

Bi₂Sr₂Ca_{n-1}Cu_nO_x(n=0, 1, 2) 초전도 박막의 혼합상에 대한 고용비 해석

양승호*, 이호식*, 박용필*
 동신대학교 병원의료공학과*

Analysis of Stacking-Fault Proportion on the Mixed Phase of the Bi₂Sr₂Ca_{n-1}Cu_nO_x(n=0, 1, 2) Superconducting Thin Films

Seung-Ho Yang*, Ho-Shik Lee* and Yong-Pil Park*

*Dept. of Hospital Biomedical Engineering, Dongshin University

Abstract : Bi₂Sr₂Ca_{n-1}Cu_nO_x(n=0, 1, 2) thin films have been fabricated by co-deposition at an ultra-low growth rate using ion beam sputtering(IBS) method. The growth rates of the films was set in the region from 0.17 to 0.27 nm/min. MgO(100) was used as a substrate. In order to appreciate stable existing region of Bi 2212 phase with temperature and ozone pressure, the substrate temperature was between 655 and 820 °C and the highly condensed ozone gas pressure in vacuum chamber was varied between 2×10⁻⁶~4×10⁻⁵ Torr. Bi 2212 phase appeared in the temperature range of 750 and 795 °C and single phase of Bi 2201 existed in the lower region than 785 °C. Whereas, PO₃ dependance on structural formation was scarcely observed regardless of the pressure variation.

Key Words : Bi₂Sr₂Ca_{n-1}Cu_nO_x(n=0, 1, 2) Thin films, Stacking-fault proportion, Co-deposition.

1. 서 론

산화물 초전도체는 복수의 금속 원소로 구성된 층상 결정구조를 가진 화합물이다. 이 같은 결정구조의 박막을 제작할 때 원료 원소의 공급법으로 동시증착과 순차증착의 두 가지 방법을 생각할 수 있다. 동시증착은 반응시키는 원료 원소를 동시에 기판에 공급하고, 성장 중 박막 표면에서 반응 및 결정화를 진행시킨다. 따라서 조성이 목적한 화합물과 일치하고, 온도 및 가스압 조건을 적절하게 만족시키면 비교적 목적한 화합물을 얻기 쉽다. 그러나 구성 원소 수가 많아지면 기판 표면에서의 확산이나 재구성 과정은 복잡하게 되고, 조성의 균일성이 결여되거나 구조의 결함이 생기기 쉬운 등 결점도 있다[1]-[2].

따라서 본 논문에서는 Bi 2212의 조성으로 산화물 초전도체를 성막하고, Bi 2212박막의 결정상에 대한 고용비를 분석하였다.

2. 실험

Bi₂Sr₂Ca_{n-1}Cu_nO_x(n=0, 1, 2)박막은 이온 빔을 이용한 동시 스퍼터법으로 제작하였으며, Bi계 산화물 초전도체의 구성 원소인 Bi, Sr, Ca 및 Cu를 개별적으로 스퍼터 하기 위하여 4개의 냉음극 새들 필드형 이온 건과 타겟(직경 20 mm, 두께 50 mm)을 조합하여 성막을 하였다. 또한 박막 제작 시 매번 생성막의 결정 구조, 조성을 분석하고 그 결과로부터 타겟 스퍼터량을 결정하였으며 기판온도, 산화 가스 압력 등 성막 환경을 제어하여 초전도상의 생성상도를 구하였다. 기판은 MgO(100)를 사용하였으며 기판 온도는 655~820 °C로 설정하였다. 산화가스는 90mol%

이상의 고농도 오존 가스를 사용하였으며 가스압은 2×10⁻⁶~4×10⁻⁵ Torr로 하였다. 그리고, 성막 속도는 0.17~0.27 nm/min 였다. 생성막의 결정 구조 해석은 2축의 X 선 회절장치를 사용하였다. 표면 관찰 및 조성 분석은 전자 현미경(SEM)과 부속의 에너지 분산형 X 선 분광 장치(EDX)를 이용하였으며 시료 중 일부는 유도 결합 플라즈마 분광 장치(ICP)를 이용하여 정밀하게 조성을 분석하였다.

3. 결과 및 고찰

본 연구에서는 조성이 Bi 2212가 되도록 조절하면서 다양한 환경하에 성막을 하였으며 결정 구조를 조사하였다. 그 결과를 그림 1에 표시하였다. 그림 1중 ●은 Bi 2201의 단일상 또는 Bi 2201과 Bi 2212의 고용체를 나타내며 ○은 Bi 2212의 단일상 또는 Bi 2201과 Bi 2212의 양쪽 구조가 생성한 혼합체 막을 나타낸다.

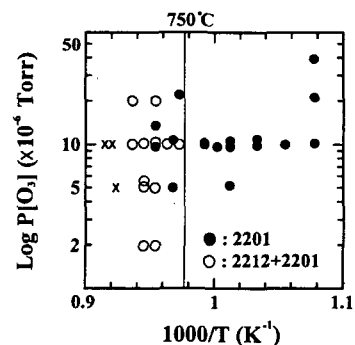


그림 1. 기판 온도와 오존 가스압에 대한 생성 상도.

x로 표시한 막에서는 Bi 원자의 재증발로 인해 조성이 Bi 2212와 혼합되지 않아 초전도 구조에서 벗어나 있다. 즉, 기판 온도 750~795 °C의 범위에서 Bi 2212의 생성이 이루어졌으며 785 °C보다 낮은 측에서는 Bi 2201 단상의 생성을 확인할 수 있다. Bi 2212와 Bi 2201 생성 온도의 경계는 약 750 °C로 이 온도 주위에서 Bi 2201과 Bi 2212의 고용체가 나타난다.

