

Surface morphology of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ thin films prepared by the PLD method

PLD법으로 제작한 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ 박막의 표면상태 변화

Gi Youl Han^{a,b}, Tae Jong Hwang^{a,c}, Dong Han Ha^{a,*}, Seong Cho Yu^b, Kyu Won Lee^a

한기열^{a,b}, 황태종^{a,c}, 하동한^a, 유성초^b, 이규원^a

^a Korea Research Institute of Standards and Science, P. O. Box 102, YuSong, TaeJon, Korea 305-600

^b Department of physics, ChungBuk National University, CheongJu 361-763, Korea

^c Department of Physics, YeungNam University, KyungSan, Korea

^a 대전광역시 유성우체국 사서함 102, 한국표준과학연구원
^b 충청북도 청주시 흥덕구 개신동 산 48 충북대학교 물리학과
^c 경상북도 경산시 대동 214-1 영남대학교 물리학과

Abstract

We have observed the morphology of YBCO thin films grown on the $\text{SrTiO}_3(100)$ substrates by the Pulsed Laser Deposition method. AFM and SEM images show that the YBCO grains grow spirally from their own seeds whereas outgrowths are considered to remain unchained as the film thickness increases. The images of various stages of film growth suggest that the outgrowths of 1000~2000 Å size are mainly formed at the very early stage of film growth. The results of XRD measurement clearly show that even a film of about 10 Å thickness already forms orthorhombic YBCO structure although common superconducting resistivity behavior is known to be observed for the films with thickness above 100 Å.

Keywords : Thin film, Outgrowth, AFM, SEM

I. Introduction

고온초전도 박막을 제작하는 방법들 중 가장 널리 쓰이고 있는 것은 Pulsed Laser Deposition (PLD)법이다. 펄스형태의 레이저빔을 타겟에 입사시키면, 격자구조가 끊어진 물질들이 타겟

의 표면에 대하여 수직방향으로 방출 (플룸) 되는데, 이러한 플룸을 이용하여 기판 위에 박막을 성장시키는 방법을 PLD법이라고 한다. PLD법에서 박막의 표면상태를 결정짓는 조건으로는 pre-cleaning 여부, 기판과 타겟 사이의 거리, 기판의 종류, 기판온도, 산소분압, 레이저 파워, 레이저 반복율 등이 있다[1]. 이러한 제작조건을 적절히 조절함으로써 grain (알갱이)의 크기, 표면거칠기, outgrowth의 크기와 개수 등

* Corresponding author. Fax: +82 42 868 5475
e-mail: dhha@kriss.re.kr

과 같은 표면상태를 제어할 수 있다. PLD법을 이용한 박막제작은 타겟의 조성과 거의 동일한 조성을 갖는 박막을 제작할 수 있다는 장점이 있으나, 매끈한 표면이 요구되는 다층박막을 이용한 전자소자의 개발 시에 장애가 될 수 있는 outgrowth가 초전도상과 함께 생성된다는 단점도 가지고 있다[2,3].

본 연구에서는 일정한 조건 하에서 PLD법으로 SrTiO₃(STO) (100) 기판 위에 YBa₂Cu₃O₇ (YBCO) 박막을 성장시키고 YBCO matrix(영역)의 성장, outgrowth의 형성 등을 AFM, SEM, XRD 등의 방법으로 관찰하였다.

