

스크린 프린팅법으로 제조된 $YBa_2Cu_3O_x$ 초전도 후막의 특성

김태윤 · 김승구* · 김대준* · 현상훈 · 정형진*

연세대학교 세라믹공학과

*한국과학기술연구원 세라믹스연구부

(1993년 7월 19일 접수)

Characterization of Screen Printed $YBa_2Cu_3O_x$ Thick Films

Tae-Yun Kim, Seung-Goo Kim*, Dae-Joon Kim*,

Sang-Hoon Hyun and Hyung-Jin Jung*

Dept. of Ceramic Engr., Yonsei University

*Div. of Ceramics, Korea Institute of Science and Technology

(Received July 9, 1993)

요 약

옥살레이트 공침법으로 합성한 $YBa_2Cu_3O_x$ (YBCO) 분말로부터 스크린프린팅법으로 지르코니아 기판위에 YBCO 후막을 제조하여 초전도 특성을 고찰하였다. 도포된 후막의 배향성, T_c 및 J_c 는 열처리 온도가 1030°C 일 때까지는 증가하였으나 그 이상의 온도에서는 초전도성을 상실하였다. 1030°C 에서 7분간 열처리한 후막에서 최대의 J_c 값을 얻을 수 있었으며 이 후막의 T_c 는 87.5K 였다. 열처리조건에 따른 후막의 T_c 의 변화는 사방정비틀림 정도의 그것과 일치하였으며 J_c 의 변화는 일반적으로 입자의 배향성에 비례하나 그보다는 초전도체의 미세구조에 의해 결정되는 것으로 관찰되었다.

ABSTRACT

$YBa_2Cu_3O_x$ (YBCO) thick films were prepared by a screen printing of the powders, obtained by a coprecipitation in oxalic acid, on the Y_2O_3 -stabilized zirconia substrates and their superconducting properties were determined. T_c , J_c and the orientation factor of the thick films increased with increasing temperature up to 1030°C and then the superconducting properties disappeared with further heat treatments. The optimization of J_c was achieved by heating thick films at 1030°C for 7 min. In this case the T_c of the thick film was determined to be 87.5K . It was observed that T_c of thick films depends on the orthorhombicity and J_c is likely governed by a microstructure of YBCO rather than by the orientation factor.

1. 서 론

세라믹 고온 초전도체 후막은 박막과 더불어 빠른 장래에 전자 및 초음파 장치들에 응용할 수 있는 상업적으로 유망한 제품, 즉, 이동전화, 텔레비전, two-way radio, 레이다, 그리고 인공위성 등과 같이 라디오 주파수에 따라 성능이 좌우되는 제품들의 신호 수신을 향상시키는 부품의 제조 수단이 되는 것으로 알려져있다. 특별히 마이크로파 필터나 공진자는 YBCO 후막의 응용이 활발히 연구되고 있는 분야이다¹⁾.

후막제조방법에는 스크린 프린팅법²⁻⁵⁾, 플라즈마 용

사법⁶⁾, sol-gel 침지코팅법⁷⁾ 등이 사용되고 있으며 이중 특히 스크린 프린팅법은 제조공정이 간단하고 경제적이 며 별도의 식각작업이 필요하지 않기 때문에⁸⁾ 가장 일반적으로 사용되고 있다. 그러나 스크린프린팅법으로 제조된 초전도 후막의 가장 큰 단점은 임계전류밀도(J_c)가 낮다는 것으로⁹⁾ 약 $100\text{A}/\text{cm}^2$ 정도의 값이 보고된 바 있다¹⁰⁾. 이는 초전도 입계가 weak-link로써 작용하기 때문으로¹⁰⁾ 입계에 존재하는 이방성 응력, 조성불균일에 의한 제 2상의 석출 및 dislocation등이 주원인인 것으로 보고된 바 있다. 또한 열처리 과정에서 기판과 후막간의 양이온 상호 확산에 의해 양이온의 조성비가 초기상태와

차이가 나고, 초전도후막과 기판간의 열팽창점도차에 의해 냉각시 후막에 균열이 발생함으로써 J_c 를 저하시킨다고 알려져 있다¹¹. 이러한 weak-link 의 영향을 감소시키기 위하여 melt-texture 공정이¹² 후막제조과정에 도입되어 Bailey 등은 J_c 가 750~1000 A/cm²인 후막을 제조한 바 있다¹³. 또한 Ag를 후막과 기판사이에 완충층으로 도포하여 균열을 억제하고 물성을 증진시킨 보고도 발표된 바 있다¹⁴. 그러나 출발분말의 특성 및 열처리 조건이 최종후막의 제반 특성에 미치는 영향에 대해서는 아직 체계적인 연구가 이루어지지 않고 있다.

