

마이크로파 소자 응용을 위한 고온초전도 YBa₂Cu₃O_{7-δ} 에피택셜 박막의 제조 및 특성분석

Preparation and Characterization of Epitaxial YBa₂Cu₃O_{7-δ} Thin Films for Fabrication of High-T_c Superconducting Microwave Devices

강광용*, 한석길, 김제하, 이상렬,
한국전자통신연구소 기초기술연구부,

Kwang-Yong Kang*, Seok Kil Han, Jeha Kim, Sang Yeol Lee
Research Department, ETRI

Abstract

We describe the preparation and characterization of epitaxial thin films made with high temperature superconductor, YBa₂Cu₃O_{7-δ}(YBCO). The influence of processing parameters for YBCO thin films on MgO substrates *in-situ* grown by the pulsed laser deposition, including parameters of a laser beam energy, oxygen pressure, substrate temperature, target-substrate distance is discussed. The characteristics of YBCO thin films were analyzed by using XRD, R-T measurement, AFM, crosssectional TEM, and RBS. For examples of microwave device applications, The fabrication and characterization of the microstrip lowpass filter and bandpass filter are also presented.

1. 서론

고온초전도체가 발견된 이후로, 고온초전도체를 전체 및 부분적으로 이용할려는 광범위하고 다양한 전자소자 개발연구가 발표되었으며[1-5], 전자공학의 새로운 분야로 일컬어지는 저온 마이크로파 마이크로전자공학(cryogenic microwave microelectronics)이 차츰 각광을 받게되었다. 따라서 고온초전도체 및 금속 산화물계의 에피택셜 박막 성장은 매우 중요하고 핵심적인 관심사로 부각되었다[6]. 고온초전도 박막을 이용한 마이크로파 전자 소자(elements)에는 마이크로파 필터, 지연선, 저손실 공진기, 고성능 안테나 등이 있으며, 고온초전도체를 기저로 하는(based) 마이크로파 집적회로의 개발까지를 고려한다면, 고온초

전도 에피택셜 박막 성장과 마이크로파 특성이 우수한 기판재료의 개발은 필수적이다.

고온초전도 마이크로파 소자(회로)의 개발을 위한 박막의 선결조건은 높은 임계전류밀도(J_c), 높은 임계온도(T_c), 높은 임계자장(H_c) 외에 양호한 평활도와 우수한 배향을 가지며, 성장제어가 용이한 에피택셜 박막이어야 한다. 그리고 유전체 기판의 요구조건으로는 마이크로파 유전손실(tanδ)이 10⁻⁴보다 작아야 하며, 10GHz이상의 대역에서 사용할 수 있는 마이크로파 집적회로용 기판의 유전상수(ε)는 10정도이지만, 10GHz 이하의 대역용으로는 ε가 25보다는 작아야 한다. 그리고 기판의 면적은 10mm x 10mm 이상이 요구되므로, 대면적 고온초전도 에피택셜 박막의 성장도 매우 중요하다[7].

고온초전도 에피택셜 박막의 성장은 고온초전도체의 조성이 다성분이고, 성장축에 따른 이방성 정도가 크며, 박막성장시 기판과의 화학적 반응을 일으키는 등 공정변수가 많아 쉽지 않지만, 최근에 개발되고, 발달된 박막제조 장비 및 공정개발을 통해 성장제어가 용이하고 재현성 있는 양질의 고온초전도 박막제조가 가능해지고 있다. 그리고 다양한 박막증착 기법 중에서, 최근에 가장 많이 사용되는 방법으로는 스퍼터링법, MOCVD법, 펄스-레이저 증착법이 있다. 이들 중 본 연구팀이 사용한 펄스-레이저 증착법은 고온초전도 박막의 화학양론적인(stoichiometric) 제어가 용이하며, 고압의 산소 분위기 하에서도 에피성장이 가능하고, 성장속도가 매우 빠르다는 장점을 가지고 있다[8].

