

연속 reel-to-reel 공정을 이용한 IBAD-MgO template 제조

Fabrication of IBAD-MgO template by continuous reel-to-reel process

고경필¹, 하홍수², 김호겸³, 유권국³, 고락길², 문승현³, 오상수², 유상임^{4,*}

K. P. Ko¹, H. S. Ha², H. K. Kim³, K. K. Yu³,
R. K. Ko², S. H. Moon³, S. S. Oh², and S. I. Yoo^{4,*}

Abstract: Highly textured MgO template by ion-beam-assisted deposition (IBAD) was successfully fabricated using a continuous reel-to-reel (R2R) mode. To enlarge the deposition area, the previous IBAD system was modified into the system with 14-pass and five heating zone. Every processing step was carried out using this multi-turn IBAD system. The overall process consists of R2R electropolishing of a hastelloy C276 tape, deposition of Al₂O₃ diffusion barrier, Y₂O₃ seed layer, IBAD-MgO and homoepi-MgO layer. The IBAD-MgO templates were fabricated using the IBAD system with 216 cm-length deposition zone and 32 cm diameter ion source. The texture of MgO films developed during the IBAD process was monitored by in-situ reflection high energy electron diffraction (RHEED) to optimize the IBAD process. Recently, 100 m long IBAD-MgO tape with in-plane texture of $\Delta\phi < 10^\circ$ was successfully fabricated using the modified IBAD system. In this report, the detailed deposition condition of getting a long length IBAD-MgO template with a good epitaxy is described.

Key Words: IBAD, reel-to-reel, multi-turn, electropolishing, ion source, RHEED.

중간 매개체로서 다양한 완충 역할을 하는 물질을 필요로 한다. 1990년도 초반에는, Iijima 등[3]이 기계적 연마가 된 니켈 합금 테이프(Hastelloy C276) 위에 IBAD 공정으로 증착한 Ytria stabilized zirconia (YSZ) 박막을 완충층으로 사용한 후, Pulsed Laser Deposition(PLD)으로 이축 배향성이 우수한 YBCO 초전도층을 만드는 데 성공하였다[3]. 이후, c-축 배향성을 높이기 위해서 기존에 사용되었던, 공정 시간이 길고 일정 두께 이상이 요구되는 YSZ 박막의 단점[4-5]을 극복하기 위하여, Wang 등은 Si₃N₄ 기판 위에 IBAD 공정으로 우수한 결정 배향성을 가지는 마그네슘 산화물(MgO) 박막을 증착하는 데 성공하였다[6].

이에 따라 본 연구에서는 다결정 금속 테이프 위에 reel-to-reel에 의해 테이프를 이동시키며 IBAD 공정으로 MgO 박막을 증착하였으며, IBAD-MgO 증착 전 단계로서 니켈 합금 테이프의 표면 거칠기를 수 nm 이하로 향상시키기 위하여 연속 전해연마를 실시하였다. 또한 니켈이 고온에서 확산되는 것을 방지하기 위하여 Al₂O₃를 전해연마된 테이프 위에 증착하였고, 그 위에 IBAD-MgO와의 lattice match를 높이기 위해서 Y₂O₃ 박막을 증착하였다[7]. 본 논문에서는 새로이 개조된 multi-turn IBAD system과 이러한 업그레이드된 장비를 이용하여 여러 IBAD 공정 변수하에서 IBAD-MgO 박막 위에 Homoepi-MgO 층까지 증착된 texture template의 결정 배향성에 대하여 간략히 기술하고자 한다.

1. 서 론

2세대 고온 초전도 선재인 YBCO 박막 선재(coated conductor)가 주목받기 시작한 이후로 다양한 증착방법에 의하여 높은 임계 전류 특성을 지닌 초전도 장선재 개발이 국내외적으로 이루어져 오고 있다. 이러한 다양한 박막 증착 기술 중에서 특히 Ion Beam Assisted Deposition (IBAD)[1-2]은 다결정 기판 위에서도 결정 배향성이 우수한 박막을 증착할 수 있다는 장점을 지니고 있다. 이러한 장점을 이용한 IBAD template는 장선의 다결정 금속 테이프 위에 증착되어지는 YBCO 박막층의 결정 배향성을 좋게 하기 위하여,