한편 bulk 세라믹 고온 초전도체의 T_c , J_c 와 같은 초전도체 특성은 출발 분말에 따라 크게 좌우된다. 이와 관련되어 고려되는 분말성질로는 각 성분의 균일 분포에 따른 단일상의 정도¹⁵, 순도^{16,17}, 입도^{18,19} 및 소결성^{18,20,21} 등을 들 수 있다. 일반적으로 고상법과 같은 고전적인 분말준비 과정은 분말의 균일성, 소결성 그리고 재현성이 낮기 때문에 이러한 단점을 보완하고 특히 소결시간의 단축을 위해 습식(wet chemistry) 방법을 통해 초전도체 분말제조가 장려되고 있으며, 특히 옥살레이트 공침법에 의해 합성한 YBCO 분말의 초전도 특성은 고상반응법에 의해 얻어진 분말에 비해 우수한 것으로 알려져 있다¹⁹. 이러한 bulk 초전도체의 T_c 및 J_c 는 사방정 비틀림이 클수록 높은 값을 보이는데 이것은 비초전도상의 존재가 비틀림을 억제하기 때문인 것으로 설명되어 있다¹⁵.

본 실험에서는 옥살레이트 공침법으로부터 합성한 YBCO 분말을 paste 상태로 지르코니아 기판에 도포하여 후막을 준비하였으며 후막제조시의 열처리 조건에 따른 배향성과 사방정 비틀림의 변화가 최종 후막의 초전도 특성에 미치는 영향을 고찰하였다.

2. 실험방법

옥살레이트 공침법에 의한 $YBa_2Cu_3O_x$ 분말의 자세한 합성과정은 다른 문헌에 발표된 바 있다¹⁵. 본 실험에서는 공침분말을 산소분위기하에서 900°C로 8시간동안 하소하여 YBCO 분말을 준비하였다. 이 분말에 45 wt%의 ethyl cellulose를 첨가하고 isopropanol을 매체로 12시간 동안 ball milling하여 건조시킨 후 α -Terpineol을 첨가하여 요변성을 나타내는 paste를 제조하였다. 제조한 paste를 150 mesh screen을 사용하여 8 mol% Y_2O_3 의 첨가로 안정화된 입방정 지르코니아 기판위에 1회 도포한 후, 550°C에서 2시간 동안 유지하여 binder를 burn-out시켰으며 980~1050°C 범위에서 온도 및 시간을 변화시켜 열처리한 후 500°C에서 2시간 유지하고 로냉하

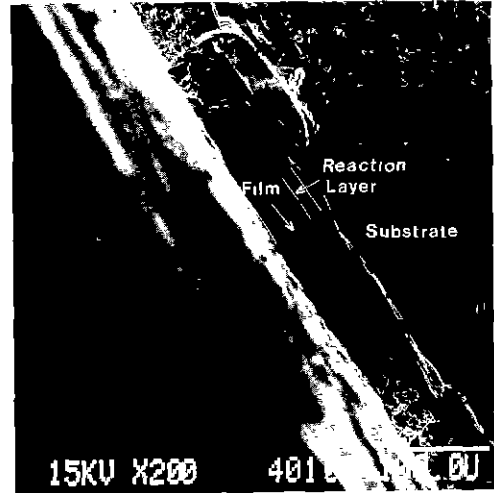


Fig. 1. Cross section of $YBa_2Cu_3O_x$ thick film on 8 mol% Y_2O_3 -stabilized ZrO_2 showing superconductor, reaction layer and substrate.

였다. 열처리 동안의 분위기는 산소로 고정하였다. 열처리후의 후막두께는 약 45~50 μm 였다.

T_c 는 직류4단자법으로 상온에서 80 K까지 측정하였고 전극으로는 Ag paste를 사용하였다. 이때 전류는 current source(Lake Shore Cryotronics, 120 current source, U.S.A.)로 10 mA를 일정하게 흘려주었고 각 온도에서 검출되는 전압치를 multimeter(HP 3458A system, U.S.A.)로 측정하였다. 임계전류(I_c)는 80 K에서 power supply(HP 6028A system, U.S.A.)를 이용하여 0.01 A씩 전류를 증가시키면서 측정하였다. J_c 는 80 K에서 I_c 를 먼저 구한 후 막의 두께와 폭을 곱한 값으로 나누어 구하였고 이때 I_c 는 1 $\mu V/cm$ 를 기준으로 하였다. 막의 두께는 후막의 파단면을 광학현미경으로 관찰하여 측정하였는데, Fig. 1에 나타낸 바와 같이 기판과 초전도층 사이에 존재하는 계면상까지 포함하여 그 두께로 삼았다. 제조된 후막의 존재상, 배향성 및 사방정 비틀림의 정도는 X선 회절기에 의해 얻어진 peak들을 α -2 stripping 한 다음 profile fitting 을 한 후에 결정하였다.

3. 결과 및 고찰

980°C에서 1050°C까지 10°C 간격으로 5분 동안 열처리한 후막의 X선 회절분석 결과를 Fig. 2에 나타내었다. 열처리 온도가 1000°C까지의 후막은 $YBa_2Cu_3O_x$ (123) 초전도체 단일상으로 구성되다가 열처리 온도가 1010°C 이상으로 올라가면서 비초전도체 상인 Y_2BaCuO_6 (211)

