

Layer by Layer 법으로 제작한 박막의 에피택셜 성장

김태곤, 천민우, 양승호, 박용필, 박노봉*, 이희갑**
 동신대학교, 충주대학교*, 대한상공회의소**

Epitaxy Growth of the Thin Films Fabricated by Layer by Layer Method

Tae-Gon Kim, Min-Woo Cheon, Sung-Ho Yang, Yong-Pil Park, No-Bong Park*, Hee-Kab Lee**
 DongShin Univ. ChungJu Univ. KCCI

Abstract : Bi₂Sr₂CuO_x thin films have been fabricated by atomic layer-by-layer deposition using the ion beam sputtering method. During the deposition, 10 and 90 wt%-ozone/oxygen mixture gas of typical pressure of 1~9×10⁻⁵ Torr are supplied with ultraviolet light irradiation for oxidation. XRD and RHEED investigations reveal out that a buffer layer with some different compositions is formed at the early deposition stage of less than 10 units cell and then Bi-2201 oriented along the c-axis is grown.

Key Words : Bi₂Sr₂CuO_x Thin Film, Layer by Layer Deposition, Ozone Gas, Epitaxy Growth

1. 서론

물성 연구 및 전자 디바이스 분야에서 반도체가 차지하는 비중은 매우 크며 정보처리 시스템, 통신 시스템 등에서는 고도로 집적화된 반도체 디바이스의 지원 없이는 소기의 목적을 달성할 수 없다. 그러나 반도체 디바이스의 집적화 기술도 물리적인 한계에 달하고 있어 미세화, 발열 처리 및 고속화 등이 큰 문제로 제기되고 있으며 특히 저 소비 전력화와 고속화 등 양대 문제를 동시에 해결할 수 있는 신소재와 디바이스의 개발이 절실히 요구되어지고 있는 실정이다. 초전도 박막을 이용한 스위칭 소자 디바이스는 이러한 문제에 대응할 수 있는 유망한 소자의 하나로 이의 연구개발에는 첨단 고급 기술의 축적이 요구되므로 인접 학문 및 주변 산업의 진보를 촉진시킬 수 있어 파급 효과가 매우 큰 연구 분야라 할 수 있다. 특히 실용화를 고려할 때 액체 질소 온도 이상에서 응용 가능한 고온 초전도 박막의 개발이 절실히 요구된다.

본 연구에서 고품질의 박막 제작을 목적으로 순차 증착(layer-by-layer deposition)법을 이용한 Bi 초전도 박막의 특성을 분석하였다. 스퍼터 시간의 최적화 문제, 부분 반응에 의한 이상 생성의 문제를 분석하고 Bi 원자의 재탈리 과정을 통한 박막 결정의 품질과 성장속도를 검토하였다.

2. 실험

그림 1에 장치의 개략도를 표시하였다. 테이블 위에 Bi, SrO, Cu 및 Ca 타깃을 흡을 파서 부착하였고, 이 테이블을 컴퓨터 제어에 의하여 회전 및 정지할 수 있도록 하였다. 순차 스퍼터법에 의한 성장에서는 Sr 금속 타깃 대신 SrO 타깃을 사용하였는데 SrO 타깃은 SrCO₃ 분말로부터 제작하였다. 먼저 SrCO₃ 분말을 수소 가스 분위기에서 800~900 °C의 온도로 가소하여 탈탄산 과정을 거친 후

