

스퍼터링과 펄스 레이저를 이용하여 CeO₂ 완충층 위에 증착된 YBa₂Cu₃O_{7-δ} 박막의 제작

Fabrication of Thin YBa₂Cu₃O_{7-δ} Films on CeO₂ Buffered Sapphire Substrate Using Combined Sputter and Pulsed Laser Deposition

곽민환, 강광용*, 김상현

(Min Hwan Kwak, Kwang Yong Kang*, Sang Hyun Kim)

Abstract

For the c-axis oriented epitaxial YBa₂Cu₃O_{7-δ} thin film on r-cut sapphire substrate it is necessary to deposit buffer layers. The CeO₂ buffer layer was deposited on sapphire substrate using RF magnetron sputtering system. We investigated XRD pattern of CeO₂ thin films at various sputtering conditions such as sputtering gas ratio, sputtering power, target to substrate distance, sputtering pressure and substrate temperature. The optimum condition was 15 mTorr with deposition pressure, 1:1.2 with O₂ and Ar ratio and 9cm with target to substrate distance. The CeO₂(200) peak was notable for a deposition temperature above 750°C. The YBa₂Cu₃O_{7-δ} was deposited on CeO₂ buffered r-cut sapphire substrate using pulsed laser ablation. The YBa₂Cu₃O_{7-δ}/CeO₂(200)/Al₂O₃ thin film was exhibited a critical temperature of 89K.

Key Words : YBCO thin film, Buffered YBCO thin film, Ceria buffer layer

1. 서론

고온초전도 박막제작에 있어서 에피택셜 성장이 용이한 YBa₂Cu₃O_{7-δ}(YBCO)가 주로 이용되고 있다. 기판재료로는 MgO, LaAl₂O₃ (LAO), SrTiO₃ (STO), YSZ(Y₂O₃ ~9 mol%로 안정화된 ZrO₂), 완충층이 있는 r-면 Al₂O₃ 등이 사용되어 왔다. 고온초전도 박막을 이용한 마이크로파 소자를 제작할 때 기판 재료의 선택에 있어서 중요한 변수는 tan δ와 기판의 유전율이다. 이러한 이유로 기판의 강도가 약하고 수분에 취약하며 YBCO 박막의 격자상수와 차이가 9% 정도로 비교적 크지만 유전율이 적당하고 tan δ

가 작은 MgO 기판을 많이 사용한다. MgO의 이러한 단점을 개선하기 위해 MgO기판 위에 CeO₂, SrTiO₃, YSZ 등의 완충층을 증착하여 마이크로파 소자에 응용하려는 시도들이 있다.[1]

본 연구에서는 기계적 강도가 우수하고 열전도가 좋으며 tan δ가 작고 가격이 다른 기판들에 비해 상대적으로 저렴한 r-면 사파이어(Al₂O₃) 기판 위에 RF 스퍼터링을 이용하여 CeO₂ 완충층을 증착하였다. 완충층을 펄스레이저 증착으로 할 경우 레이저의 강한 파워에 의해서 드롭렛이 생기게 되는데 이 때문에 깨끗한 완충층 표면을 얻기가 힘들다. 그러나 RF스퍼터링 경우 분위기 가스의 양과 타겟과 기판사이의 거리 RF 파워 등을 조절하여 표면 거칠기가 좋은 박막을 얻기가 용이하기 때문에 펄스 레이저를 이용한 in situ YBCO/CeO₂ 다층박막을 제작하지 않고 RF 스퍼터링을 이용하여 완충층을 증착한 후 펄스 레이저를 이용한 YBCO를 증착하였다.

경상대학교 전기공학과

(경남 진주시 가좌동 경상대학교,

e-mail: kmh75515@etri.re.kr)

* 한국전자통신연구원 정보통신원천기술연구소

CeO₂ 완충층 박막의 성장온도가 완충층의 결정방향에 미치는 영향을 조사하였으며, CeO₂ 결정방향이 펄스레이저를 이용해 증착한 YBCO박막의 전기적 특성에 미치는 영향을 조사하였다.