2. 실험 방법

이번 실험에 이용된 IBAD 장비는 기존에 보유하고 있던 챔버 내부의 주요 파트들인 전자빔 gun, reel-to-reel, 히터 등을 모두 전면 교체하였다. 교체시 우선적으로 고려되었던 특성은 기존 single-turn IBAD 장비에서의 결과물에 비해 더욱 장선의 테이프를 보다 짧은 시간 안에 균일한 특성을 보이는 테이프를 제작하는데 착안점을 두었다. Fig. 1은 이처럼 효율성을 높여 업그레이드된 IBAD 장비에 대한 전면부의 모습이다.

챔버 내부를 보면 우선 기존에는 테이프가 증착 영역 내에서 single turn으로 이동을 하였지만 새롭게 제작된 reel-to-reel에서는 테이프가 14-turn으로 감아지도록 하여 multi-turn system을 구축하였다. 이에 따라 증착 영역 내에서 14-turn으로 감긴 테이프가 동시에 증착이 이루어지며 이동을 하게 된다. 또한 증착 영역이 넓어짐에 따라 테이프의 온도 증가 역할을 담당하는 히터 역시 기존에 2개를 썼던 할로겐 램프 수를 총 15개로 증가시켜 히터 영역이 크게 pre & post heating zone 그리고 그 사이에 추가열부로 구성이 되었다.

¹학생회원 : 서울대학교 재료공학부

²정 회 원 : 한국전기연구원 초전도재료연구그룹

³정 회 원 : 주식회사 서남

⁴정 회 원 : 서울대학교 재료공학부

*교신저자 : siyoo@snu.ac.kr

원고접수 : 2007년 1월 8일

심사완료 : 2007년 3월 6일

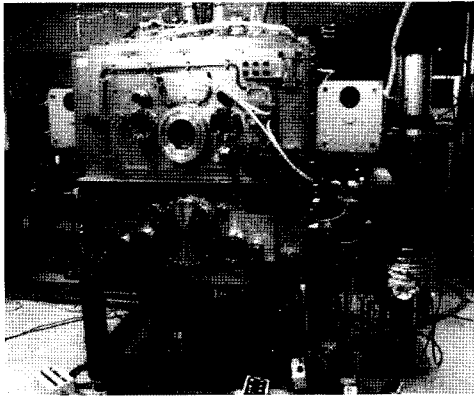


Fig. 1. The newly developed IBAD system with reel-to-reel.

그리고, 전자빔 source 역시 100 미터급 이상의 장선재위에 증착 물질이 안정적으로 공급되기 위하여 전자빔이 sweeper에 의해 넓은 영역을 조사하도록 직경 12 cm의 흑연 도가니를 장착시킨 전자 gun으로 교체가 이루어졌다. 다음으로 기판위에 물질의 증착율을 측정하는 Quartz Crystal Monitor (QCM) 역시 각각의 센서들을 증착 영역 내에 적절히 배치하였다. 다음에 도시된 Fig. 2를 보면 증착 영역에 대한 모습과 더불어 각각의 QCM 센서들의 위치를 나타내고 있다.

우선 증착 영역(Deposition zone) 사진을 보면 14-turn의 테이프이 모두 증착 가능한 영역 내에 위치하고 있으며 증착되는 물질에 노출된 테이프의 총 길이는 216 cm이다. 그리고, 총 6개의 QCM이 설치되어 있으며 Ion source에서 나오는 이온빔의 영향을 받지 않는 QCM 1,2번은 증착시키고자 하는 물질의 증착율을 조절하기 위한 센서이며 나머지는 각 지점에서 전자빔에 의한 물질 증착과 더불어 Ion beam에 의해 에칭이 되는 실제 증착 두께를 표시해 주는 역할을 한다. 본 실험에 들어가기 앞서 총 17개의 실리콘웨이퍼를 위 증착 영역 내에 골고루 분산시켜 각 물질별 증착되는 비율 그리고 ion source에 의한 에칭 비율을 각각의 Si 부착 지점에 따라 물질의 대칭성 판별을 하였고 이에 따라 증착부에 증착되는 물질의 예상 증착율을 유추하여 2번 QCM에 의해 각 물질의 증착율을 제어하였다.

