

# MOCVD공정에 의한 Ag 기판 위에 YBCO 박막의 증착

김호진<sup>\*\*,</sup>, 주진호<sup>\*\*</sup>, 전병혁<sup>\*</sup>, 김찬중<sup>\*</sup>  
\* 한국원자력연구소 원자력재료기술개발부  
\*\* 성균관대학교 신소재공학과

## Preparation of YBCO films on Ag substrates by MOCVD process

Ho-Jin Kim<sup>\*\*,</sup>, Jinho Joo<sup>\*\*</sup>, Byung-Hyuk Jun<sup>\*</sup> and Chan-Joong Kim<sup>\*</sup>  
\* Department of Nuclear Materials Development, Korea Atomic Energy Research and Institute  
\*\* Department of Advanced Materials Engineering, Sungkyunkwan University

Corresponding author: [ojkim2@kaeri.re.kr](mailto:ojkim2@kaeri.re.kr)

**Abstract** - We prepared YBCO coated conductor by direct deposition of YBCO on Ag substrate by a MOCVD method. The Ag substrate was only prepared by cold rolling. The XRD data of the as-rolled Ag tape showed the formation of dominant (420) oriented grains. Processing variables were the oxygen partial pressure ( $P_{O_2}$ ) and deposition temperature ( $T_d$ ). It was found that the a-axis oriented films were grown at lower  $T_d$  below 800°C, while the c-axis oriented films were grown about 800°C. The surface of the films consisted of a second inclusion phase dispersed in the YBCO matrix. The Cu-rich phase regions were observed at the YBCO/Ag interface probably due to the inter-diffusion of Ag and Cu.

### 1. 서 론

YBCO 초전도 박막공정은 크게 RABiTS법과 IBAD법으로 폭넓게 연구되어지고 있다. 양축 정렬된 금속기판을 모재로 사용하는 RABiTS법은 현재 CYC(CeO<sub>2</sub>/YSZ/CeO<sub>2</sub>)의 다중완충층이 일반적으로 사용되고 있다. 그러나 다중완충층의 경우 증착조건이 복잡해지고, 생산공정비용이 크게 증가되는 문제점을 안고 있다. 이러한 문제점을 해결하기 위해 완충층을 단층으로 만들기 위한 연구가 시도되어지고 있으나[1,2], 아직 뚜렷한 물질이 보고되지 않고 있다. 또 하나의 해결책으로 YBCO와의 화학반응을 일으키지 않는 금속모재를 사용하려는 연구가 진행되고 있으며, 대표적으로 Ag기판이 사용되고 있다[3,4]. Ag는 통전전류를 해소할 수 있고 화학적으로 안정하여 완충층없이 직접 YBCO박막을 증착시킬 수 있어 장선재 제조에 유리하다.

본 연구에서는 Ag 기판 위에 MOCVD 공정을 통해 YBCO박막을 증착하여 표면 미세조직을 관찰하였고, 증착조건에 따라 YBCO박막의 결정 성장 방향에 미치는 영향과 YBCO박막과 Ag판 사이 계면에서의 화학적 안정성을 관찰하였다.

### 2. 실험 방법

Table 1은 압연한 Ag 기판 위에 증착시킨 YBCO박막의 MOCVD 증착 조건을 나타낸 것이다. 원료물질로는 열적 안정성이 있으면서 비교적 낮은 온도에서 큰 증기압을 갖는 킬레이트 화합물을 사용하였다. 원료 물질은 4g으로 정량하여 50 ml의 THF(tetrahydrofuran, Aldrich사) 용매에 녹인 다음, 유리섬유 테이프를 원료용액에 넣어 원료용액이 유리섬유에 스며들도록 하였다. 유리섬유가 용액에 충분히 적셔지면 원료를 안정적으로 공급하기 위하여 belt식 화학 증착 장치를 사용한 CVD 장비에 유리섬유를 장착한 후, Ar가스를 흘리면서 유리섬유를 이동시켜 불필요한 THF 용매를 휘발시켰다.

YBCO 박막과 Ag의 결정구조를 관찰하기 위해서 X-ray diffraction을 사용하였다. 박막의 표면 미세조직을 알아보기로 Scanning Electron

Table. 1. The deposition conditions of the YBCO film by a MOCVD process.