본 연구에서는 고온초전도 마이크로파 소자 창

출을 위한 MgO기판 상의 고온초전도 박막성장과 레이저 증착된 고온초전도 YBCO 박막의 특성을 몇가지 분석기법으로 살펴보고, YBCO/MgO/Ti/Al 구조의 고온초전도 마이크로파 필터의 특성도 보고한다.

II. 실험방법

(1) YBCO/MgO 고온초전도 박막의 제조

고온초전도 마이크로파 소자(회로)를 개발하기 위한 YBCO 박막성장에 사용된 펄스 레이저 증착장비는 펄스-레이저, 기판 가열용 히터(heater) 및 고온초전도 세라믹 타겟과 타겟홀더를 내장한 진공챔버, 제어장치등으로 구성된다. 펄스-레이저 증착(pulsed laser deposition)을 이용하면 화학당량을 그대로 유지하면서 다성분 조성의 산화물 박막을 성장시킬 수 있을 뿐 만아니라 제조공정도 간단하다. 본 연구에 사용한 고온초전도 YBCO/MgO 에피택셜 박막도 펄스-레이저 증착장비로서 제조하였으며, 고온초전도 박막 증착시 사용한 레이저 원(source)은 자외선 영역의 짧은 파장을 갖는 엑시머 레이저(ArF, KrF, XeCl등) 중에서 308nm의 파장과 30nsec의 펄스폭, 5Hz의 반복을 그리고 1J/cm²의 에너지 밀도를 갖는 XeCl 엑시머 레이저 빔(beam)이다. 그리고 박막 증착에 사용되는 유전체 기판은 마이크로파 특성이 우수하고 저온 마이크로파 대역(77K, 10GHz)에서의 유전상수가 9.6, 유전손실(tanδ)은 6.2 x 10⁻⁶ 정도인 MgO기판 이었다[7].

실제로 고온초전도 박막의 제조는 먼저 회전시키는(200 rpm정도로) 타겟의 표면처리를 위해 200회의 레이저 샷(shot)으로 타겟을 先처리하고, 증착전처리가 완료되면 기판을 가렸던 섀터를 제거하고, 3000회 ~ 5000회 정도의 레이저 샷을 고온초전도 YBCO 소결체(타겟)에 조사한다. 타겟의 표면으로부터 플룸(plume)이 생성되면, 타겟을 구성하던 원소들이 클러스터(cluster) 형태로 플룸을 통해 이동하고 적층됨으로서 타겟과 서로 마주보게 설치한 MgO 단결정 기판 위에 박막이 성장하게 된다. 이때, 박막성장을 위한 또다른 중요한 공정변수인 기판과 타겟과의 거리는 4cm를 고정하고, 증착중 기판의 온도는 770°C 정도를 유지하며, 챔버 내로 유입시키는 고순도 산소의 분압은 200 mTorr를 유지한다. 따라서 상기한 성장조건 하에서 0.12nm/sec의 증착속도로 YBCO박막이 성장되며, 증착을 끝낸 후에는 진공 챔버 내에 200 Torr의 고순도 산소를 채우고, 1시간에 걸쳐 진공을 깨지않은 상태에서 상온까지 냉각시키면 양질의 에피택셜 박막이 얻어진다. 이러한 증착장비 중 진공챔버의 개략도를 그림 1에 나타내었다.

한편, 商用的 기판으로 고온초전도 박막을 증착하기 전에 행하는 기판의 선처리에는 MgO기판의 경우, 반드시 필요하다. MgO기판은 흡습성(hygroscopic)이 강하므로 진공 건조기(desiccator)에 보관해야 하고, 증착 전에 행하는 세척에서도 증류수 대신에 유기용매인 TCE(trichloroethylene)로서 초음파 세척을 행한다(3분간). 이어서 아세톤으로 3분간, 다시 메탄올로서 초음파 세척하여(3분간) 불순물을 제거한 후, 고순도 질소가스로서 건조시킨다.