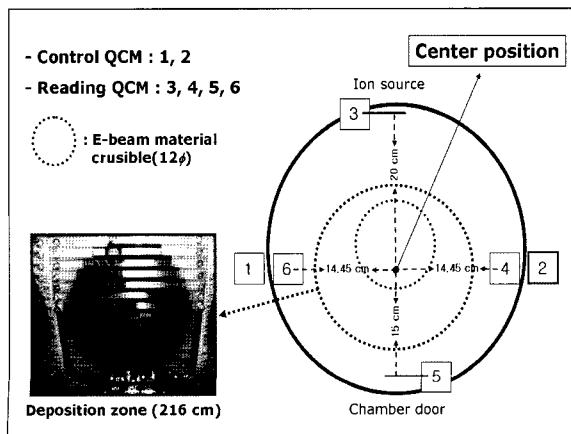


Fig. 2. The figure of 216 cm-length deposition zone and QCM sensor position.

먼저, 실험에 앞서서 기판으로 사용된 Hastelloy C276은 Cr, Mo이 약 15% 정도 첨가된 Ni-based 합금으로서 두께 0.1mm, 폭 10mm를 갖춘 장선의 테이프를 준비하였다. 이러한 Hastelloy는 표면 거칠기의 향상을 위하여 연속 reel-to-reel (R2R)방식에 의해 30 A의 전류가 흐르는 전해액 내에서 6cm/min의 이동속도로 전기적 접촉에 의해 전해연마를 진행하였다. 이렇게 전해연마된 금속 테이프는 Atomic Force Microscopy (AFM) 분석 결과 $5 \times 5 \mu\text{m}^2$ 면적에서 약 4 nm의 표면 평활도를 보였으며, IBAD 박막을 만들기 위해 요구되는 평탄하고 부드러운 표면 특성을 나타내었다. 이후 20 m 길이의 테이프를 IBAD 장비 내에 로딩하여 테이프를 이동시키며 기판의 수직방향과 이온빔이 서로 45°의 각도를 이루도록 설치된 ion source (Kaufman-type, 직경 32φ)에 의해 에칭을 한 결과 약 2 nm의 표면 평활도를 갖는 금속 기판을 만들었다. 이렇게 ion-milling에 의해 매끄러운 표면을 가지는 금속 테이프는 기판으로부터 니켈이 고온에서 확산되는 것을 방지하기 위하여 확산 방지층 역할을 하도록 Al_2O_3 를 금속 테이프 위에 비정질로 50 nm 이하의 두께로 증착을 하였다. 여기에서 전자빔과 동시에 사용된 ion source는 Al_2O_3 층의 밀도를 향상시키는 목적으로 이용되어졌다. 다음으로 IBAD-MgO 층의 in-plane texture를 향상시키기 위해 seed layer로서 매우 중요한 역할을 하는 Y_2O_3 를 ion source를 작동시키지 않은 상태에서 전자빔에 의해서만 약 4 nm 이하의 두께로 증착을 하였다. 이때, Al_2O_3 와 Y_2O_3 는 모두 실온에서 증착이 이루어졌으며 증착 속도는 center에서 각각 4 Å/s 와 1Å/s이다.

이러한 $\text{Y}_2\text{O}_3/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Hastelloy}$ 구조의 테이프는 다양한 IBAD 공정 변수하에서 MgO 박막을 증착하기 위하여 각각 20 cm의 샘플로 컷팅 후 실온에서 약 216 cm의 증착영역을 지나면서 증착이 이루어졌다. 이때 사용된 ion source의 RF power는 400 W, Ar^+ 이온빔에너지는 800 eV로 고정하였고, MgO 결정성을 육안으로 확인하기 위하여 in-situ로 Reflected High Energy Electron Diffraction (RHEED)에 의해 MgO의 전자빔 회절 spot을 관찰하였다. 이러한 IBAD-MgO 테이프는 다시 ion source를 끈 상태로 곧바로 추가열부를 450°C로 기판 온도를 올린 후에 전자빔에 의해 Homoepi-MgO 박막을 증착하였다. 이러한 Homoepi-MgO 층은 수 nm 두께의 IBAD-MgO 층을 보호하는 역할과 더불어 XRD와 같은 ex-situ 분석이 용이하도록 해주는 장점을 지니고 있다[7].