1,300 °C에서 환원하였다. 이 분말을 Ø=20 mm의 pellet 형으로 압축, 성형한 후 고무 튜브에 진공 봉입하여 CIP(cold isotatic press) 장치 내에 넣어 2,000 kg/cm²로 가압하여 소결 밀도를 높였다. 이후 다시 수소 가스 분위기에서 1,300 °C로 소결하여 타깃을 제작하였다. 일반적으로 금속 상태인 경우와 산화물 상태인 경우 스퍼터 속도에 차이가 있다고 알려져 있으나 Sr에 대한 지금까지의 실험 결과들을 조사해본 바 큰 변화는 없는 것으로 판단된다. 1 대의 이온 건으로부터 생성되는 이온 빔으로 각 타깃을 스퍼터 하였으며, 장치의 배기계는 터보 펌프(1000 L/sec)와 로터리 펌프를 조합하여 구성하였고 최고 진공도는 1×10⁻⁸ Torr이었다. 기판 출입 시 성막 장치 내를 청정한 분위기로 유지하기 위하여 예비 챔버를 설치하였으며 이를 통해 외부로부터 교환이 이루어졌다.

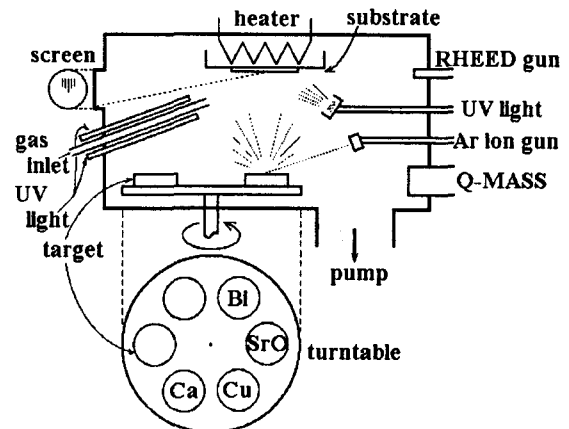


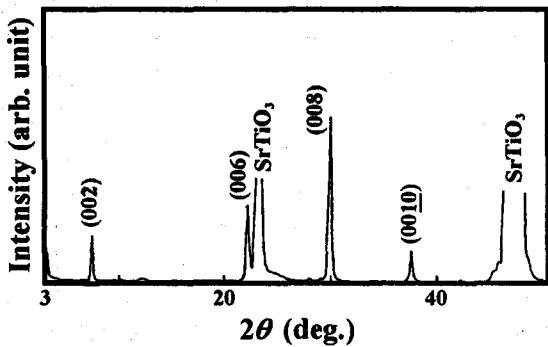
그림 1. IBS 장치의 개략도

표 1. 스퍼터링 조건.

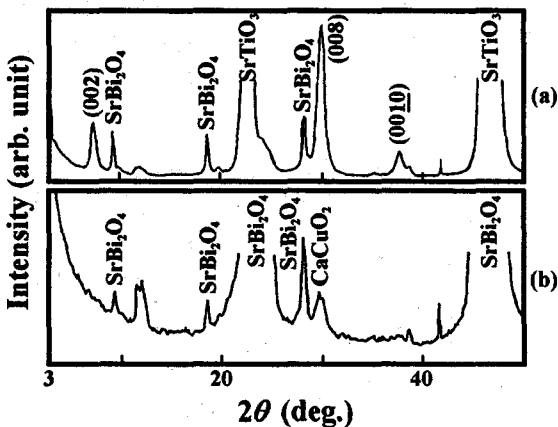
기판	SrTiO ₃ single crystal (100)
기판온도	650~730℃
분위기 가스	O ₃ (90 mol%) : 1~50×10 ⁻⁶ Torr
성막속도	0.00008~0.0027 nm/sec
타겟	Bi, Sr, Ca, Cu metal

3. 결과 및 고찰

순차증착으로 Bi2201상을 제작한 결과를 그림 2 (a)에 나타낸다. 이 때 1 회의 증착 과정은 Bi→Sr→Cu→Sr→Bi이다. XRD 패턴으로부터 c 축으로 배향한 Bi2201 단상 막이 얻어진 것을 알 수 있다. 이처럼 기판 온도, 산화 가스압을 최적화함으로써 순차 증착법에서 Bi2201 단상 막을 비교적 용이하게 생성할 수 있다. 순차 증착으로 Bi2212 단상 막의 제작하였을 경우의 증착 과정은 Bi→Sr→Cu→Ca→Cu→Sr→Bi이다.