Deposition Condition	YBCO film
Molar Ratio (Y:Ba:Cu)	1: 2.3 : 2.7
Setting Temperature	700 - 800°C
Oxygen Partial Pressure	0.24 - 2.30 torr
Total Pressure	5 - 20 torr
Deposition Time	15 - 30 min
Distance between showerhead and substrate	2 - 12 cm
Substrate	Ag

Microscopy (SEM)를 사용하였으며, YBCO박막의 조성을 연구하기 위해 Energy Dispersive Spectroscopy (EDS)를 사용하였다. 또한, 박막표면의 이차상 존재여부와 박막과 Ag 기판사이의 계면에서의 성분분포를 알아보기 위해 mapping 분석을 시도하였다.

### 3. 결과 및 고찰

기판의 초기 시편은 주조공정을 거쳐 제조되었고 냉간압연 공정을 거친 Ag기판의 최종 두께는 120 $\mu$ m이며, XRD 회절분석에 의해 나타난 회절강도 값은 그림1과 같이 나타났다. 일반적으로 YBCO 박막에 사용되어지는 (200), (220) 회절강도보다 상대적으로 (420) 회절강도가 높게 측정되었다.

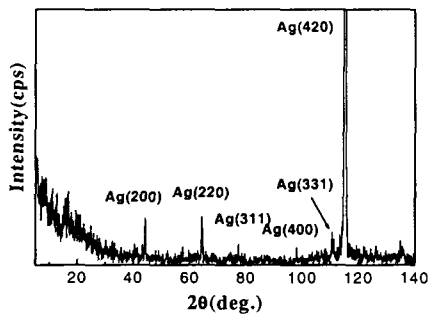


Fig. 1. XRD patterns of as-rolled Ag substrate.

#### 3-1. 증착조건에 따른 결정방향에 대한 영향

그림 2는 800 $^{\circ}$ C 온도에서 15분 동안 증착시키면서 산소분압을 변화시킨 박막의 XRD 회절결과이다. 산소 분압에 관계없이 a축 방향으로 정렬된 YBCO 박막들 얻었다.

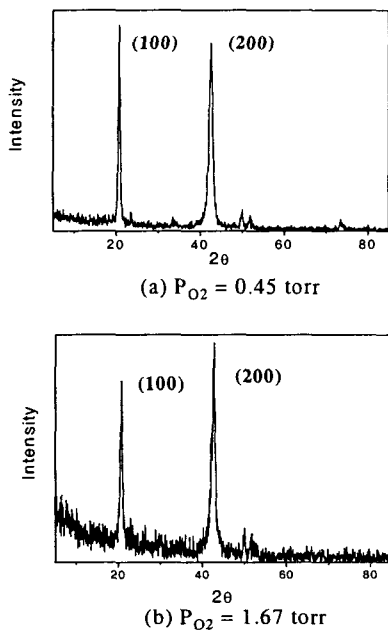


Fig. 2. XRD patterns of YBCO films deposited at various oxygen partial pressures.

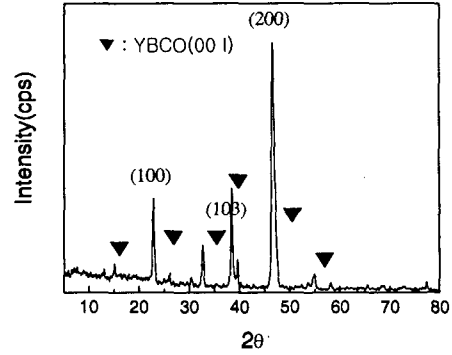


Fig. 3. X-ray diffraction patterns of the post-annealed YBCO film.

