

REBCO계 고온초전도 선재의 임계전류 향상 연구 동향

글 _ 오상수
한국전기연구원

1. 서론

기존의 금속계 초전도체보다 상대적으로 고온에서 임계온도를 보이는 구리 산화물계 고온초전도체가 처음 발견^{1,2)}된 이후, 가공하기에는 취약한 산화물 물질을 선재의 형태로 가공하는 공정기술에 대한 많은 연구 개발이 1980년대 후반부터 지금까지 세계적으로 활발하게 이루어졌다.

고온초전도체(High Temperature Superconductor, HTS)를 코일이나, 케이블 등의 형태로 만들어 전기적으로 응용하기 위해서는 무엇보다 가격이 싸고 성능이 우수한 선재(wire 혹은 conductor)가 필요하다. 고온초전도선재의 제조기술은 물질에 따라 방법이 크게 다르며 본 고에서는 90년대 초부터 개발되기 시작한 RE(RE ; Y, Sm, Gd, Nd, Ho 등)-Ba-Cu-O계 고온초전도선재에 대한 내용을 다루기로 한다.

상용화 관점에서 임계전류(critical current, I_c), 기계적 강도, 교류손실, 안정성 등 HTS 선재에 요구되는 여러 가지 특성들이 있으나, 이 중에서 임계전류는 초전도기기의 성능과 직결되고 경제성에도 직접적인 영향을 주기 때문에 가장 중요하다고 할 수 있다.

전력기기, 신재생에너지, 의료, 과학, 차세대 교통 등 다양한 분야에서 HTS 기술이 적용되었을 때의 많은 장점에도 불구하고 산업화가 예측보다 더디게 진행되고 있는 것은 무엇보다 HTS 선재의 가격이 높다는데 그 원인이 있다. 일반적으로 $\$/kA\cdot m$ 단위의 성능대비가격으로 초

전도선재들의 가격을 서로 비교할 수 있는데 아직도 HTS 선재의 가격은 이미 상용화에 성공한 금속계 NbTi 초전도선재에 비하여 훨씬 비싸다. SuperPower사에서 작년 ISIS-2011에서 발표한 자료³⁾에 의하면 2016년경에 77 K, 0 T에서의 선재 가격이 $50\$/kA\cdot m$ 로 예측하고 있으나 현재 MRI용 NbTi 초전도선의 가격이 거의 $\sim 1\$/kA\cdot m$ 에 가깝기 때문에 아직도 기존의 상용화 된 금속계 초전도선재와는 가격 차가 크다고 할 수 있다. 선재의 가격을 줄이기 위해서는 값싼 제조공정을 선택하여 개발하는 노력과 제조 공정에서 throughput을 높이는 기술이 중요하다. 그리고 $\$/kA\cdot m$ 단위에서 알 수 있듯이 같은 선재라도 임계전류를 높이면 전체 가격이 떨어지게 된다. 동일한 단면적의 HTS 선재에서 임계전류가 100 A에서 1,000 A로 향상되면 성능대비가격은 10배로 떨어진다는 논리이다. 따라서 아무리 값싼 공정을 채택하여도 만들어진 선재의 임계전류가 낮으면 선재의 가격 측면에서 효과가 줄어든다고 할 수 있다.

일반적으로 다결정 초전도체에서는 결정입자의 정렬 상태가 임계전류밀도(Critical current density, J_c)에 직접적인 영향을 준다. 주로 Power-In-Tube (PIT)법으로 만드는 1세대의 Bi-Sr-Ca-Cu-O(Bi-2223, 혹은 Bi-2212)계 HTS 선재는 제조 공정에서 기계가공과 열처리기술을 이용한다. 1세대 HTS 선재에서는 가공과 열처리 공정으로 판상의 BSCCO 초전도결정입자를 c축으로 정렬(uniaxially texturing)시키는 것은 가능하나 이것만으로는 J_c 를 높일 수 없다. 그러나 coated conductor(본고에서는 이후

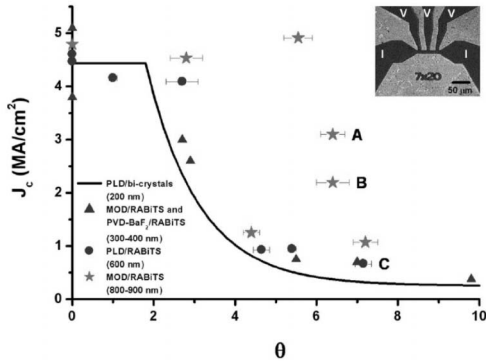


Fig. 1. J_c as a function of mis-orientation angle, θ for several types of YBCO films⁵⁾.

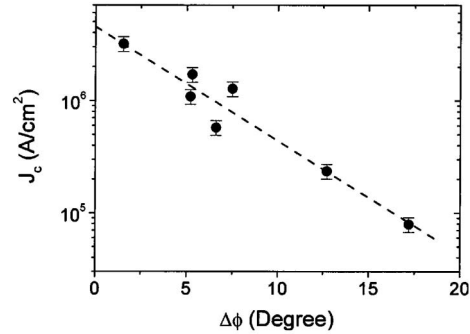


Fig. 2. Critical current densities, J_c , at 77 K for all the different coated conductors as a function of their f-scan FWHM for the x-ray diffraction (102) reflection⁶⁾.