2. 실험 방법

10×10×0.5 mm³ 크기의 r-면 사파이어 기판을 아세톤, 메칠 알콜, 증류수를 이용해 세척하고 양호한 열 전달을 위하여 은 접착제를 이용하여 히터 표면에 부착하여 RF 마그네트론 스퍼터링 장비의 챔버에 장착하였다. 히터는 산소분위기에서 950℃까지 사용이 가능한 US Inc.사의 3 인치 히터를 사용하였다. 터보 분자 펌프를 이용하여 4×10⁻⁶Torr의 기본 압력에서 산소와 아르곤 가스의 비율을 1:1.2의 비로 넣어 15mTorr로 증착압력을 맞추었다. 타겟과 기판 사이의 거리는 9cm로 하였으며 타겟은 Cerac사의 3 인치 CeO₂(99.9%)을 사용하였다. RF 파워는 50W로 하였으며 기판온도에 따른 CeO₂ 박막의 결정방향을 조사하기 위하여 기판 온도를 450~850℃로 하였으며 박막의 증착속도는 1nm/min으로 45분간 증착하였다.

증착된 완충층 박막의 특성을 동일 조건에서 비교하기 위하여 450~850℃까지 100℃간격으로 증착한 박막 다섯 개를 펄스 레이저 챔버에 동시에 장착한 후 레이저 빔은 고정하고 히터 부분을 이동시키면서 증착하였다.[그림 1]

펄스 레이저는 Lambda Physik사의 파장 248nm 인 KrF 엑시머 레이저(COMPEX 205)를 사용하였으며 레이저 파워는 300mJ, 펄스 속도는 5Hz로 하였다. 챔버의 기본 압력은 5×10⁻⁶Torr로 하였고 증착시 압력은 O₂ 170mTorr로 하였고 기판온도는 760℃로 하였고 타겟과 기판 사이의 거리는 7cm로 하였다. 타겟은 Cerac사의 YBa₂Cu₃O_{7-δ} 1 인치 타겟

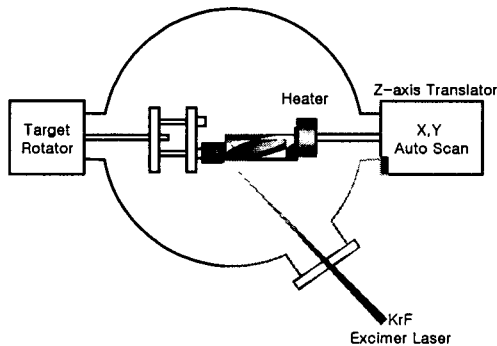


그림 1. 펄스 레이저 증착 장치의 구성도

을 사용하였다. 증착 속도는 0.153 nm/shot으로 10분간 증착하였으며 증착 후 470℃, 500mTorr의 산소 분위기에서 30분간 열처리 한 후 상온까지 냉각하였다.

박막의 결정성 분석은 XRD 분석을 통해서 하였으며 표면은 SEM을 통해서 관찰하였다. YBCO 박막의 R-T 특성 분석은 CTI사의 극저온 냉동기가 부착된 I-V 측정장치에서 4단자 법을 이용하여 측정하였다.

3.결과 및 고찰

r-면 사파이어 기판 위에 c-축 성장된 양질의 YBCO 박막을 얻기 위해서 CeO₂ 박막을 완충층으로 성장하였다. 박막 증착시 산소와 아르곤 가스의 비율과 스퍼터링 파워, 증착압력을 조절하여 증착한 박막의 XRD분석 결과 산소와 아르곤의 비율 1:1.2, 스퍼터링 파워 50W, 증착압력 15mTorr에서 최적의 증착조건을 얻었다. 증착온도에 따른 완충층의 결정성을 분석하기 위하여 XRD 분석을 하였다.