II. Experiments

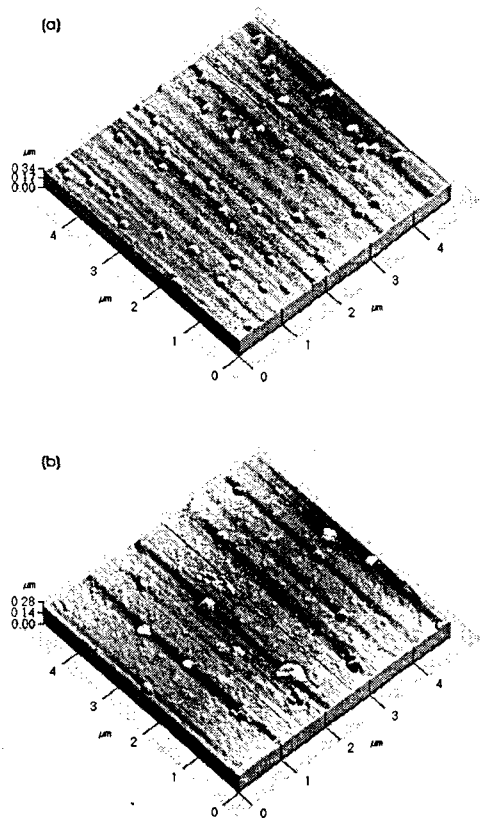
열처리된 STO 기판 위에 PLD법을 이용하여 YBCO 박막을 증착하였다. STO기판은 1050 °C에서 열처리한 후 은접착제를 사용하여 기판 홀더에 부착시켰다. KrF 엑시머 레이저(Lambda Physik Compex 205 : $\lambda=248$ nm)에서 방출되는 420 mJ의 펄스형태의 빔을 1.5×6.5 mm²의 면적으로 집광시켜서 YBCO 타겟에 45°로 입사하였으며, 레이저의 반복율은 1 Hz 혹은 3 Hz를 경우에 따라 달리 선택하였다. 상용 고밀도 YBCO 타겟을 600번 및 1000번 사포로 순차적으로 연마한 후에 사용하였으며, 박막을 증착하기 전 타겟을 산소분압 400 mTorr, 레이저 파워 420 mJ, 반복율 3 Hz의 조건 하에서 3분 30초간 pre-cleaning하였다.

증착 시에 기판과 타겟 사이의 거리는 56 mm, 산소분압은 100 mTorr, 기판온도는 800 °C, 레이저 파워는 420 mJ, 레이저 반복율은 1 혹은 3 Hz이었다. 이 경우 YBCO박막의 증착율은 약 1 Å/pulse이었다. 레이저 펄스를 1, 4, 10, 20, 45, 90, 630, 900, 1260회로 달리하여 박막생성 과정을 조사하는데 필요한 여러 가지 두께의 YBCO 박막을 제작하였다. 표면형상은 AFM으로 분석하였으며 박막의 단면은 YBCO박막을 절단한 후 SEM으로 관찰하였다. XRD 패턴으로 박막의 결정성을 조사하였으며 임계온도는 4 단자법으로 측정하였다.

III. Results and Discussion

그림 1은 레이저 펄스를 각각 1, 10, 630, 900,

1260회 타겟에 입사시켜서 제작한 박막의 표면형상을 AFM으로 관찰한 결과이다. 박막두께 조절을 용이하게 하기 위하여 (a)와 (b)는 레이저의 반복율을 1 Hz로 기타는 3 Hz로 하여 증착하였다. (a)에서 증착이 시작됨과 동시에 최초 1회의 레이저 펄스에 의해서 크기가 1000~2000 Å 정도인 outgrowth가 기판 표면에 이미 생성되며 또한 YBCO상의 seed(씨앗)으로 생각되는 매우 작은 알갱이들이 골고루 흩어져 있음을 볼 수 있다. (b)는 10회 정도의 증착에서 이미 YBCO 알갱이들이 성장하기 시작함을 보여주지만, 아직 알갱이의 모양이 불규칙할 뿐만 아니라 기판 전체를 겨우 덮는 정도이다. 증착이 진행됨에 따라 YBCO 영역이 점점 더 두꺼워지는데 (c)에서 처럼 630회 증착한 경우 모양과 크기가 균일한 YBCO 알갱이들이 기판 전체에 골고루 형성됨을 알 수 있다. 또한 YBCO 영역의 표면거칠기 (root mean square