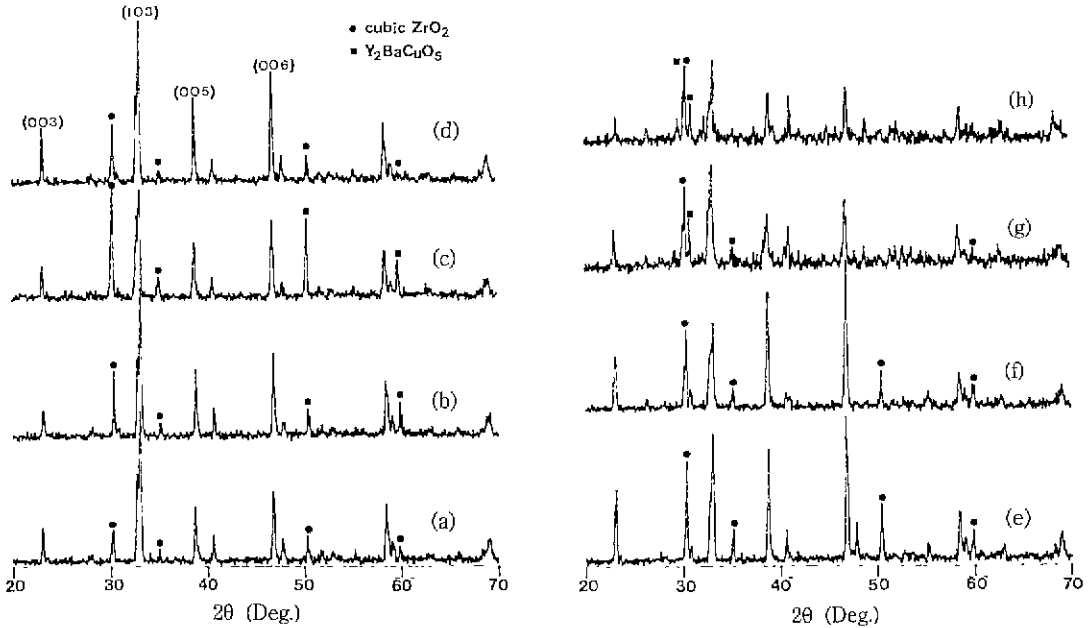


Fig. 2. XRD patterns of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ thick films heat-treated in O_2 for 5 min at: (a) 980°C (b) 990°C (c) 1000°C (d) 1010°C (e) 1020°C (f) 1030°C (g) 1040°C (h) 1050°C.

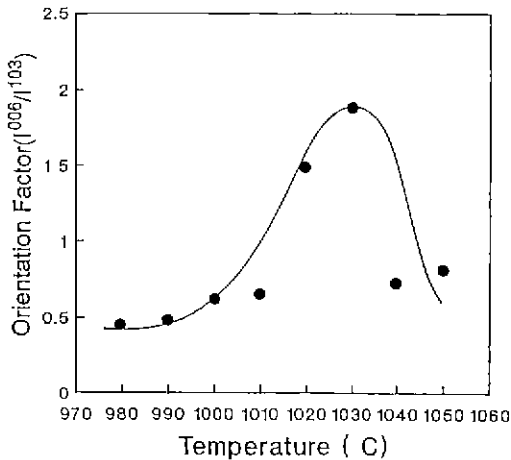


Fig. 3. Effect of processing temperature on the orientation factor of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ thick films.

상이 생성되기 시작하는데 211상의 존재량은 열처리 온도를 상승시킬수록 증가하여 1040°C 이상에서는 비초전도상이 대다수 존재하게 됨을 Fig. 2에서 알 수 있었으며, 막의 배향성은 1030°C 까지 열처리 온도에 따라 계속 증가함을 Fig. 3로부터 알 수 있었다. 여기서 막의 배향성은 (103)면에 대한 (006)면의 X선 회절강도비에

의해 결정하였다²²⁾ 123 후막의 melt texturing 과정에서 나타나는 이러한 후막의 배향성은 후막내 123상의 spherulitic 성장에 기인한 것으로 알려져 있다^{12,21,24)}. 이러한 spherulitic 성장은 확산계수가 낮은 다성분계물질의 액상이 과냉각된 상태에서 결정화될 때 자주 관찰되며, 결정 표면에서의 핵성장 속도가 물질의 확산속도보다 느리기 때문에 일어나는 것으로, 액상의 성질 및 존재량이 결정의 배향성을 지배하는 데 있어서 중요한 인자라고 알려져 있다²⁵⁾. 123상이 액상과 211 조성을 가지는 고상으로 분해되는 온도는 약 1010°C 이므로¹²⁾ 본 실험에서 관찰된 입자의 배향성은 1010°C 이상의 온도에서 형성된 액상이 냉각되는 과정에서 spherulitic 성장을 함으로써 나타난 것으로 생각된다. 즉, 1010°C 이하에서는 거의 일정한 낮은 값을 보이던 배향성이 1020°C 이상에서는 급격한 증가를 나타내는 것은 이 두 온도 사이에서 액상이 형성되기 시작했음을 나타내는 것으로 볼 수 있다. 한편 Hepp 등²⁶⁾도 고온에서 YBCO의 열처리시 c축 방향보다는 a-b방향에서의 물질이동의 경향이 강하여 판상입자의 생성이 보다 용이함을 보고한 바 있다. 1040°C 이상에서는 배향성이 급격히 떨어지는데, 이것은 X선 회절분석에서 나타난 바와 같이 분해상인 211상과 액상의 양이 너무 많이 생성되어 로냉과정에서 액상이