T. Ushida 등(5)은 650-700 $^{\circ}$ C의 온도영역에서 MOCVD법을 사용하여 증착시킨 YBCO 박막의 경우 a축 방향으로 성장하였다고 보고하였다. 또한, Yutaka Yoshida 등(6)은 증착온도에 따라 a축과 c축으로 박막의 결정 방향이 변한다고 보고하였으며, Tadataka Morishirta (7)는 a축으로 성장되는 YBCO박막의 증착온도가 c축으로 성장하는 박막의 온도보다 100 $^{\circ}$ C정도 낮다고 보고하였다. 박막이 증착되는 실제온도는 증착환경에 의해 기판의 온도보다 낮아질 수 있다. 따라서 그림 2에서 나타난 결과로부터 박막의 증착온도가 800 $^{\circ}$ C이하일 수도 있다. 증착온도를 확인하기 위해 800 $^{\circ}$ C의 열처리 로에서 후열처리를 시도하였다. 그림 3은 산소분압이 0.45 torr이고 증착시간이 15분인 박막을 열처리한 후의 XRD 회절결과이다. 증착한 시편에서는 나타나지 않았던 (00 $l$ ) 방향의 회절면들이 나타났다. 이는 증착온도가 박막의 결정방향에 크게 영향을 미치고 있다는 것을 알 수 있었다.

#### 3-2. YBCO 박막의 미세조직 및 성분분석

그림 4는 800 $^{\circ}$ C에서 0.45 torr의 산소분압 하에서 증착된 박막의 표면 미세조직 사진이다. 작은 언덕형태의 돌출부분이 박막 표면 전체에 걸쳐 균일하게 분포하였으며 열처리 후에도 사라지지 않았다.

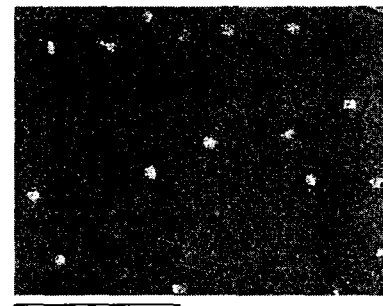


Fig. 4. SEM image of the YBCO film deposited at  $P_{O_2} = 0.45$  torr.

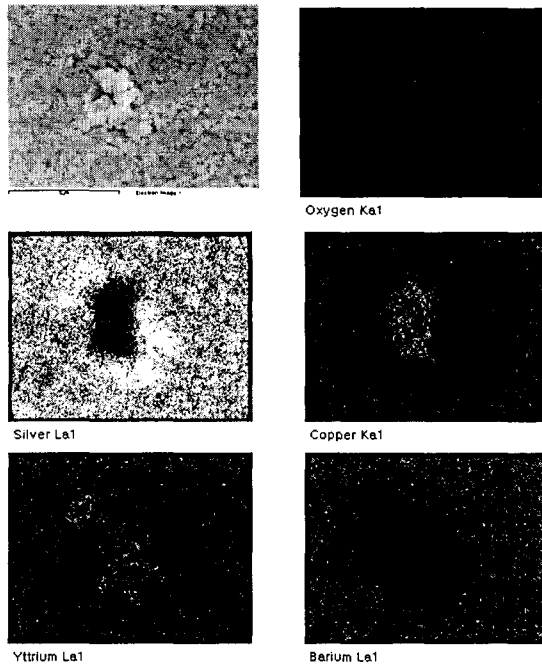


Fig. 5. EDS mapping image of the YBCO film surface with the hillock-shape.

EDS mapping 측정을 통해 돌출부의 조성을 조사해 본 결과 rich-CuO 나 Y-Cu-O 이차상으로 이루어져 있음을 알 수 있었다. 또한, 언덕형태 영역 이외의 표면에서는 Ag 성분이 나타났으며 이는 Ag가 기판으로부터 확산을 통해 표면에까지 이동한 것으로 보여진다(그림 5).