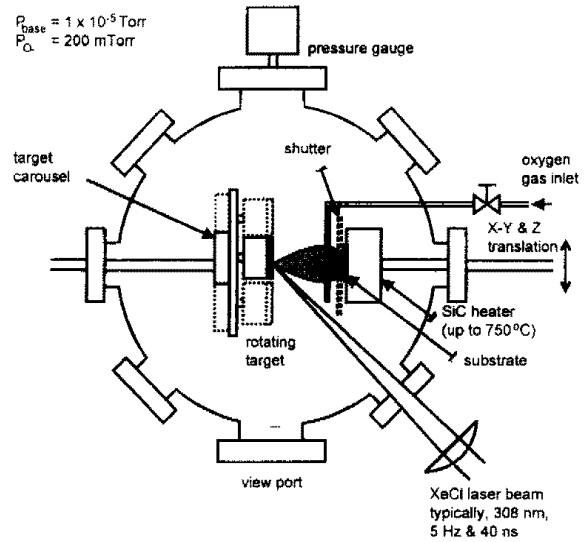


그림 1. 펄스-레이저 증착장비중 진공챔버의 개략도

(2) 성장한 고온초전도 박막의 특성분석

레이저 증착법으로 성장한 고온초전도 YBCO 박막의 전기적 및 자기적 특성, 결정성, 표면특성 등을 살펴보기 위해서 몇가지 분석방법을 사용하였다. 박막의 임계온도를 측정하기 위해서는 4-단자 저항측정법을 사용하였고, 자기적 특성은 SQUID(Superconducting Quantum Interference Devices)를 이용하여 박막의 자기이력곡선(magnetic hysteresis)을 측정하였다. 박막의 결정성은 XRD(X-ray diffraction)패턴 분석과 TEM(tunneling electron microscopy)영상분석, RBS(Rutherford backscattering spectrum)분석을 통해 살폈고, 표면형상(surface morphology) 및 미세조직, 그리고 표면 거칠기는 SEM(scanning electron microscopy)과 AFM(atomic force microscopy)을 사용하여 관찰하였다.

(3) 고온초전도 마이크로파 필터의 구현

레이저 증착법으로 제조한 고온초전도 에피택셜 박막의 마이크로파 응용 예로서, 고온초전도 마이크로스트립 평행결합선(parallel coupled-line) 방식의 대역통과필터와 오픈스터브선(open stub-line)방식의 저역통과필터를 설계 및 최적화한 후, 실제로 구현하였으며, 그림 2의 (a), (b)에 최적설계된 4-극 대역통과필터와 7-극 저역통과필터의 패턴을 나타내었다.

고온초전도 마이크로스트립 대역통과 및 저역통과필터를 구현하기 위하여, 최적회로 설계패턴과 전자빔-리소그래피 장비를 사용하여 회로원판(마스크)을 제작하였다. 따라서 제조한 YBCO/MgO 에피박막, 회로원판, 고속 회전도포기(spin coater), 노광장비(접촉정렬기) 그리고 ECR-이온 밀링장비(또는 습식식각장비)등을 사용하여, 설계한 필터패턴을 형상화(patterning)함으로써 고온초전도 마이크로스트립 필터들을 제작하였다. 그리고 기판 뒷면에는 마이크로파 전류의 누설을 방지하기 위한 접지평면(ground plane)을 증착하기 위하여, 전자선-증발법으로 Ti/Ag 이중 금속박막을 차례로 증착하였다.