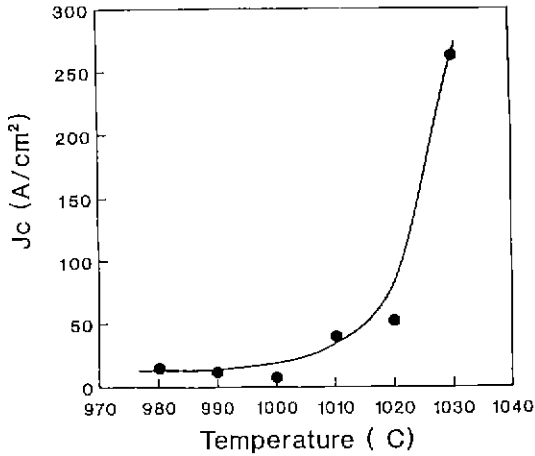


Fig. 4. Effect of processing temperature on J_c of $YBa_2Cu_3O_x$ thick films.

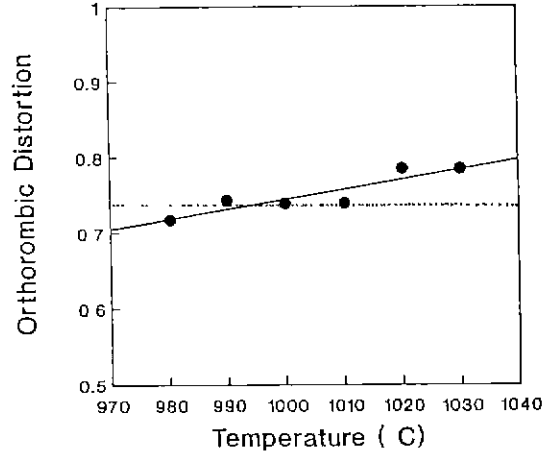


Fig. 5. Influence of heat treatment temperature on the orthorhombic distortion of $YBa_2Cu_3O_x$ thick films.

상대적으로 느린 123상으로의 결정화 반응보다는 211상과 Ba 및 Cu가 주로 존재하는 상으로 각각 결정화되었기 때문인 것으로 보인다.

Fig. 4는 열처리 온도에 따른 후막의 J_c 변화를 나타내었다. J_c 는 980~1020°C 까지 완만히 증가하다가 1030°C에서 급격히 증가하여 263 A/cm²을 나타내었다. 1040°C에서 열처리한 후막은 초전도성을 나타내지 않았는데 이는 위에서 언급한 대로 후막이 123상보다는 211상과 Ba 및 Cu가 주로 존재하는 상으로 구성되어 있기 때문이다. 이러한 온도에 따른 J_c 증가의 경향은 Fig. 3에서의 입자 배향성의 변화와 일치하는데 이는 melt texturing 과정에서는 분말의 입도나 소결성보다는 입자의 배향성이나 미세균열같은 후막의 미세구조가 J_c 를 결정하는 중요한 인자임을 말해준다. J_c 와 입자 배향성과의 비례경향은 123상의 초전도 전류는 c축에 수직인 방향으로 더 용이하게 흐르기 때문으로, 배향성이 증가하면 J_c 도 증가한다는 Jin 등의 보고와도 일치한다^{12,27)}.

Spann 등²⁸⁾에 의해 제시된 사방정비틀림은 비초전도상인 정방정상과 초전도상인 사방정상의 상대적인 발달 정도를 나타내는 지표로 사용되고 있다. Fig. 5에서 점선으로 나타낸 값은 123 분말로부터 얻은 사방정비틀림 정도가 100%인 경우를 나타내고 있다²⁹⁾. 본 실험의 경우 100% 이상의 비틀림 정도가 계산된 경우도 있는데 이것은 melt texturing 과정에서 123상으로부터의 액상 생성의 결과로 123상의 미세조정은 123 표준분말의 그것과 차이를 보이기 때문으로 사료된다. 열처리 온도의 상승에 따라 이러한 미세조성에서의 산소함량은 증가하

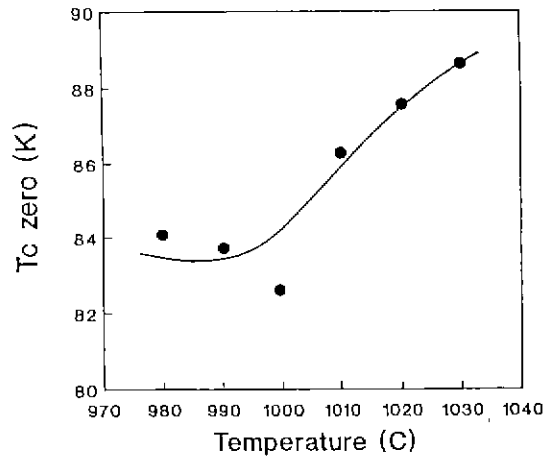


Fig. 6. Influence of heat treatment temperature on the $T_{c,ZERO}$ of $YBa_2Cu_3O_x$ thick films.