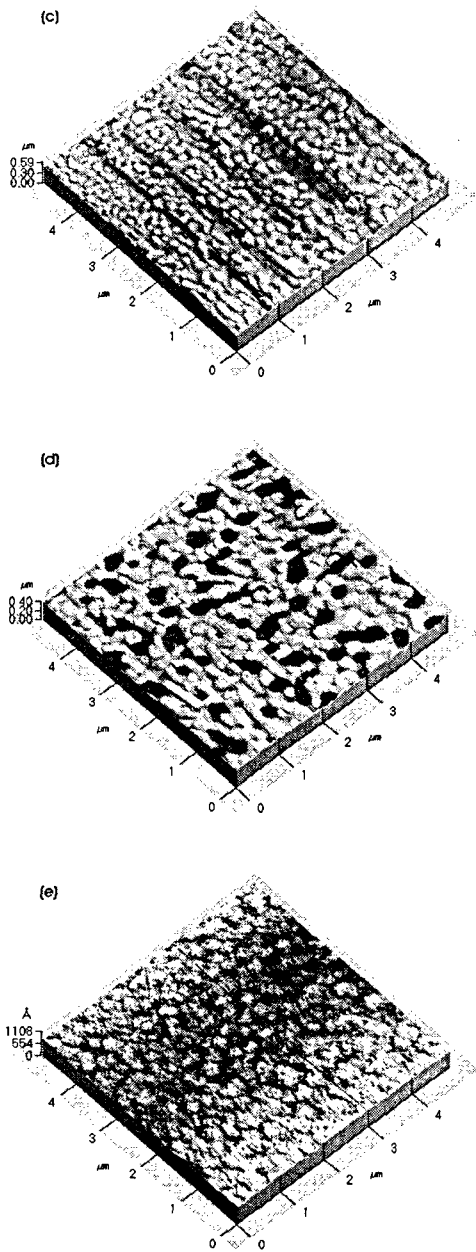


그림 1. STO 기판 위에 (a) 1 회, (b) 10 회, (c) 630 회, (d) 900 회, (e) 1260 회 증착시킨 YBCO 박막의 AFM 이미지

roughness) 값이 증가하였는데 이는 알갱이와 알갱이 사이의 경계가 뚜렷해짐에 따라 나타나는

현상이다. (d)에서는 YBCO 영역은 빠르게 성장하는 반면에 outgrowth들은 거의 자라지 못하므로 outgrowth 영역이 상대적으로 우묵하게 들어간 형태로 보인다고 생각된다. (e)에서는 더욱 성장한 YBCO 영역이 모든 outgrowth를 덮어서 표면에는 더 이상 outgrowth들이 보이지 않는다. 즉 증착이 진행되더라도 박막형성의 초기에 생성된 outgrowth들은 더 이상 성장하지 않지만 YBCO 영역은 계속 성장하여, 결국은 (e)의 경우에서 처럼 outgrowth들이 보이지 않게 된다고 생각한다.

그림 1로부터 outgrowth는 대체로 증착 초기에 형성되며, 증착이 진행되어 YBCO 층이 두꺼워질수록 outgrowth의 생성빈도는 줄어드는 것으로 생각된다. 또한 일단 형성된 outgrowth는 증착이 진행되어도 크기나 모양이 거의 변하지 않는 반면 YBCO 영역은 계속 성장하는 것으로 추측된다.

그림 2는 각기 다른 두께의 YBCO 박막에 대한 XRD 측정 결과이다. 1회와 4회 증착한 경우에는 STO 기판의 피크만 나타난다. YBCO

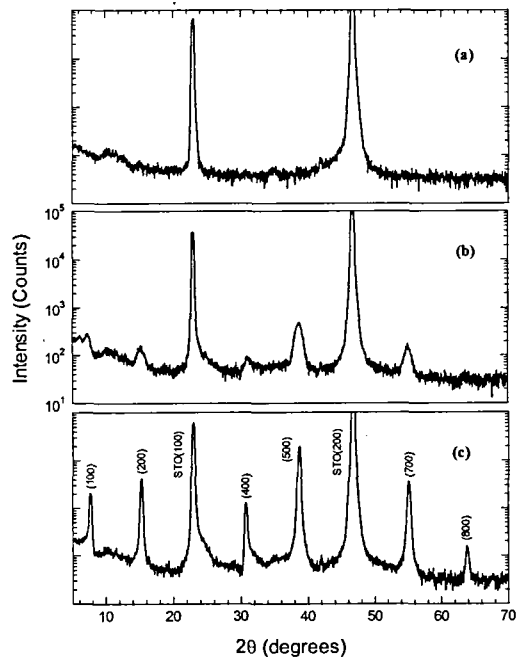


그림 2. STO 기판 위에 (a) 1 회, (b) 10 회, (c) 630 회 증착한 박막의 X-선 회절무늬.

상이 기판표면을 겨우 덮는 10회 증착한 경우에 이미 그림 2(b)에서처럼 YBCO 상의 (001) 피크들이 나타나기 시작하지만 (005) 피크의 FWHM 값은 약 1.2 °로서 그림 2 (c)와 비교해서 거의 2배 정도이다. 박막의 두께가 100 Å 이상이 되어야 전형적인 YBCO의 초전도특성이 나타난다고 알려져 있으나, 그림 2(b)에서 볼 수 있듯이 한 층 정도만 쌓여도 초전도구조를 이루게 됨을 알 수 있다. 90회 증착한 경우에도 XRD의 모양은 4회 증착할 때와 거의 같지만, 630회 이상 증착하면 그림 2(d)에서처럼 YBCO상의 피크가 뚜렷하게 나타난다.

