'97 대한전기학회 창립 50주년 하계학술대회 논문집 (MAO11)

레이저 어블레이션에 의한 다성분 박막의 방향성 제어 연구

박주형, 이상렬
연세대학교 전기공학과

Study on control of orientation of multicomponent thin film by laser ablation

Joo Hyung Park, Sang Yeol Lee
Department of Electrical Engineering, Yonsei University

Abstract - 펄스 레이저 증착법을 이용하여 MgO 기판 위에 YBCO 박막을 c 축으로 성장시켰다. 이를 위하여 다양한 두께의 YBCO 박막을 여러 온도에서 증착시킴으로서 두께와 온도에 따른 YBCO 박막의 방향성을 조사하였다. 레이저원으로는 Nd:YAG 레이저의 355 nm의 파장을 이용하였으며, 증착시 기판온도는 700℃와 750℃에서 박막의 두께를 3,000Å, 10,000Å, 20,000Å 등으로 변화시켜 증착하였다. 이렇게 증착되어진 박막의 표면은 SEM으로 관찰되어졌으며, Raman Spectrascopy로 박막을 분석하였고, XRD를 사용하여 그 박막의 배향성을 연구하였다. 본 논문에서는 이와 같은 분석과 연구를 통하여 증착되어진 다성분 박막의 배향성이 기판온도와 박막두께에 따라 민감하게 변화함을 체계적으로 분석하였으며, 그 결과 기판온도와 박막두께에 따른 YBCO 박막의 a 축, c 축 성장의 의존성을 확인하였다.

1. 서 론

펄스 레이저 증착법은 20여년 전부터 사용되어진 박막증착법으로서 최근 고온초전도체, 강유전체 및 세라믹 박막 등을 성공적으로 증착시킴으로써 다성분계 박막증착의 최적 공정으로 각광을 받게 되었다[1-3]. 특히 펄스 레이저 증착법은 타겟과 동일한 조성의 박막을 증착시킬 수 있어서 다성분 박막을 단일 타겟으로부터 쉽게 얻을 수 있다. 따라서 이러한 장점때문에 펄스 레이저 증착법을 이용한 고온초전도체 박막증착은 그 활용성과 유용성이 뛰어나다. 고온초전도 박막의 마이크로파 응용 즉, 필터, 공진기, 지연선, 전송선 등에서 기판재료에 대한 특별한 사항이 고려되고 있다[4]. 고온초전도 마이크로파 응용에 대한 기판재료의 특성에 대한 요구사항은 기계적 강도, 고품질 박막성장 가능성에 대한 알맞은 격자정합, 기판의 절연특성 등이다[5]. MgO 기판은 초전도 마이크로파 응용에 있어서 낮은 유전상수를 갖는 뛰어난 기판으로서 알려져 있고, 구조적으로 사파이어 기판보다 YBCO에 더욱 적합하고 $LaAlO_3$, $LaGaO_3$, $NdGaO_3$ 등과 같은 페로브스카이트 구조보다 더욱 우수한 마이크로파 특성을 갖고있다[6]. 그러나 초전도 YBCO는 a=3.82Å, b=3.89Å, c=11.67Å 등과 같은 격자상수를 갖는 사방정구조를 하고있다. a, b, c/3에 대한 격자상수에서의 차이는 매우 작기때문에 [100] 페로브스카이트 기판상 대부분의 YBCO 박막은 기판표면에 수직하게 a 축, b 축, c 축 등이 혼합된 적층결정을 갖는다[7-9]. a, b, c 결정의 혼합은 또한 in situ 방법에 의해 만들어진 박막에서 관찰되어 진다[10]. YBCO의 비등방적 물리적 특성, 바람직하지 못한 결정경계, c 축에 평행하게 성장하는 비율과 수직하게 성장하는 비율의 차이에 의한 거칠은 표면 등 때문에 혼합된 적층결정을 형성하는 이러한 경향은 YBCO 박막의 응용에 심각한 영향을 미친다[11]. 미세구조에 대한 자세한 이해와 미세구조를 제어하는 능력은 성공적인 소자응용에 있어서 중요한 역할을 한다.

이 논문에서는 레이저 어블레이션에 의해 적층성장된 YBCO 박막의 두께와 증착온도 등과 배향성 사이의 관계를 연구하였다.