그림 2에서 보는 것과 같이 기판온도 650℃까지는 주로 CeO₂ (111) 피크가 나타나다가 750℃부터는 (111) 피크는 없어지고 (200) 피크만 보이기 시작한다. (100) 방향으로 성장된 CeO₂ 완충층의 경우 YBCO와 격자상수의 차이가 0.7%정도로 매우 작다. 그래서 c-축 성장된 양질의 YBCO박막을 제작할 수 있다. 이와 같은 결과에서 CeO₂를 YBCO박막 증착을 위한 완충층으로 사용하기 위해서는 박막 증착시 기판의 온도를 750℃이상으로 해야 함을 알 수 있다.[2]

그림3은 온도에 따른 CeO₂ 박막의 SEM 표면사진을 나타낸다. 증착온도 450℃에서 650℃까지의 표면 사진은 표면의 입자들의 형성이 완전하지 못한 것을

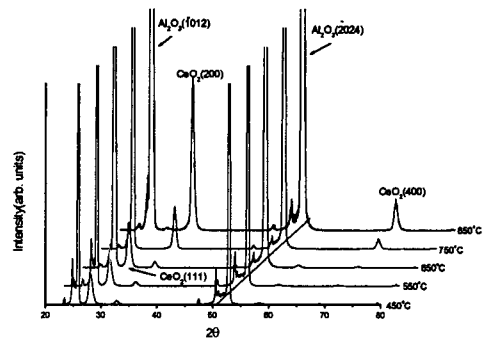


그림 2. 증착 온도에 따른 X-선 회절 패턴

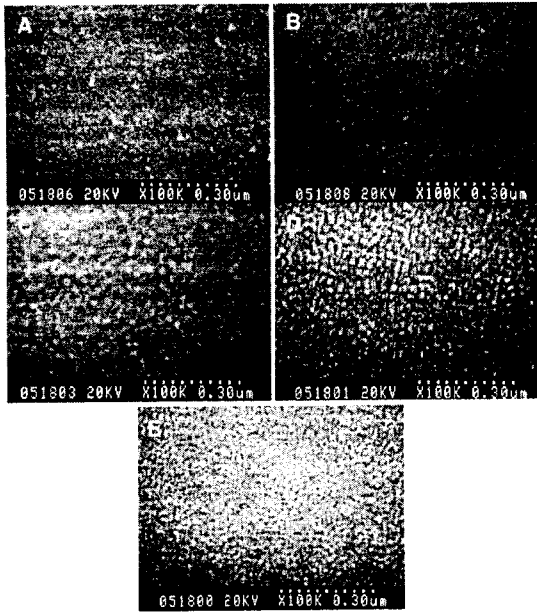


그림 3. 증착 온도에 따른 CeO₂ 박막의 표면 사진.
A.450°C B.550°C C.650°C D.750°C E.850°C

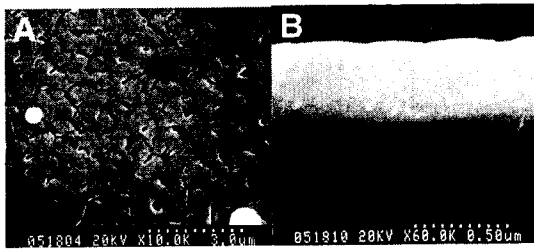


그림 4. 850°C에서 증착된 CeO₂ 박막위에 증착된 YBCO 박막의 사진. A.표면 B.단면

볼 수 있고 750°C와 850°C에서 성장된 CeO₂ 박막의 표면은 입자들이 균일하게 잘 성장된 것을 알 수 있다. 이는 (200) 방향성 만 보이는 X-선 회절 분석에 의한 결과와 잘 일치함을 알 수 있다.

증착한 완충층에 펄스 레이저를 이용하여 YBCO 박막을 증착하였다. 챔버의 조건은 170mTorr 산소 분위기에서 기판의 온도는 760°C로 하였으며 기판은 은 접착제를 이용하여 히터에 부착하였다. 동일한 조건으로 박막의 특성을 비교하기 위하여 레이저의 파워는 3J/cm²으로 하였으며 5Hz로 10분간 3000shot으로 하였으며 박막의 두께는 SEM 단면 촬영을 통해서 측정하였으며 460 nm였다.

