 양전자 입사에너지는 가우시안 최고치의 경우 표면으로 부터 약 1 μ m 깊이로 투과 할 수 있다. 그러므로 양전자의 소멸이 사파이어의 전자와 이루어지기보다 4 μ m MgB₂ 박막에서 더 많이 이루어지기 때문에 S-변수가 다르게 나타나고 있다.

IV. 결 론

본 연구는 MgB₂ 박막 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 100배 이상 좋은 2차원의 동시 계수 양전자 소멸 분광법으로 MgB₂ 박막을 측정하였다. 그 결과 양전자 입사 에너지에 따라 S 변수 값이 큰 폭으로 변화함을 알게 되었다. 그 이유는 박막과 단결정 그리고 표면에 있는 Mg입자들로 인하여 S 변수 값이 큰 폭으로 변화하는 것을 알 수 있었다. 상전이 근처에서 온도 변화에 따른 초전도성에 대한 양전자 소멸의 민감도는 boron 층의 격자 주변의 초전자 보다 Mg 층 근처의 상 전자에서 소멸이 더 잘 발생하여 고온 초전도체의 특성과 비슷하다는 것을 알 수 있었다.

감사의 글

본 연구는 한남대학교 연구 년의 보조로 행하였으며 이에 감사드립니다.

참고문헌

- [1] P. Hautojarvi, 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 et al., J. Elec. Mat. **18**, 737 (1989).
- [3] B. Mantl and W. Triftshauser, Appl. Phys. **5**, 177 (1974).
- [4] A. P. Druzhkov, R. N. Yeshchenko, S. M. Klotsman, A. N. Martem'Yanov, and G. G. Taluts, Phys. Met. Metall. **66**, 117 (1988).
- [5] J. L. Lee, J. T. Waber, Meta. Trans. **21a**, 2037 (1990).
- [6] C. G. Kim and C. Y. Lee, Kor. J. Mater. Res. **12**, 359 (2002).
- [7] 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).
- [8] K. G. Lynn, J. E. Dickman, W. L. Brown and M. F. Robbins, Phy. Rev. B **20**, 3566 (1978).
- [9] J. H. Lee and K. J. Kim, J. Kor. Vacuum Soc. **15**, 527 (2006).
- [10] J. Seo and J. S. Kim, J. Kor. Vacuum Soc. **15**, 410 (2006).
- [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] J. Nagamatsu, N. Nakagawa, T. Muranaka, Y. Zenitani and J. Akimitsu, Nature **410**, 63 (2001).
- [14] W. Jo, J. U. Huh, T. Ohnishi, A. F. Marshall, M. R. Beasley and R. H. Hammond, Appl. Phys. Lett. **80**, 3563 (2002).
- [15] W. K. Seong, J. Y. Huh, S. G. Jung, W. N. Kang, H. S. Lee, E. M. Choi and S. I. Lee, J. Kor. Phys. Soc. **51**, 174 (2007).
- [16] M. Fujinami, T. Sawada, and T. Akahane, Rad. Phys. Chem. **68**, 631 (2003).
- [17] T. Onitsuka, M. Takenaka, H. Abe, E. Kuramoto, H. Ohkubo, Y. Nagai, and M. Hasegawa, Mater. Sci. Forum **445-446**, 168 (2004).
- [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).

The Characterization of MgB₂ Thin Film by Slow Positron Annihilation Spectroscopy

C. Y. Lee^{1*}, W. N. Kang², Y. Nagai³, K. Inoue³ and M. Hasegawa³

¹*Physics Department, Hannam University, Taejon 306-791*

²*Physics Department, Sungkyunkwan University, Suwon 440-746*

³*Institute for Materials Research, Tohoku University, Sendai 980-8577 Japan*

(Received March 5 2008)

Enhance signal-to-noise ratio, slow positron coincidence Doppler Broadening method has been applied to study of characteristics of MgB₂ superconductor film, which were performed at 30 K and 50 K sample temperature near T_c 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 were increased then decreased while the positron implantation energies were increasing, that indicated the diffusion into the samples. The S-parameters of the anisotropic 1 μm MgB₂ thin film which were implanted by positrons at 10 keV are 0.567 at 30 K and 0.570 at 50 K. It is believed that the positrons annihilate with normal-electrons instead of super-electrons in the MgB₂ superconductor.

KeyWords : MgB₂, S-parameter, slow positron, CDBPAS, Phase Transition

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