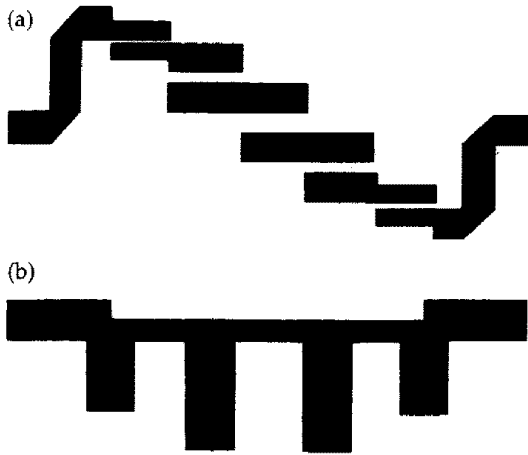


그림 2. 최적설계된 고온초전도 마이크로스트립 필터의 패턴 : (a) 4-극 대역통과필터와 (b) 7-극 저역통과필터

III. 결과 및 검토

펄스-레이저 증착장비의 진공챔버 내에 세척을 완료한 MgO기판(크기: 20mm x 20mm x 0.5mm)을 은접착제를 사용하여 기판홀더에 부착하고, 상기의 증착조건에 따라 고온초전도 YBCO/MgO 박막을 제조하였다. 임계전이온도(T_c)를 전형적인 4-단자법으로 측정한 저항 대 온도(R-T) 곡선으로, $T_c=89K$ 임을 얻었고 재현성 있게 제조할 수 있음도 알았으며 특히, 임계전이온도 前까지의 온도에 따른 전기저항의 변화상태로부터, 본 팀이 제조한 YBCO 박막은 강한 금속적 거동을 가짐을 알 수 있었고, 이 결과는 그림 3에 나타내었다. 그리고 결정성을 확인하기 위한, 투과전자현미경 영상(TEM-image)과 전자회절(ED)패턴의 관찰, X-선 회절스펙트럼 및 RBS 분석 등을 통하여, 성장한 박막은 c-축으로 강하게 배향된 에피택셜 박막임을 알 수 있었다. 특히, (006)피크에 대해 X-선 rocking curve(그림 4(b))를 통하여 살펴본 박막의 결정성은 MgO기판과 YBCO박막 간의 격자상수 차이에 의한 부정합(mismatch, 9%)으로 인하여 약 0.7도에 달하는 FWHM 값을 보여주었다. 그

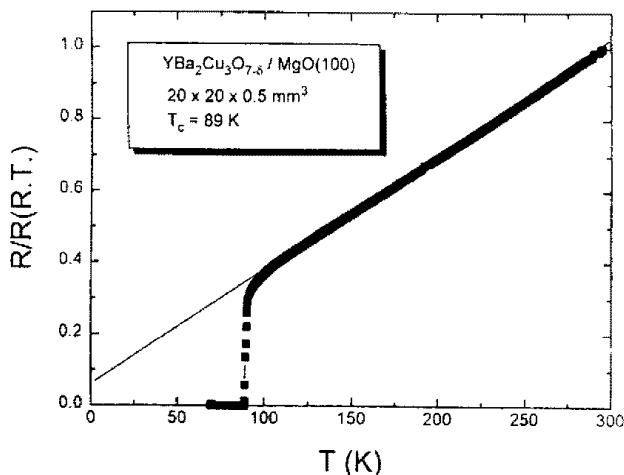


그림 3. 고온초전도 YBCO/MgO 에피택셜 박막의 온도에 따른 저항특성

리고 결정성 정도를 보다 잘 살펴보기 위하여 RBS 분석을 행하였으며, 10%이하의 채널링 yield(χ_{min})를 얻었기 때문에 우수한 결정성을 보유한 것으로 판단하였다. 이러한 결과는 그림 4, 그림 5, 및 그림 6에 실었고, 그림 7에는 고온초전도 YBCO/MgO 박막의 자기적 특성을 스쿼드(Quantum Design사 제작)로서 측정된 결과를 나타내었다. 즉 MgO기판 상에 증착한 박막을 3 mm직경의 원형패턴으로 제작한 후(식각으로), 박막의 c-축과 나란하게 자장을 가하면서 측정(77K에서) 결과이다