마지막으로, Homoepi-MgO 층까지 증착된 금속 테이프를 KrF excimer laser ($\lambda = 248 \text{ nm}$)를 사용하여 완충층인 LaMnO_3 박막을 증착하였다. 그리고, 여러 공정 조건 하에서 제작된 IBAD-MgO 기판들에 대한 상과 결정 배향성은 x선-회절(XRD) 측정에 의해 분석이 이루어졌다.

3. 결과 및 고찰

연속 R2R에 의해 이동하는 $\text{Y}_2\text{O}_3/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Hastelloy}$ 구조의 테이프이 216 cm 길이의 증착 영역 내에서 IBAD-MgO가 증착되는 시간을 30 초로 고정하고, QCM 컨트롤에 의해서 IBAD-MgO의 에칭율(etching percent)을 변화시켰다. 여기서 에칭율은 앞에서 말한 증착 영역 중심부(center position)에서의 퍼센트를 말하며 정확한 계산식은 다음과 같다.

$$\text{etching percent}(\%) = \frac{\text{thickness etched by ion-beam}}{\text{thickness deposited by e-beam}} \times 100$$

이후, 약 50 nm 두께의 Homoepi-MgO까지 증착된 테이프들에 대해 PLD에 의해 LMO를 완충층으로 증착한 결과들을 Fig. 3에 나타내었다. 아래 그래프를 보면, $\Delta\phi$ 는 에칭율에 큰 영향 없이 대략 3° 안팎으로 일정한 반면, 77%의 에칭율 미만에서는 $\Delta\phi$ 가 10° 이상으로 결정 배향성이 떨어짐을 볼 수 있다. 이러한 특성은 IBAD 장비 개조 전 실험에서도 파악되었던 특징 중 하나로서 결정 배향성을 지닌 MgO 결정들이 기판의 최상층 표면의 모든 면에 걸쳐서 입혀지기 시작하고, 이 후 그 이상 두께가 계속 올라갈 경우 IBAD-MgO의 결정성이 오히려 나빠진다는 점이다. 즉, 에칭율이 70% 근방으로 너무 낮아지면 IBAD-MgO 두께가 그만큼 많이 올라가 기판의 결정 배향성을 감소시키는 요인으로 작용한다는 점이다. 한편, Fig. 3에 나온 실험을 진행하는 도중 약 30 미터 길이에 걸쳐 IBAD-MgO 테이프를 제작하였는데 이때의 공정 조건은 에칭율 83%에서 216 cm 길이의 증착 영역에서 30 초간 이동을 하였으며 이렇게 제작된 시편의 $\Delta\phi$ 는 약 9° 의 결과를 보였다.

Fig. 3에 의해 $\Delta\phi$ 가 가장 좋은 결과를 보였던 에칭율 77% IBAD-MgO 조건에 대하여 증착 영역인 216 cm가 에칭되는 시간을 각각 변화시켜 보았다. 이러한 에칭 시간 변화 실험의 경우에는 이전과 다르게 MgO의 정확한 결정 배향성을 측정하기 위해서 Homoepi-MgO의 두께를 약 200 nm 정도로 증착을 하였으며 이러한 두께는 앞에서 언급한 대로 ex-situ XRD 분석이 용이하게 했다. 다음에 보여지는 Fig. 4를 통하여 그 결과값들을 알 수 있는데 IBAD 공정 시간이 40 초가 되는 조건에서 MgO (220)에 대한 phi-scan 결과가 6.4° 로 가장 좋아짐을 알 수 있다.

따라서, IBAD-MgO의 두께가 기판의 결정 배향성을 크게 좌우함을 알 수 있으며, 77%의 에칭율에서는 30 초가 지나면서 IBAD-MgO가 증착되기 시작하는 매우 얇은 적정 두께에서 (00 ℓ) 면으로의 배향성을 지닌 3D 결정의 MgO 핵생성이 이루어짐을 알 수 있다. 이후, 공정 시간이 증가함에 따라 두께가 올라가는 IBAD-MgO 층은 (002) 면에서 tilt되가는 MgO 결정들이 이축 배향성을 저하시키는 요인으로 생각된다.