2. 본 론

2.1 실험 방법

그림 1에 나타난 펄스 레이저 증착시스템을 이용하여 MgO (100) 기판위에 YBCO 박막이 355 nm 파장의 Nd:YAG 레이저에 의해 증착되었다. 타겟표면과 레이저 빔이 이루는 각도를 45° 로 유지하고 렌즈를 통해 집광시킨 1-2 J/cm^2의 에너지밀도와 5 Hz의 반복율을 사용하였다. 증착에 앞서, 1 cm×1 cm 크기의 MgO 기판을 세척하기 위해 아세톤과 메탄올에서 초음파 세척기로 5분씩 세척하여 질소가스로 건조시켰다. YBCO 초전도 타겟표면을 사포로 문질러 표면을 최대한 매끈하게 만든 후 타겟을 회전가능한 타겟홀더에 은페이스트를 이용하여 부

착하였다. 기판온도가 700℃와 750℃, 산소압 200 mTorr에서 YBCO 적층박막을 증착하였다. 박막두께를 3,000Å, 10,000Å, 20,000Å 등으로 변화시켜 체계적으로 증착하였다. YBCO 박막이 증착된 후, 산소압을 500 Torr로 증가시켜 550℃까지 천천히 냉각시키고 그 온도에서 30분간 어닐링을 하고난 후 상온으로 냉각시켰다. X-ray diffraction (XRD), Raman spectroscopy를 이용하여 YBCO 박막의 배향성을 관찰하고 분석하였다.

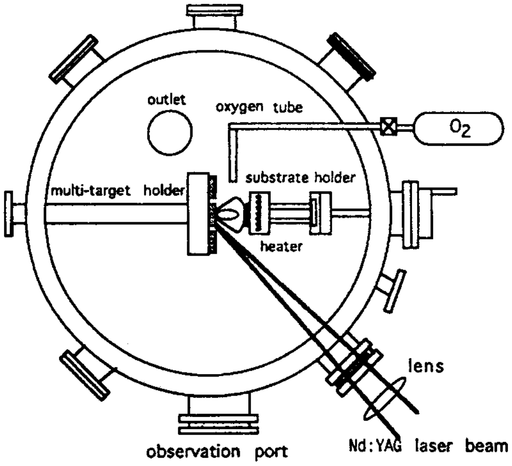
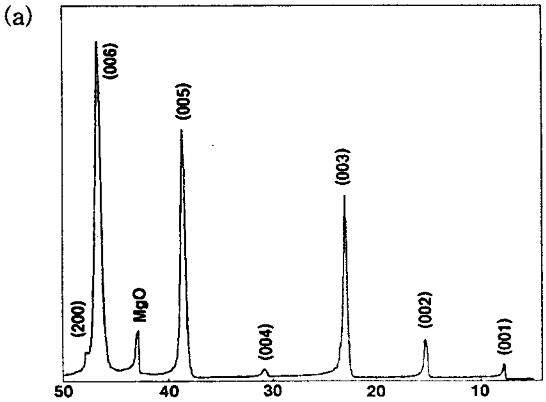


그림 1. 펄스 레이저 증착시스템 개략도.

2.2 결과 및 고찰

초전도 YBCO 박막의 특성을 XRD, SEM, Raman spectroscopy 등에 의해 나타내었다. 임계온도는 4단자 측정법으로 측정되었으며 85-88K 를 보였다.

그림 2는 700℃와 750℃에서 증착된 10,000Å 두께의 YBCO 박막에 대한 XRD 패턴을 보이고 있다. 750℃에서 증착된 10,000Å 두께의 박막에서 c 축 배향을, 700℃에서 증착된 10,000Å 두께의 박막에서는 a 축과 c 축이 섞여있음을 관찰할 수 있다.



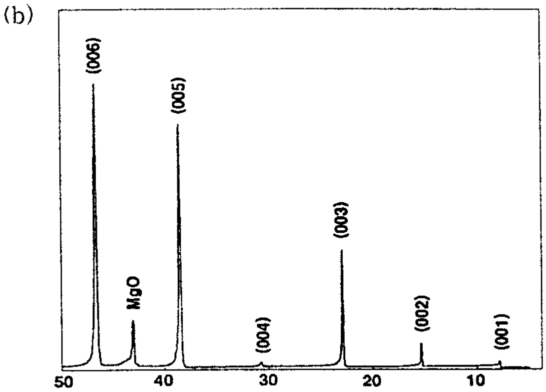


그림 2. (a) 700℃와 (b) 750℃에서 증착된 10,000Å 두께의 YBCO 박막에 대한 XRD 패턴.