한편, 제조한 박막의 표면형상과 미세조직을 관찰하기 위하여, SEM과 AFM을 사용하였다. 그림 8에 YBCO/MgO 박막의 SEM 사진을 나타내었다. 박막의 표면은 대체적으로 평탄하였고, 중간중간에 미소한 핀홀(pin-hole)과 보울더(boulder)가 있음이 관찰되었지만 양질의 박막임을 알 수 있었다. 그림 9에 나타낸 AFM 사진과 높이 프로파일(3차원 및 2차원적 박막표면 거칠기)을 통하여, 박막의 표면에 생성된 보울더와 핀홀을 선명하게 확인할 수 있었으며, 전반적으로 박막표면은 10nm이내의 뛰어난 평활도를 유지하고 있는 것으로 판단되었다. 이상의 박막특성 분석으로부터, 비교적 증착조건이 까다로운 MgO기판 상에 성장한 YBCO 박막은 표면이 평탄하고 강한 c-축 배향으로 성장한 에피택셜 박막이며, 전기적 및 자기적 특성이 우수하고, 표면특성이 매우 양호하기 때문에 마이크로파 소자 응용에 적합함을 알았다.

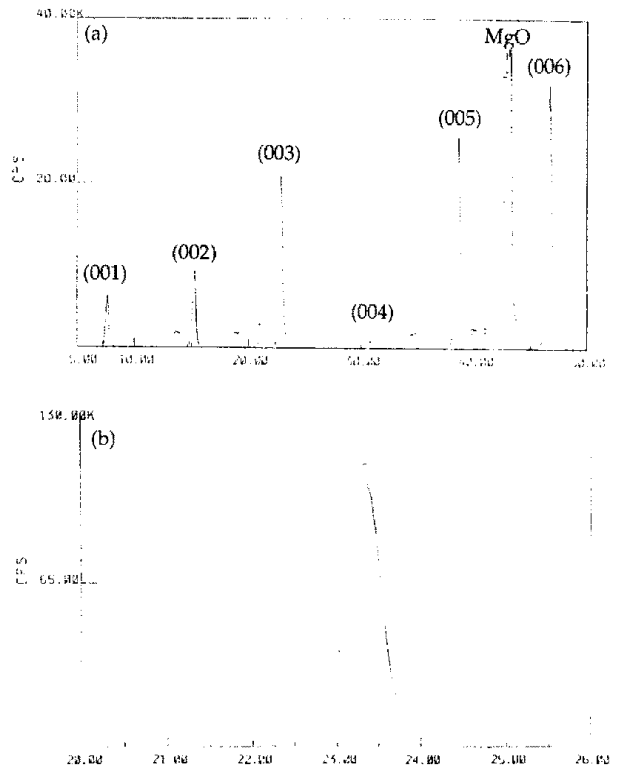


그림 4. YBCO/MgO 에피택셜 박막의 X-회절 실험 결과 : (a) XRD 패턴. (b) Rocking curve

전형적인 포토리소그래피 및 식각공정을 이용한 형상화 공정으로 마이크로스트립 평행결합선 방식의 4-극 대역통과필터와 오픈-스터브선 방식의 7-극 저역통과필터를 구현하였고, 최종적인 구조를 YBCO/

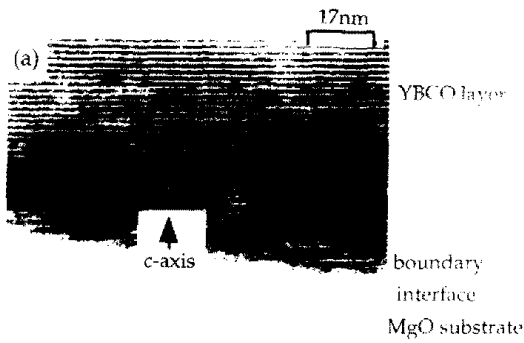


그림 5. YBCO/MgO 에피박막의 TEM영상(a)과 전자회절패턴(b)