그림 2에는 Bi 2201과 Bi 2212의 단상이 생성되는 중간 부근의 온도에서 제작한 박막의 X 선 회절 패턴을 표시하였다. (002)의 피크는 $2\theta=6.060^\circ$ 에 나타나며 Bi 2201($2\theta=7.246^\circ$)과 Bi 2212($2\theta=5.753^\circ$)의 중간에 위치한다. 이는 2 개의 결정상이 불규칙하게 적층된 고용체 상태의 박막이 생성되었음을 의미한다.

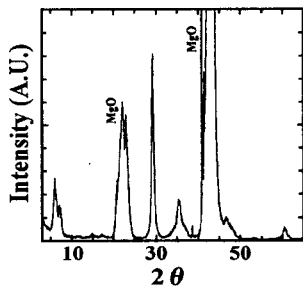


그림 2. Bi 2212+Bi 2201의 X 선 회절 패턴.

고용체 상태의 박막 해석은 다음과 같이 하였다. 즉, 격자 정수가 서로 유사한 2 개의 결정상 A, B에 대해 각각의 격자 정수를 d_A , d_B 라 할 때, A 상과 B 상의 성분비가 $p:(1-p)$ 이고 이들이 불규칙하게 적층되어 있다고 가정하면, X 선 회절 강도 $I(\theta, p)$ 는

$$I(\theta, p) = |F(\theta)|^2 2p(1-p) [1 - \cos\{k(d_B - d_A)\}] / \text{Deno}$$

$$\text{Deno} = 1 + p^2 + (1-p)^2 + 2p(1-p)\cos\{k(d_B - d_A)\}(\cos k d_A) - 2(1-p)\cos(k d_B)$$

$$k = 4\pi \sin\theta / \lambda \quad (1)$$

로 나타낼 수 있다[3]-[4]. 여기서 λ 는 X 선의 파장, θ 는 Bragg 각, k 는 산란 벡터 그리고 $F(\theta)$ 는 구조 인자이다.

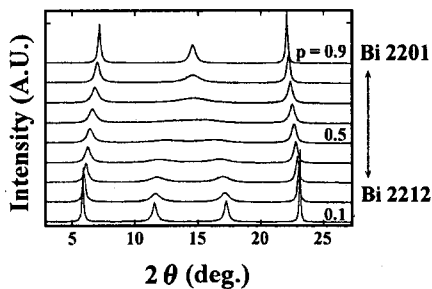


그림 3. 고용비 p에 대한 X 선 회절 피크의 변화.

(1)식을 이용하여 Bi 2201과 Bi 2212의 고용 상태를 해석하기 위해서 $d_A=1.219$ nm(Bi 2201), $d_B=1.535$ nm(Bi

2212)를 적용하였으며 X 선 타깃으로 Cu를 사용하고 있어 $\lambda=0.15405$ nm로 하였다.

Bi 2212 중에 Bi 2201이 고용되어 있다고 가정하여 고용비 p를 0.1부터 0.9까지 변화시켰을 때 X 선 산란 피크의 각도 변화를 그림 3에 표시하였다. 고용비에 대응하여 피크의 강도와 위치가 변하고 있는 것을 알 수 있다. 또한 고용비와 (002)피크 위치와의 관계를 Bi 2201-Bi 2212 계 Bi 2212-Bi 2223 계에 대해 구한 결과를 그림 4에 표시하였다. (002) 장주기 피크의 2θ 각도로부터 고용비를 산출할 수 있으며 그림 2의 경우 Bi 2212 : Bi 2201 = 0.7 : 0.3으로 구해진다.

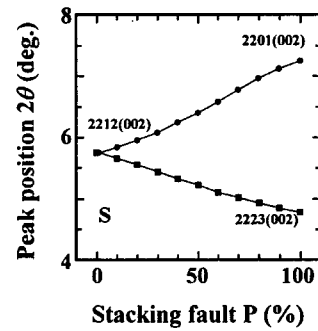


그림 4. 고용비 p에 대한 (002) 피크 위치의 변화.

4. 결 론

Bi 2212의 조성이 되도록 각 원소를 공급하고 기판 온도 및 산화 가스 압력을 변화시켜 성막을 한 결과, 750 °C 이하의 낮은 기판 온도에서는 Bi 2201의 단일상이 생성되었으며, 750 °C 이상이 되면 Bi 2212상이 생성되었다. 이 중간 온도에서 제작된 박막의 X 선 회절 패턴으로부터 (002)의 피크는 $2\theta=6.060^\circ$ 에 나타났으며, Bi 2201($2\theta=7.246^\circ$)과 Bi 2212($2\theta=5.753^\circ$)의 중간에 위치한다. 이는 2 개의 결정상이 불규칙하게 적층된 고용체 상태의 박막이 생성되었음을 의미한다.

Bi 2201/Bi2212 고용체를 생성한 박막에서 (002) 장주기 피크의 2θ 각도로부터 고용비를 산출할 수 있었으며, Bi 2212 : Bi 2201 = 0.7 : 0.3으로 구해졌다.

참고 문헌

- [1] 吉田 貞史, 簿模 (應用物理工學選書3, 枳風館), 1991.
- [2] 井上 泰宣 鎌田 善一郎, 猿崎 勝義, 薄模物性入門 (內田老鶴燻), 1994.
- [3] L. Ranno, D. Martinez-García, J. Perrière and P. Barboux, "Phase Intergrowth in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{n-1}\text{Cu}_n\text{O}_y$ Thin Films", Phys. Rev. B, Vol. 48, No.18, pp. 13945-13948, 1993.
- [4] S. Hendricks and E. Teller, "X-ray Interference in Partially Ordered Layer Lattices", J. Chem. Phys. 10, 147, 1942.