여 그 조성이 $YBa_2Cu_3O_7$ 에 접근함으로써 Fig. 6에 나타난 제조된 후막의 $T_{c,ZERO}$ 의 변화와 Fig. 5에서의 사방정비틀림 정도의 경향이 대체로 일치한다고 생각된다. 또한 열처리 온도가 1030°C 까지 증가함에 따라 비초전도상이 증가함에도(Fig. 2) melt texturing에 의해 제조된 후막의 J_c 는 bulk 초전도체에서와 마찬가지로¹⁵⁾ 사방정비틀림 정도의 증가에 따라 거의 지수적으로 비례함을 보인다. 이것은 bulk 초전도체의 J_c 의 최적화가 비초전도체상의 존재량의 최소화나 최적의 소결밀도에 의해 얻어지며 이러한 인자들이 사방정비틀림 정도에 의해 결정되는 것

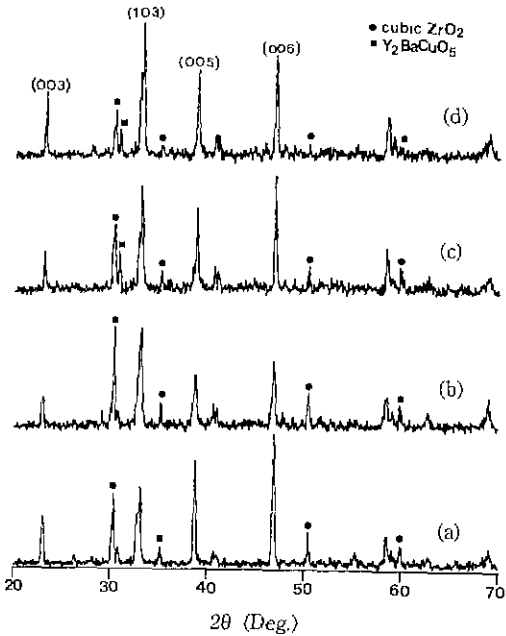


Fig. 7. XRD patterns of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ thick films heat-treated in O_2 at 1030°C for: (a) 5 min (b) 7 min (c) 9 min (d) 11 min.

괴는 달리 후막의 J_c 는 123 입자의 배향성이나(Fig. 6) 후막의 미세균열 정도에 의해 결정된다는 위에 언급한 설명을 뒷받침한다.

열처리 온도를 변화하였을 때 초전도 특성이 가장 우수하게 나타난 1030°C 에서의 열처리 시간을 5, 7, 9, 11 분으로 증가시켜 이에 따른 존재상, 배향성, 그리고 T_c 및 J_c 의 변화를 관찰하였다. T_c 및 사방점뒤돌림의 정도는 각각 약 88 K와 0.79로 열처리 시간의 변화에 의해 거의 변하지 않았다. 그럼에도 불구하고 Fig. 7에 나타난 X선 회절분석 결과는 9분 이상 열처리한 경우는 1040°C 에서 5분간 열처리한 경우처럼 분해상인 211상의 peak를 뚜렷이 관찰할 수 있었다. 열처리 시간이 증가할수록 막의 배향성은 점차 감소하였으며 이를 정량화하여 Fig. 8에 나타내었다. 이는 열처리 시간이 증가함에 따라 입자의 재배열을 보다 무작위하게 하여 배향성에 따른 변형을 작게 함으로써 계의 에너지를 최소화하려는 경향에 기인하는 것으로 보인다. Fig. 8에서 보인 바와 같이 본 실험에서 제조된 후막의 경우 1030°C 에서의 안정한 입자 배향성의 정도는 약 0.8 정도이며 이 값은 열처리 시간이 증가하여도 변하지 않음을 알 수 있다. Fig. 9에 열처리 시간에 따른 J_c 의 변화를 나타내었다. J_c 는 80 K의 온도에서 측정하였을 때 7분 열처리한 경우 최대

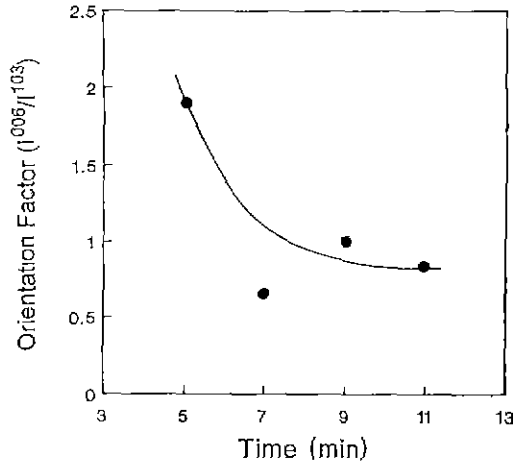


Fig. 8. Heat treatment time dependence of the orientation factor of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ thick films.

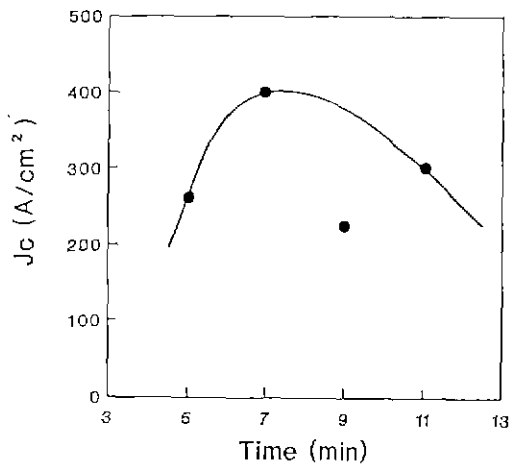


Fig. 9. Effect of heat treatment time at 1030°C on J_c of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ thick films.