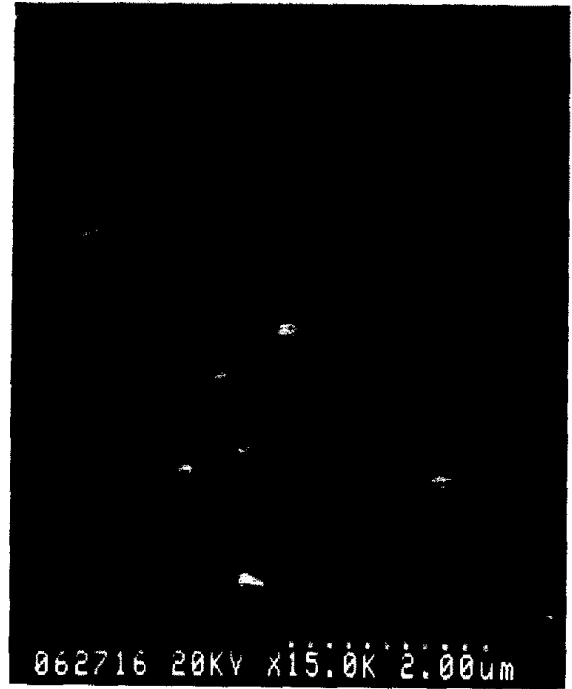
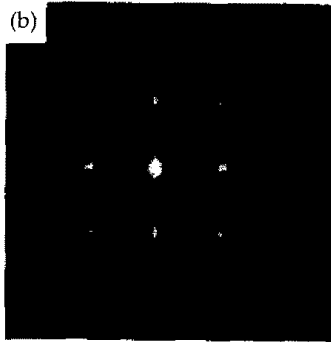