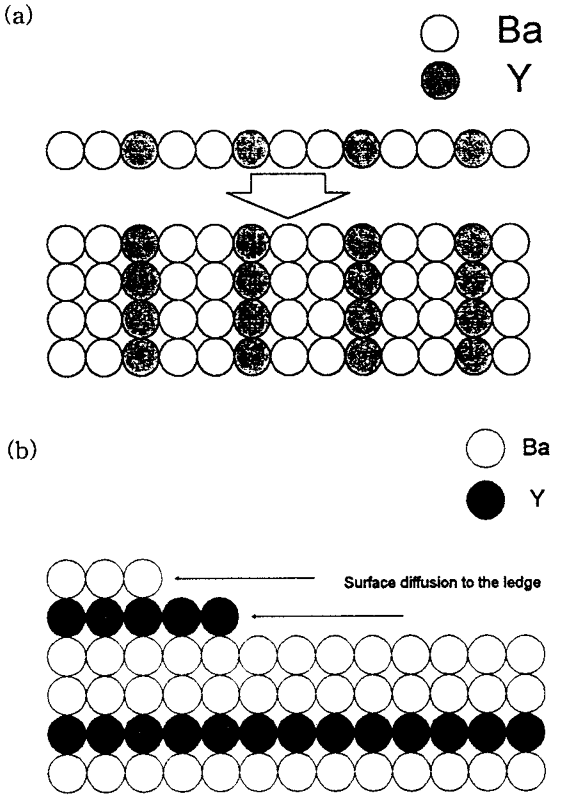


그림 3. (a) a 축 성장(높은 산소압과 낮은 기판온도), (b) c 축 성장(낮은 산소압과 높은 기판온도)의 경우 PLD(Pulsed Laser Deposition)에 의한 YBCO 박막의 성장 메카니즘.

또한, 700℃와 750℃에서 증착된 20,000Å 두께의 박막에서는 모두 a 축과 c 축이 섞여있는 배향성을 나타내었다. Raman spectroscopy의 결과도 이런 결과와 일치하는 모습을 보였다.

박막의 두께를 증가시킴으로써 완전한 c 축 배향에서 a 축과 c 축이 섞여있는 혼성배향으로 박막배향성이 전이되는 현상은 그림 3에서 나타난 것과 같이 기판표면 위에서의 adatom mobility의 감소를 유발하는 표면냉각의 효과에 의해 설명되어질 수 있다. 또한, 박막두께를 증가시킴으로써 나타난 표면냉각의 효과처럼 기판온도를 감소시킴으로써 c 축 배향에서 a 축 배향으로의 전이를 일으키는 기판온도의 효과를 관찰할 수 있다. 박막배향성 변화의 결과는 표 1에 요약되어 있다.

표 1. 실험결과 요약

온 도 \ 두 께	3,000Å	10,000Å	20,000Å
750℃	c 축	c 축	a, c 축
700℃	c 축	a, c 축	a, c 축

3. 결 론

레이저 어블레이션에 의해 적층성장된 YBCO 박막의 두께와 증착온도 등과 축의 배향성 사이의 관계를 연구하였다. c 축 배향에서 a 축과 c 축이 섞여있는 혼성배향으로 박막배향성이 전이되는 현상은 박막두께를 증가시키거나 기판온도를 감소시킴으로써 관찰할 수 있었다. 이것은 기판표면 위에서 adatom mobility의 감소를 유발하는 표면냉각의 효과에 의해 설명되어질 수 있다.

[참 고 문 헌]

[1] S.Y. Lee, Q.X. Jia, W.A. Anderson, and D.T. Shaw, "*In situ* laser deposition of supercon -ducting $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ thin films on GaAs substrates", J. Appl. Phys. 70, p.7170, 1991

[2] Gary A. Petersen, Tr. and J.R. McNeil, "Effects of oxygen partial pressure on lead content of PLZT thin films produced by excimer laser deposition", Thin Solid Films 220, p.87, 1992

[3] G.A. Prinz, "Hybrid ferromagnetic-semicon -ductor structures", Science 250, p.1092, 1990

[4] S.Y. Lee, K.Y. Kang, and D. Ahn,"Fabrication of YBCO superconducting dual mode resonator for satellite communications", IEEE Trans. Appl. Supercond. 5, p.2563, 1995

[5] B.F. Cole, G.C. Liang, N. Newman, K. Char, G. Zaharchuk, and J.S. Martens, "Large-area thin films on sapphire for microwave applications", Appl. Phys. Lett. 61, p.1727, 1992

[6] Cheung JT, Gergis I, James M, and DeWames Re "Reproducible growth of high quality $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ film on (100) MgO with a $SrTiO_3$ buffer layer by pulsed laser deposition" Appl. Phys. Lett. 60, p.3180, 1992

[7] C.H. Chen, J. Kwo, and M. Hong, "Microstructures of $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ superconducting thin films grown on a $SrTiO_3$ (100) substrate", Appl. Phys. Lett. 52, p.841, 1988

[8] J.D. Budai, R. Feenstra, and L.A. Boatner, "X-ray study ogf in-plane epitaxy of $YBa_2Cu_3O_x$ thin films", Phys. Rev. B39, p.12355, 1989

[9] S.W. Chan, D.M. Hwang, and L. Nazer, "Microstructure of $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ thin films grown on a single-crystal $SrTiO_3$", J. Appl. Phys. 65, p.4719, 1989

[10] D.M. Hwang, T. Venkatesan, C.C. Chang, L. Nazer, X.D. Wu, A. Inam, and M.S. Hegde, "Microstructure of *in situ* epitaxially grown superconducting Y-Ba-Cu-O thin films", Appl. Phys. Lett. 54, p.1702, 1989

[11] B.M. Clements, C.W. Nieh, J.A. Kittl, W.L. Johnson, J.Y. Josefowicz, and A.T. Hunter, "Nucleation and growth of YBaCuO on $SrTiO_3$", Appl. Phys. Lett. 53, p.1871, 1988