$400 \text{ A}/\text{cm}^2$ 를 나타내었으며 그 이상 열처리한 경우는 감소하였다. 이는 열처리 온도에 따른 J_c 의 변화와 마찬가지로 열처리 시간이 증가함에 따라 선택적인 방향으로의 성장에 의해 입자간의 접촉성이 증진되며^(2,20) 이에 따른 weak-link의 감소 때문에 J_c 가 증가하였으며, 최적 시간 이상으로 열처리하는 경우에는 초전도상으로 제결정화될 수 있는 이상의 액상이 형성되어 이들로 인해 제2상이 과다하게 생성됨으로 인해 초전도 전류의 흐름이 방해되기 때문인 것으로 생각된다. Fig. 4에서와 마찬가지로 여기에서 얻어진 J_c 는 Bailey 등이 보고한 $750\sim 1000 \text{ A}/\text{cm}^2$ 나¹¹⁾ Abell 등이 보고한 $500 \text{ A}/\text{cm}^2$ 보다

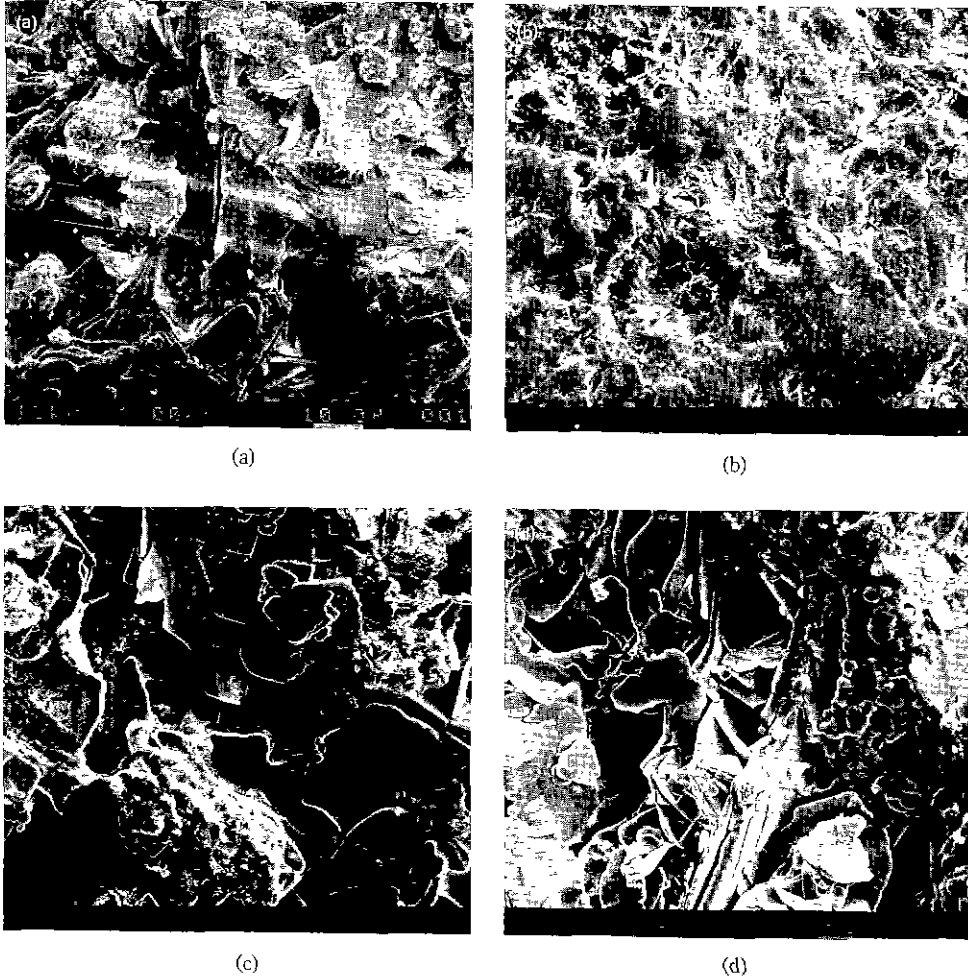


Fig. 10. SEM micrographs of of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ thick films heat-treated in O_2 at 1030°C for: (a) 5 min (b) 7 min (c) 9 min (d) 11 min.

는²³⁾ 낮은 결과를 나타냈는데, 본 실험에서는 80 K에서 I_c 를 측정된 후 막의 두께 및 폭으로 나누어 J_c 를 계산 하였으므로 I_c 를 액체질소의 끓는점 온도인 77 K에서 측정했을 경우에는 보다 높은 값을 얻을 수 있을 것으로 보여지며 더욱이 Fig 1에서의 기관과의 반응층을 제외한 초전도층만을 표면적으로 고려할 경우에는 더욱 높은 J_c 값으로 계산될 것이 예상된다

Fig 3과 4에서 보인 입자의 배향성과 J_c 사이의 비례 관계가 열처리 시간의 변화에서는 나타나지 않는데 이는 전자현미경 관찰에서 보여지는 미세구조의 영향으로 보인다. Fig. 10은 1030°C 에서 열처리한 시간에 따른 초전도 후막의 미세구조를 전자현미경으로 관찰한 결과를 나타 낸 것이다. 여기에서 보면 7분간 열처리한 후막의 미세