그림 8. YBCO/MgO 에피박막의 SEM사진

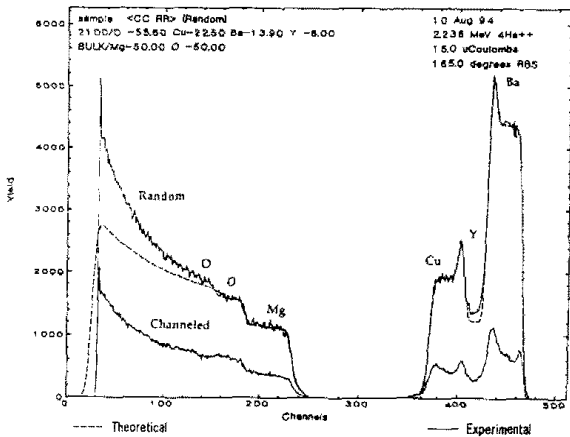


그림 6. YBCO/MgO 에피박막의 RBS 분석결과

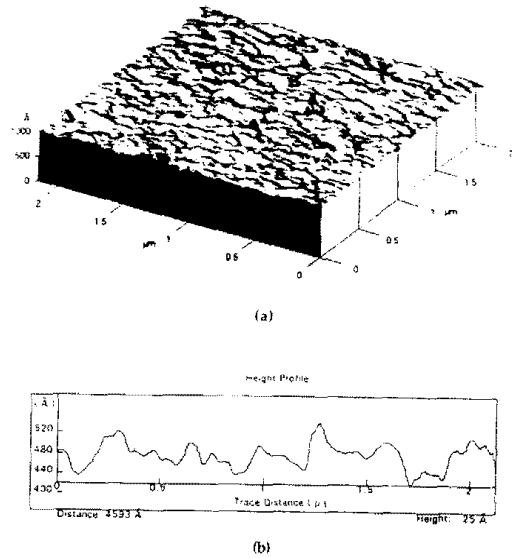


그림 9. YBCO/MgO 에피박막의 AFM 관찰결과 : (a) AFM image, (b) height profile

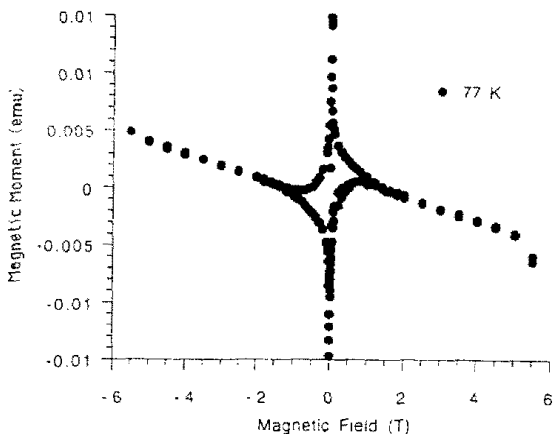


그림 7. YBCO/MgO 에피박막의 자기이력곡선(77K)

MgO/Ti/Ag가 되도록, 접지평면은 전자선 증발법으로 Ti(10nm)/Ag(2μm)형태의 이중금속 박막을 증착하였다. 완성한 YBCO/MgO/Ti/Ag 구조의 고온초전도 마이크로파 필터의 주파수 응답특성을 측정하기 위하여 자체제작한 3-성분형태의 시험치구(test-jig)를 사용하였다. 즉, 고온초전도 마이크로파 필터를 내장한 시험치구를 10K까지 측정할 수 있는, 저온냉각장치의 냉각헤드에 올려놓은 후, 냉각장치의 벽면까지 연결되어 있는 마이크로파 동축케이블과 접속시킨다. 이어서 백터 네트워크 애널리저(HP-8510C)

의 두개 포트와 접속시키고 눈금맞추기(calibration)를 행한 후, 마이크로파 응답특성인 삽입손실(S_{21})과 반사손실(S_{11})등을 측정하였다.

실제로 측정된, 고온초전도 평행결합선 방식의 4-극 대역통과필터와 오픈-스터브선 방식의 7-극 저역통과필터의 마이크로파 응답특성을 그림 10의 (a)와 (b)에 나타내었다. 그림으로부터 알 수 있는 바와 같이 4-극 대역통과필터의 경우에서, 중심주파수($f_0=11\text{GHz}$) 근처의 통과대역(대역폭, 600MHz)이 보여주는 삽입손실은 -1.0dB 정도로 아주 작았으며, 맥류(ripple)도 미소하였다. 한편 7-극 저역통과필터의 통과대역(차단주파수, 8GHz)은 0.5dB 이내의 삽입손실과 0.05dB 이내의 진폭을 갖는 맥류를 보여주었으며, 두종류의 마이크로파 필터의 저지대역은 모두 가파른 스퀘트 특성을 보여주었다. 그리고 반사손실 곡선으로부터 4-극 및 7-극 특성을 확인하였으므로, 고온초전도 YBCO/MgO 박막으로 구현한 마이크로스트립 4-극 대역통과필터 및 7-극 저역통과필터는 특성이 우수하게 발휘되는 고온초전도 마이크로파 필터임을 확인하였다.