그림 3은 산소분압 400 mTorr, 기판온도 800 °C, 레이저 파워 420 mJ, 레이저 반복율 3 Hz 의 조건에서 3분 30초간 증착한 박막의 단면 SEM 사진이다. 옆으로 길게 이어진 흰색 선은

박막과 STO 기판과의 경계면이며, 시편을 앞 쪽으로 약간 기울인 상태에서 관찰하였기 때문에 사진에는 YBCO 박막의 단면 (경계면에 이웃하여 약간 어둡게 보이는 부분) 뿐만 아니라 윗면의 일부(사진 위 부분의 밝은 부분)도 함께 나타나 있다. Outgrowth의 크기는 1000~2000 Å으로서 그림 1의 AFM 결과와 잘 일치한다. Outgrowth는 대체로 그림 3(a)에서처럼 증착 초기에, STO 기판과 YBCO 층 사이의 경계면 주위에 주로 생성되지만 가끔 그림 3(b)에서처럼 YBCO층이 어느 정도 성장한 위에 생성되기도 한다. 그림 3(a)에서 크기가 작은 왼쪽의 outgrowth는 이미 YBCO 층에 완전히 덮였으나 오른쪽의 큰 것은 일부는 덮였으나 일부는 아직 표면 위로 솟아있다. Outgrowth의 형태는 대체로 타원형이며 그림 1과 3에서 알 수 있듯이 YBCO 상과는 달리 작은 씨앗에서부터 점점 커졌다기 보다는[2] 처음부터 일정한 크기로 단번에 생성되었다고 생각된다.

IV. Summary

본 연구에서는 STO(100) 기판 위에 PLD법으로 YBCO 박막을 제작할 때, YBCO 상과 outgrowth의 형성과정과 구조 등을 관찰하였다. 증착의 각 과정별로 박막의 표면 및 단면을 AFM과 SEM으로 관찰한 결과, YBCO 상은 작은 씨앗에서부터 계속 성장해 가며, YBCO 구조를 약 한층 정도 형성하는 불과 10 Å 정도만 증착되어도 YBCO의 XRD 피크를 보인다. 반면에 outgrowth들은 대체로 증착 초기에, 단번에 생성되며, YBCO처럼 작은 씨앗에서 서서히 성장해 가는 것은 아니라고 생각된다.

References

- [1] W. H. Tang, C. Y. Ng, C. Y. Yau and J. Gao, Supercond. Sci. Technol. 13, 580-583 (2000).
- [2] J. P. Gong, M. Kawasaki, K. Fujito, R. Tsuchiya, M. Yoshimoto and H. Koinuma, Phys. Rev. B 50, 3280-3287 (1994).
- [3] L. P. Guo, Y. J. Tian, J. Z. Liu, L. Li, Z. X. Zhao, S. F. Xu, H. B. Lu, Y. L. Zhou, Z. H. Chen, G. Z. Yang, Physica C 241, 30-36 (1995)

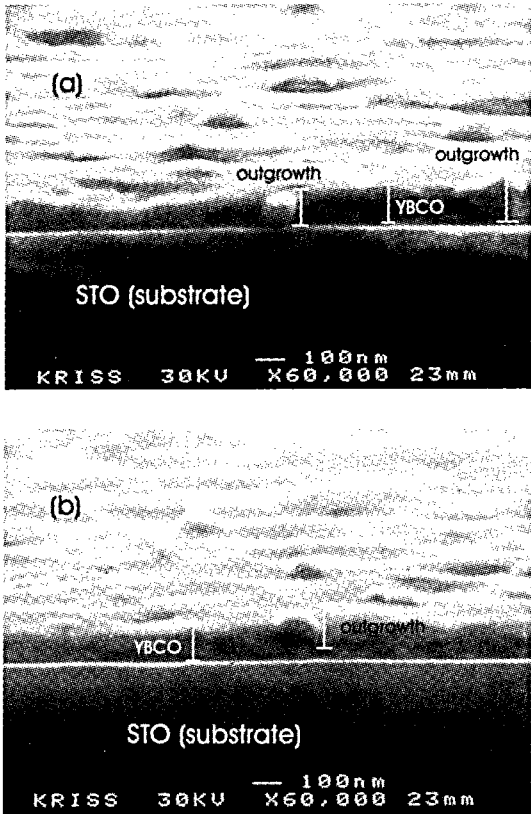


그림 3. YBCO 박막단면의 SEM 사진.