구조가 가장 균일하며 판상 입자들 사이의 결합이 치밀함을 알 수 있는데 이것이 입자의 배향성이 낮은 후막이 가장 높은 J_c 값을 나타내는 이유로 생각된다. 이러한 입자간의 접촉성은 생성된 액상의 양과 판상 입자의 성장정도에 따라 영향을 받는 것으로 보이는데, 5분간 열처리한 경우는 액상이 충분히 형성되지 않아서 입자간의 접촉성이 떨어지는 반면, 9분 이상 열처리한 후막의 경우는 입자가 과도하게 성장함에 따른 이방성 열팽창에 의한 stress가 증가함으로 냉각도중 입자간에 미세균열이 발생하여 입자간의 접촉성을 떨어뜨리기 때문으로 사료된다. 이상의 결과들을 살펴볼 때 열처리 시간이 다른 후막에서 관찰되는 구조의 불균일성과 판상 입자들 사이의 미세균열들이 초전도 전류의 weak-link로

작용하여 입자의 배향성에 의해 향상될 수 있는 J_c 를 상쇄시킬 뿐만 아니라 오히려 떨어뜨리며 최종 후막의 화학조성은 열처리 시간보다는 열처리 온도에 더욱 영향을 받는 것으로 보인다. 결론적으로 J_c 를 향상시키기 위해서는 열처리 조건을 변화시켜 액상형성온도 부근에서 적절한 양 만큼의 액상을 형성하고 이들 액상이 비초전도상인 211상과 반응하여 완전히 123상으로 되게 함으로써 입자의 배향성을 향상시키는 한편 열처리 및 냉각조건을 조절하여 후막내 미세균열의 발생을 억제시켜야 할 것으로 생각된다.

4. 결 론

8Y-ZrO₂ 기판위에 스크린프린팅법으로 도포된 $YBa_2Cu_3O_x$ 후막은 1030°C 까지 막의 배향성, T_{CZERO} 및 J_c 가 증가하였고 그 이상의 온도에서는 초전도성을 상실하였다. 1030°C 에서 7분 열처리한 후막의 경우 초전도 특성이 최적화되었는데 이때 T_{CZERO} 와 J_c 는 각각 87.5 K와 400 /cm²였다. 후막의 T_{CZERO} 는 열처리 조건에 관계없이 사방정비틀림정도의 변화와 그 경향이 일치하였으며 후막의 J_c 는 초기 분말의 특성보다는 일반적으로 입자의 배향성에 비례하는 경향이 있으나 그보다는 후막의 미세구조, 즉 초전도체 입자 사이의 결합 및 균열의 존재 정도에 의해 결정되는 것으로 관찰되었다.

감사의 글

본 연구는 과학기술처 첨단과제 연구지원으로 이루어졌습니다.

REFERENCES

1. G.E. Peterson, R.P. Stawicki, and N. McN. Alford, "Helical Resonators Containing High TC Ceramic Superconductors," *Appl. Phys. Lett.*, **55**, 1798-1800 (1989).
2. N.D. Bansal, R.N. Simons, and D.E. Farrel, "High TC Screen Printed $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ Films: Effect of the Substrate Materials," *Appl. Phys. Lett.*, **53**(7), 603-605 (1988).
3. U.V. Varadaraju, G.V.S. Rao, K.D. Chandrasektracon, and A. Baradarajan, "Superconductivity Behaviour in Screen-Printed $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ Films," *Thin Solid Films*, **164**, 119-122 (1988).
4. M. Sacchi, F. Sirotti, B. Morten, and M. Prudenziati, "High Tc Superconductivity in Y-Ba-Cu-O Screen-Printed Films," *Appl. Phys. Lett.*, **53**(12), 1110-1112 (1988).
5. J. Tabuchi and K. Utsumi, "Preparation of Superconducting Y-Ba-Cu-O Thick Films with Preferred C-axis Orientation by a Screen Printing Method," *Appl. Phys. Lett.*, **53**(7), 606-608 (1988).
6. N. Mori, Y. Itoi, and M. Okuyama, "Superconducting Y-Ba-Cu-O Thick Films on Silicon and Alumina Substrates Prepared by the Plasma Spraying Method," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **28**(2), L 239-L 240 (1989).
7. Y. Masuda, R. Ogawa, Y. Kawate, K. Matsubara, T. Tateish, and S. Sakka, "Preparation of $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ Superconducting Films Through the Sol-Gel Method Using Metal Alkoxides as Starting Materials," *J. Mater. Res.*, **7**(4), 819-826 (1992).
8. F. Welhofer, J.S. Abell, D. Holland, and E.A. Logan, "Interface Studies on Screen Printed YBCO Superconducting Ceramics," *Physica C*, **153-155**, 399-400 (1988).
9. D. Bhattacharaya, C.K. Mati, P. Pramanik, T.K. Dey, S.K. Ghatkai, and K.L. Chopra, "Structural and Electrical Properties of Screen Printed Thick Films of $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ Superconductors," *Thin Solid Films*, **164**, 115-118 (1988).
10. S. Nakahara, G.J. Fisanck, M.F. Yan, R.B. Van Dover, T. Boone, and R. Moore, "On the Defect Structure of Grain Boundaries in $Ba_2YCu_3O_{7-x}$," *J. Cryst. Growth*, **85**, 639-651 (1987).
11. J. M. Aponte and M. Octavio, "Preparation and Transport Properties of High-T_c Superconducting Thick Films," *J. Appl. Phys.*, **66**(3), 1430-1432 (1989).
12. S. Jin, T.H. Tiefel, R.C. Sherwood, R.B. Van Dover, M.E. Davis, G.W. Kammlott, and R.A. Fastnacht, "Melt-Textured Growth of Polycrystalline $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ with High Transport J_c at 77 K," *Phys. Review B*, **37**(13), 7850-7853 (1988).
13. A. Bailey, G. Alvarez, G.J. Russel, and K.N.R. Taylor, "High Current Capacity Textured Thick Films of YBCO on YSZ Obtained by Melt Processing," *Cryogenics*, **30**, 599-602 (1990).
14. M. Senda and O. Ishii, "Critical Current Density of Screen Printed $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ Sintered Thick Film," *J. Appl. Phys.*, **69**(9), 6586-6589 (1991).
15. D.J. Kim and D.M. Kroeger, "Optimization of Critical Current Density of Bulk YBCO Superconductor Prepared by Coprecipitation in Oxalic Acid," *J. Mater. Sci.*, **28**(17), 4744-4748 (1993).
16. M. Reissner, W. Steiner, R. Stroh, S. Horhager, W. Schmid, and W. Wruss, "Influence of Sintering Temperature on the Superconducting Properties of $YBa_2Cu_3O_{7-x}$," *Physica C*, **167**, 495-502 (1990).
17. I. Bloom, B.S. Tant, M.C. Hash, D. Shi, M.A. Patel, K.C. Goretti, N. Chen, and D.W. Capone, II, *J. Mat. Res.*, **4**, 1093-1098 (1989).