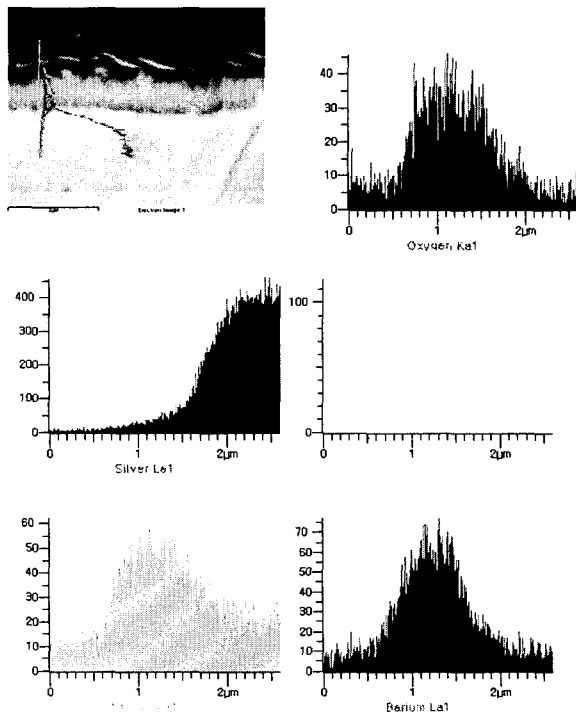


Fig. 6. The cross-section image and line profile for the YBCO film.

그림 6에서 나타난 것처럼, SEM을 통해 박막의 단면을 관찰하여 YBCO박막의 두께가 1 $\mu$ m 정도임을 측정하였다. Line profile을 통해 Ag는 박막 표면까지 분포되어 확산되었음을 알 수 있었으며, Cu의 경우 YBCO박막과 Ag기판 사이의 계면에 밀집되어 있었다. M. J. Gibson 등[8]은 570K 이상의 온도에서는 Ag의 표면에너지를 최소화하려는 구동력에 의해 박막표면으로 급속하게 확산되며 공공이나 입계를 통해 이루어진다고 보고하였다. 또한, K. Onabe 등[9]은 Ag기판을 사용하는 경우, Cu와 Ag의 상호확산에 의해 YBCO 박막의 초전도 성질에 영향을 끼치는 것으로 보고하였다. 따라서 Ag와 Cu의 상호확산을 방지하는 것이 중요한 공정 변수가 될 것으로 사료되어진다.

#### 4. 결 론

MOCVD법을 사용하여 증착시킨 YBCO 박막은 a축 방향성을 나타내었으며, 박막 표면에 균일하게 분포한 돌출 영역은 CuO나 Y-Cu-O과 같은 이차상으로 이루어져 있었다. 또한 증착 동안 Ag는 박막의 표면까지 확산되었고 Cu는 박막과 기판사이의 계면에 분포하였으며 이는 Ag와 Cu의 상호확산에 기인한 것으로 사료되어진다.

본 연구는 21세기 프론티어 연구개발사업인 차세대 초전도응용기술개발 사업단의 연구비 지원에 의해 수행되었습니다.

#### [참 고 문 헌]

- [1] O. Castano et al., "Epitaxial nucleation and growth of buffer layers and YBCO coated conductors deposited metal-organic decomposition", *Physica C*, **272-276**, 806-809, 2002.
- [2] A. Takechi et. al., "YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub> films on oxide buffer layer with perovskite structure prepared by metal-organic deposition method", *Physica C*, **392-396**, 895-899, 2003.
- [3] Y. Yoshida et al., "Growth mechanism of YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-y</sub> thin films on the metallic tapes by MOCVD", *IEEE Transactions on applied superconductivity*, **11**, 3453-3456, 2001.
- [4] Kazunori Onabe et al., "Superconducting property of YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>x</sub> films formed on silver substrates by continuous chemical vapor deposition technique", *IEEE Transactions on applied superconductivity*,

11, 3150-3153, 2001.

[5] T. Ushida et al., "Preparation of selectively controlled a-axis oriented YCO films by laser MOCVD", *Supercond. Sci. Technol.*, **4**, 445-448, 1991.

[6] Yutaka Yoshida et al., "Preparation of a-axis Oriented  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}$  Films by Metalorganic Chemical Vapor Deposition", *Physica C*, **282-287**, 595-596, 1997.

[7] Tadataka Morishita, "Evaluation of a-axis oriented  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  thin films", *Advances in Superconductivity*, **9**, 1017-1022, 1996.

[8] M. J. Gibson and P.J. Dobson, "Diffusion of silver through epitaxial films of copper and nickel on silver {111}: the formation of an equilibrium layer of silver", *J. Phys. F: Metal Phys.*, **5**, 1828-1835, 1975.

[9] Kazunori Onabe, "Preparation of  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$  superconducting tape formed on silver substrate by chemical vapor deposition technique", *Physica C*, **378-381**, 907-910, 2002.