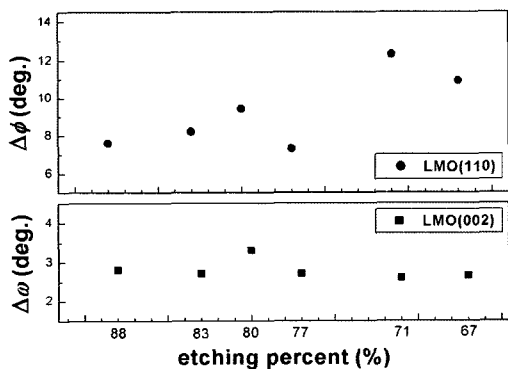


Fig. 3. ϕ and ω scan profile of LaMnO₃ on the IBAD-MgO template vs etching percent of Center.

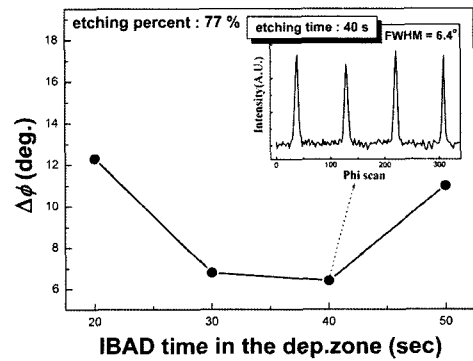


Fig. 4. $\Delta\phi$ degrees with IBAD time in the deposition zone at the etching percent of 77%.

하지만, 아직 IBAD 공정이 실행 초기단계이고 앞에서 보여주었던 Fig. 3에서의 77% 이외 다른 에칭율에서의 IBAD 공정 시간대별 실험이 남아 있어 최적화된 IBAD-MgO 공정 조건을 찾기 위한 실험이 과제로 남아 있다.

마지막으로, multi-turn IBAD system 하에서 100 미터 이상 장선의 테이프 제작을 처음으로 시도를 하였으며, 이때의 IBAD-MgO 공정 조건은 에칭율 77%, IBAD 공정 시간 40 초로 고정하였다. Fig. 5에 그 결과를 나타내었는데, 100 미터로 제작된 테이프에서 12 미터에 걸쳐 MgO (220) 결정 배향성을 분석한 결과 앞에서 나왔던 결과와 유사하게 평균 6° 의 phi-scan 및 2.2° 의 omega-scan 결과를 보였다.

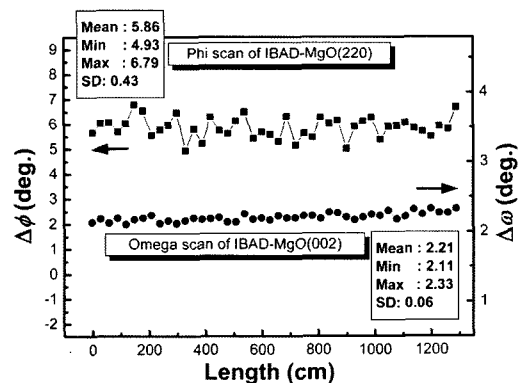


Fig. 5. ϕ and ω scan values of 12 meter-length IBAD-MgO template tape.

4. 결 론

본 연구에서는, 장선재 제작을 위해 제작된 multi-turn IBAD 시스템을 이용하여 Hastelloy 테이프 위에 연속 R2R에 의한 IBAD-MgO texture template 제작이 진행되었다. 현재까지 진행된 여러 IBAD 공정 변수 중에서 216 cm의 길이를 갖는 증착 영역을 40초 동안 이동하며 중심부에서 77%의 에칭율로 제작된 Homoepi-MgO/IBAD-MgO/Y₂O₃/Al₂O₃/Hastelloy 구조의 다층 박막은 약 6.4° 의 반가폭을 가지는

in-plane texture를 보였다. 이러한 결과는 이전의 single turn이 아닌 14-turn을 갖춘 장선용 IBAD 시스템에서도 좋은 결과를 보이는 IBAD-MgO texture template를 제조할 수 있다는 가능성을 보여주었으며, 실제적으로 100 미터 이상 제작된 IBAD-MgO 테이프에서도 12 미터에 대해 분석된 $\Delta\phi$ 역시 평균 6° 로 동일하게 우수한 결정 배향성을 나타내었다. 이러한 점은 국내에서도 초전도 선재를 위한 장선의 기관 제조기술이 빠른 속도로 향상되고 있다는 것을 보여준다. 앞으로 이러한 노력은 외국의 우수한 결과에 필적할만한 가치를 지니고 있다고 판단되며, 국내에서도 실제적인 관심을 유도하는 데 있어서 상당한 영향을 끼치리라고 예상된다.