18. K. No, J.D. Verhoeven, R.W. McCallum, and E.D. Gibson, "Grain Size Control in Processed $Y_1Ba_2Cu_3O_x$," *IEEE Trans. Magn.*, **25**(2), 2184-2187 (1991)
19. M. Kuwabara and H. Shimooka, "Grain Size Dependence of the Critical Current Density in $YBa_2Cu_3O_x$ Superconductors," *Appl. Phys. Lett.*, **55**(26), 2781-2783 (1989).
20. N. McN. Alford, W.J. Clegg, M.A. Harmer, J.D. Birchall, K. Kendall, and D.H. Jones, "The Effect of Density on Critical Current and Oxygen Stoichiometry of $YBa_2Cu_3O_x$ Superconductors," *Nature*, **332**(3), 58-59 (1988).
21. G. Paternó, C. Alvani, S. Casadio, U. Gambardella, and L. Maritato, "DC Critical Currents in Superconducting Ceramic Samples of $Y_1Ba_2Cu_3O_x$," *IEEE Trans. Magn.*, **25**(2), 2276-2278 (1989).
22. A. Bailey, G. Alvarez, T. Puzzer, K. Sealy, G.J. Russell and K.N. R. Taylor, "High Critical Current Density Thick Films of (Y-Ba-Cu-O)Ag Obtained by Melt Processing," *Mater. Sci. Eng.*, **B8**, 161-165 (1991).
23. J.S. Abell, T.C. Shields, F. Wellhofer, K.N.R. Taylor, and D. Holland, "High Critical Currents in Thick Films of YBCO Showing Spherulitic Growth Habits." *Physica C*, **162-164**, 1265-1266 (1989).
24. J.S. Abell, F. Wellhofer, N.K.R. Taylor, T.C. Shields, D. Holland, L. Blunt, and M.E. Yakinci, 1989 Proc. Int. Conf. Modern Aspects of Superconductivity, ed A Niki-Lart(Paris: I. I. T. T.-International).
25. H.D. Keith and F.J. Padden, Jr., "A Phenomenological Theory of Spherulitic Crystallization." *J. Appl. Phys.*, **34**(8), 2409-2421 (1963).
26. A.F. Hepp, J.R. Gaier, G.A. Landis, and S.G. Bailey, "Crystallite Alignment of Polycrystalline $Ba_2YCu_3O_{7-x}$," Ceramic Superconductor II, edited by M.F. Yan, The American Ceramic Society, Westerville, Ohio, U.S.A (1988).
27. S. Jin, T.H. Tiefel, R.C. Sherwood, M.E. Davis, R.B. van Dover, G.W. Kammlott, R.A. Fastnacht, and H.D. Keith, "High Critical Currents in Y-Ba-Cu-O Superconductors," *Appl. Phys. Lett.*, **53**(24), 2074-2076 (1988).
28. J.R. Spann, I.K. Lloyd, M. Kahn, and M.T. Chase, "Preparation of Orthorhombic $Ba_2YCu_3O_7$ Powder by Single-Step Calcining," *J. Am. Ceram. Soc.*, **73**(2), 435-438 (1990).
29. W. Wong-Ng, R.S. Roth, L.J. Swartzendruber, L.L. Bennett, C.K. Chiang, F. Beech, and C.R. Hubbard, "X-Ray Powder Characterization of $Ba_2YCu_3O_{7-x}$," *Adv. Ceram. Matl.*, **2**(3B), 565-567 (1987).