(a)



(b)

그림 2. 생성막의 X 선 회절 패턴.

(a)Bi2201 생성막 (b)Bi2212 생성막

그림 2 (b)에 제작한 막의 대표적인 XRD 패턴을 나타냈다. XRD (a)에서는 Bi2212상 대신에 Bi2201상과 유사

스피널 구조를 가진 a 축으로 배향한 SrBi₂O₄가 생성되고 있다. 또한 (b)의 샘플은 Bi의 스퍼터 시간을 길게 한 경우로 CaCuO₂ 등[1-2] 불순물상의 피크밖에 볼 수 없다. 이처럼 Bi2212상의 생성을 목적으로 성막 했음에도 불구하고, 어떠한 기판온도, 오존 가스압 조건에서도 XRD의 피크에서는 Bi2212층의 생성은 확인할 수 없었다. 또한 박막의 조성은 Bi 원소의 경우 화학양론보다 현저하게 부족했다. 기판에 부착한 Bi 원소는 일부는 산화되어 Bi₂O₃의 모양으로 기판 상에 머물지만, 산화되지 않은 원자는 융점이 낮기 때문에 즉시 재증발한다. Bi₂O₃의 융점은 824℃이지만, 보다 낮은 온도에서도 승화성을 갖기 위해 안정하게 존재할 수는 없고, 어떤 체재시간을 지나서 재 증발한다고 생각할 수 있다. 이 때문에 Sr, Cu, Ca 원소를 증착하지 않고 Bi 원소만을 가열된 기판 상에 공급하면 Bi 원소는 부착하지 않는 것을 예비실험을 통해 확인할 수 있었다. 따라서 Bi 원소는 기판 상에서 어떤 형태로든 화합물을 형성하여 안정화되지 않으면 기판 상에 부착하지 않는다. 이 실험에서 Bi 원소의 부착을 저하와 동시에 Bi2201상이 생성되지 않는 결과는 이러한 사실을 뒷받침하고 있다. SrBi₂O₄와 CaCuO₂같은 불순물이 생성되고 있는데 이 상들은 BSCCO 생성 시 조성이 화학양론으로부터 벗어난 경우의 부생성물로 종종 관측되는 것이다. 순차증착에서의 막 형성 도중 단계는 목적으로 하는 상의 결정구조가 완전하게 형성되지 않은 중간 상태이므로 스퍼터 시간이 긴 경우 이상(異狀)의 형성이 용이한 것으로 판단된다.

4. 결론

순차증착에서는 각 원료 원소를 필요한 수만큼 스퍼터 하기 위해서는 많은 시간이 소요되므로 Bi 원소의 재증발과 성막 도중 단계에서 이상 생성의 억제가 곤란했다. 또한, Bi2212의 성막을 의도하였으나 Bi 2201과 SrBi₂O₄가 생성되었고 Bi의 스퍼터 시간을 증가한 경우 역으로 Bi의 함유 원자수는 감소하는 경향을 나타냈다. 이는 Bi 계 박막의 초저속 성막에서 Bi 원자의 재증발이 성막 속도와 비슷한 수준의 속도로 발생하고 있는 것이 원인으로 판단된다.

감사의 글

본 연구는 산업자원부의 지역혁신인력양성사업의 연구 결과로 수행되었음.

참고 문헌

- [1] Y. P. Park and J. U. Lee, "Layer-by-layer deposition of BSCCO thin films using ion beam sputtering method", J. of KIEEME, Vol. 11, No. 4, pp. 334-339, 1998.
- [2] K. Abe and S. Komtsu, "Ferroelectric properties in epitaxially grown Ba_xSr_{1-x}TiO₃ thin films", J. Appl. Phys. Vol. 77, No 12, pp. 6461-6465, 1995.