그림 4에서 보는 것처럼 매우 잘 증착된 YBCO 박막을 얻었다.[3,4] CeO₂ 완충층을 이용하여 증착된

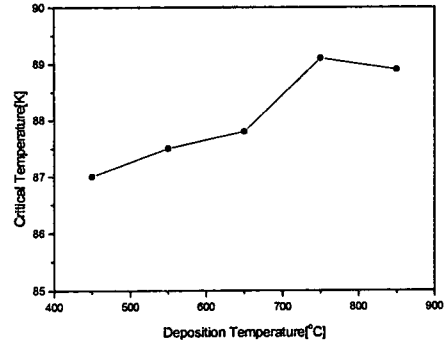


그림 5. 박막 증착 온도에 따른 임계온도의 변화

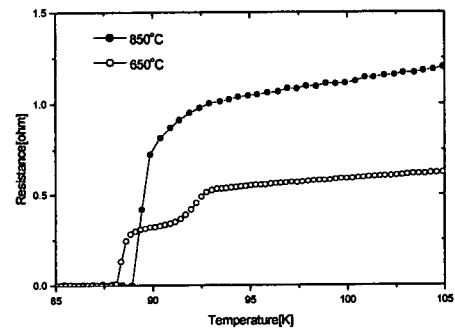


그림 6. 임계온도 부근에서 저항 특성 곡선

YBCO 박막의 전기적 특성을 측정된 결과는 그림 5에 나타내었다. 그림 2의 XRD 패턴에서 CeO₂ (111) 피크가 나타나지 않는 750°C에서 제작된 CeO₂ 박막 위에 증착된 박막의 임계온도가 89.1K로 가장 높게 나타났고 (111) 상과 (200)상이 같이 존재하는 650°C 이하의 온도에서 증착된 YBCO 박막의 경우는 (200) 상만 존재하는 750°C이상의 기판온도에서 증착된 시편에 비해 전체적으로 낮은 임계온도를 가짐을 알 수 있었다. 그리고 이 두 가지 상에 의해서 임계온도 부근에서 (111)과 (200) 면에 의해 두 가지 특성을 보이는 계단형 저항-온도 곡선을 나타낸다.[그림 6]

이는 XRD분석, SEM 표면 분석에서 얻은 결과와 같이 전기적 특성 곡선에서도 (111)과 (200) 상이 동시에 존재 할 경우 YBCO 박막의 전기적 특성에 좋지 않은 영향을 주는 것으로 판단 된다.

4 결 론

마이크로파 고온초전도 소자의 제작에 이용할 수 있는 양질의 고온초전도 박막을 제작하기 위해 r-면 사파이어 기판 위에 CeO₂ 완충층을 RF스퍼터링을 이용하여 증착하였다. 산소와 아르곤 가스의 비율과 스퍼터링 파워, 증착압력을 조절하여 증착한 박막의 XRD분석 결과 산소와 아르곤의 비율 1:1.2, 스퍼터링 파워 50W, 증착압력 15mTorr에서 최적의 증착조건을 얻었다. CeO₂박막은 650℃이하에서는 (111) 상과 (200)상이 같이 존재하며 750℃ 이상에서는 (200)상만 관찰되었다. 완충층이 증착된 사파이어 기판에 펄스 레이저를 이용하여 YBCO 박막을 증착하여 미세구조를 관찰하고 전기적 특성을 측정하였다. CeO₂ (200) 상만이 존재하는 750℃이상의 온도에서 증착된 완충층을 이용한 YBCO 박막의 경우에 89.1K, 89.1K의 높은 임계온도를 가지는 양질의 YBCO 박막을 얻을 수 있었다.

참고 문헌

- [1] R. Wördenweber, "Growth of high-Tc thin films," Supercond. Sci. Technol. 12, pp R86-R102, 1999.
- [2] M. Spankova, I. Vavra, S. Gazi, D. Machajdik, S. Chromok, K. Fröhlich, L. Hellemans, S. Benacka, "Growth and recrystallization of CeO₂ thin films deposited on R-plane sapphire by off-axis RF sputtering," Journal of Crystal Growth, 218, pp. 287-293, 2000.
- [3] J. A. Greer, "High quality YBCO films grown over large areas by pulsed laser deposition," Journal of Vac. Sci. Technol. A 10(4), pp 1821-26, 1992.
- [4] P. B. Mozhaev, P. V. Komissinski, N. P. Kukhta, A. Kühle, G. A. Ovsyannikov and J. L. Skov, "Comparison of High-Pressure DC-Sputtering and Pulsed Laser Deposition of Superconducting YBa₂Cu₃O_x Thin Films" Journal of Superconductivity, Vol. 10, No. 3, 1997.