감사의 글

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

참 고 문 헌

- [1] L. S. Yu, J. M. E. Harper, J. J. Cuomo, and D. A. Smith, "Alignment of thin films by glancing angle ion bombardment during deposition," Appl. Phys. Lett. 47, pp. 932 1985.
- [2] R. M. Bradley, J. M. E. Harper, and D. A. Smith, "Theory of thin-film orientation by ion bombardment during deposition," J. Appl. Phys. 60, pp. 4160 1986.
- [3] Y. Iijima, N. Tanabe, O. Kohno, and Y. Ikeno, "In-plane aligned $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ thin films deposited on polycrystalline metallic substrates," Appl. Phys. Lett. 60, pp. 769 1992.
- [4] X. D. Wu et al., "High current $YBa_2Cu_3O_{7-6}$ thick films on flexible nickel substrates with textured buffer layers," Appl. Phys. Lett. 65, pp. 1961 1994.
- [5] P. N. Arendt et al., "YBCO/YSZ COATED CONDUCTORS ON FLEXIBLE Ni ALLOY SUBSTRATES," Applied Superconductivity, 4, pp. 429 1996.
- [6] C. P. Wang et al., "Deposition of in-plane textured MgO on amorphous Si_3N_4 substrates by ion-beam-assisted deposition and comparisons with ion-beam-assisted-deposited yttria-stabilized-zirconia," Appl. Phys. Lett. 71, pp. 2955 1997.
- [7] Sascha Kreiskott et al., "Reel-to-reel preparation of ion-beam assisted deposition (IBAD)-MgO based coated conductors," Supercond. Sci. Technol. 17, pp. 132 2004.

저 자 소 개



고경필(高景弼)

1976년 12월 15일생, 2003년 전남대 공대 금속공학과 졸업, 2003년 서울대 공과대학원 재료공학부 입학, 현재 동 대학원 재료공학부 석박사 통합과정.



하홍수(河洪秀)

1969년 5월 21일 생, 1995년 성균관대 공대 금속공학과 졸업, 1997년 동 대학원 금속공학과 졸업(공학석사), 현재 한국전기연구원 초전도재료연구그룹 선임 연구원.



김호겸(金護兼)

1978년 01월 18일생, 1900년 연암대학 전자공학과 졸업, 현재 (주) 서남 신소재 연구소 주임연구원.



유권국(兪權國)

1976년 4월 9일생, 2002년 호서대 물리학과 졸업, 2004년 동 대학원 물리학과 졸업(이학석사), 2006년 한양대 물리학과 박사수료, 현재 (주) 서남 신소재 연구소 주임연구원.



고락길(高樂吉)

1972년 5월 1일 생, 1995년 배재대 물리학과 졸업, 1997년 동 대학원 졸업(이학석사), 현재 한국전기연구원 초전도재료연구그룹 선임 연구원.



문승현(文勝鉉)

1964년 9월 23일생, 1987년 서울대학교 (이학박사), 1994~2002년 LG전자 기술원 선임연구원, 책임연구원, 2002~현재 서울대학교 재료공학부 BK 계약 조교수, 2005년~현재 (주)서남 대표이사.



오상수(吳詳秀)

1959년 11월 1일 생. 1983년 경북대 금속공학과 졸업, 1992년 Kyoto대 대학원 졸업(공학박사), 현재 한국전기연구원 초전도재료연구그룹 그룹장.



유상임(劉相任)

1959년 10월 10일생, 1982년 서울대 대학원 무기재료공과 졸업, 1984년 동대학원 무기재료공학과 졸업 (공학석사), 1992년 Iowa State University 졸업 (공학박사), 현재 서울대 재료공학부 부교수.