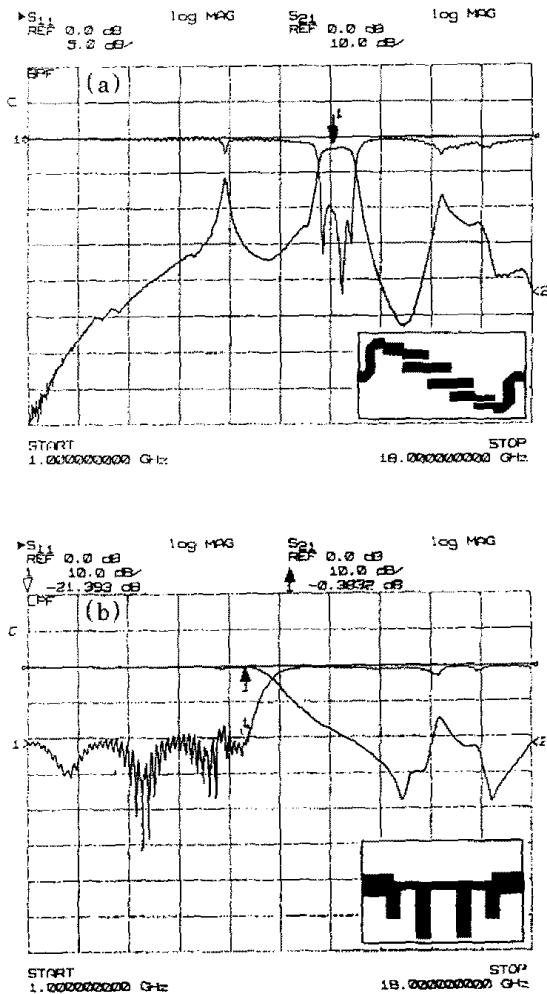


그림 10 : 고온초전도 마이크로파 필터의 측정된 주파수 응답특성: (a) 4-극대역통과필터($f_0=11\text{GHz}$), (b) 7-극 저역통과필터($f_{\text{cutoff}}=8\text{GHz}$)

IV. 결론

- (1) 펄스-레이저 증착법으로 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}/\text{MgO}$ 고온초전도 박막을 성장하였으며, 온도 의존적 저항 측정(89K급)과 XRD 패턴 분석, 자기적 특성 측정 등을 통하여 에피택셜 박막임을 확인하였다.
- (2) 다중 결합선로를 이용한 설계이론으로 마이크로파 4-극 대역통과필터와 7-극 저역통과필터를 설계하고, 마이크로파 설계시스템을 이용하여 최적회로패턴과 회로원판을 구현하였다.
- (3) 포토리소그래픽 및 습식식각공정을 이용하여 고온초전도 마이크로스트립 필터들을 구현하였으며(기판면의 접지평면은 Ti/Ag 이중금속 박막임), 3-성분 시험치구를 이용하여, 이들의 저온 마이크로파 특성을 측정하였다. 즉, 대역통과필터의 경우, 통과대역(중심주파수 $f_0=11\text{GHz}$, 대역폭=600MHz)의 삽입손실은 $-1.0\sim-2.0\text{dB}$ 정도로 매우 작았으며 맥류(ripple)도 미소하였다. 그리고 대역폭 전후에서 시작되는 저지대역은 가파른 스퀘트 특성을 잘 보여주었다. 그리고 저역통과필터(차단주파수, 8GHz)도 우수한 특성을 가짐을 확인하였다.

감사의 글

본 연구는 과기처 특정연구개발 사업의 연구비지원으로 수행되었기에 과학기술처에 깊이 감사드립니다.

참고 문헌

- [1] M. Nissenhoff, J. C. Ritter, G. Price and S. A. Wolf, FED Journal Vol. 3, Suppl. 1, 3(1993).
- [2] G. -C. Liang, D. Zhang, C. -F. Shih, M.E. Johansson, and R. S. Withers, To be published in IEEE Trans. on Appl. Supercond. (1995).
- [3] J. Talvacchio, R. G. Wagner and S. H. Talisa, Microwave J. June, 105 (1991).
- [4] K. Suzuki, K. Hayashi, M. Fujimoto, K. Yamaguchi, S. Yoshikawa and Y. Enomoto, SPIE Vol. 2156, 69 (1994).
- [5] H. J. Chaloupka, Proc. 24th European Microwave Conf., 23, (1994).
- [6] A. Alimoussa, M.J. Casanove, M. Schwerdtfeger, C. Villard and J. C. Villegier, Physica C 202, 23 (1992).
- [7] E. K. Hollman, O. G. Vendik, A. G. Zaitsev and B. T. Melekh, Supercon. Sci. Technol. No. 7, 609 (1994).
- [8] D. B. Chrisey and G. K. Hubler, "Pulsed Laser Deposition of Thin Films", JOHN WILEY & SONS, INC (1994).
- [9] K. Y. Kang, S. Y. Lee, G. Y. Sung, J. D. Suh, and E. H. Lee, SPIE Vol. 2156, 181(1994).