CC라고 함.)라고 부르는 2세대 HTS 선재에서는 초전도체 결정을 양측으로 정렬시키는 증착 코팅 기술을 사용하면 더 높은 J_c 를 구현할 수 있다. CC는 선재의 길이와 초전도체층의 두께에 의존하지만, 짧은 선재의 경우, 액체 질소 온도에서 5 백만 A/cm² 이상의 높은 J_c 도 얻을 수 있다. 이러한 2세대 CC에 대한 연구는 IBAD 기술이 적용되기 시작한 90년대 초를 기점으로 해서 금속기판 위에 여러 층의 산화물 원층층을 입히고 초전도체 결정을 증착하는 새로운 방법들이 제안되면서 국내외적으로 많은 연구가 이루어졌다.

본 고에서는 RE-Ba-Cu-O(RE₁Ba₂Cu₃O_{7- δ} , REBCO) CC의 임계전류에 미치는 여러 인자들에 대해 분석하고 최근의 국내외 연구 성과와 동향 그리고 향후의 계획 등에 대해 개괄적으로 소개하고자 한다.

2. 임계전류밀도에 영향을 주는 인자

초전도체에서 임계전류를 높이기 위해서는 가장 일반적인 방법은 J_c 를 높이는 것이다. 그러나 J_c 는 초전도체 내부의 결함(크랙, 공극, 2차상 등), 결정입계에서의 약결합(weak-link), 자속선 고정 특성 등에 크게 의존한다. 초기 Y₁Ba₂Cu₃O_{7-x}(YBCO) 선재에서 J_c 는 ~200 A/cm² 수준에 불과하였다. 그러나 제조 공정을 최적화하고 초전도체 결정을 에피택셜로 양측(결정 구조에서 c축과 a 혹은 b축)으로 성장시키는 epitaxial growth 증착기술을 이용하여 J_c 가 획기적으로 향상되었다. J_c 를 향상시키는 방법은

외부 자장이 인가된 조건과 자장이 걸리지 않은 무자장(self field) 조건에서 달라지게 된다. 외부 자장 하에서는 초전도체 내부로 침입한 자속선을 효과적으로 고정할 수 있는 자속선 고정점(pinning center)의 유무와 분포, 사이즈 등이 큰 영향을 미친다.

본 고에서는 self field 조건에서의 J_c 에 대한 내용을 주로 다루고자 한다. 다결정 REBCO 선재에서 J_c 는 일반적으로 결정입계의 구조에 크게 의존하는데 J_c 향상에 대한 연구는 결정입계에 대한 이해와 구조 분석을 통하여 이루어졌다고 할 수 있다. Dimos 등은 쌍결정 기판 위에 에피택셜로 성장시킨 YBCO 초전도체박막을 이용하여 결정입계를 가로지르는 J_c 가 접촉각도(mis-orientation angle, θ)가 커질수록 J_c 가 지수함수적으로 감소한다는 사실을 최초로 보고⁴⁾하였다. 결정입자 사이에서의 약한 초전도결합은 결정입계에서의 본질적인 구조적 무질서(disorder)와 관련이 있으며 결정입계가 전류의 흐름을 방해하는 장벽이 된다는 것을 의미한다.

Feldmann은 RABiTS 기판위에 PLD와 MOD 방법으로 만든 YBCO 박막의 J_c 와 θ 의 관계를 비교하여 보고⁵⁾하였다. Fig. 1에서 보이는 것처럼 77 K의 J_c (self field) 값이 θ 가 증가할수록 감소하는 경향을 알 수 있는데 측정된 CC의 제조 공정에 따라 감소하는 경향이 다르게 나타나고 있다. MOD법으로 만든 800~900 nm 두께의 YBCO에서는 다른 시편들과는 다른 감소 경향을 나타내며 $\theta \sim 5.5^\circ$ 의 경우, 쌍결정 위에 증착한 YBCO보다 동

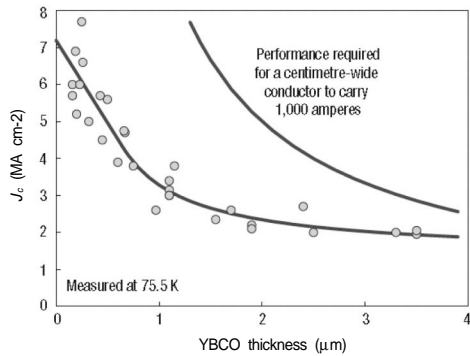


Fig. 3. Thickness dependency of J_c for YBCO films deposited by PLD⁶⁾.

일한 두께에서 6배 정도로 높은 J_c 를 나타내고 있다. TEM으로 조사한 바에 의하면 MOD-CC는 결정입계가 상당히 구불구불한 구조를 하고 있는 것이 특징이다. 결정입계가 평탄한 구조보다 구불구불한 구조에서 전류통과 면적이 증가한다는 것과 관련이 있는 것으로 설명하고 있다.

Dimos의 논문이 발표되면서 결정입계의 문제를 해결하는 수단으로 양축결정배향기술(biaxially texturing)이 크게 주목을 받게 되고 RABiTS와 IBAD 기판을 사용하여 초전도체 결정을 양축으로 배열시키는 것이 가능하게 되면서 다결정 초전도체의 결정입계 각도가 크게 줄어들고 J_c 는 비약적으로 향상하게 된다. 많은 연구자들이 REBCO 초전도체의 결정입자의 면내배향성(in-plane texture)을 X선 pole figure로 분석하여 FWHM값으로 평가한 면내배향성이 줄어들수록 J_c 가 향상된다는 결과를 보고^{6,7)}하였다.

Fig. 2는 서로 다른 방법으로 제조한 7개의 CC 시편의 면내결정배향성과 J_c 의 관계를 보여주고 있다. X선으로 YBCO 결정의 (102)면을 ϕ 스캔 분석하여 J_c 값이 $\Delta\phi$ 가 줄어들수록 비례하여 직선적으로 증가하는 경향을 잘 보여주고 있다. J_c 가 1 MA/cm^2 이상 되기 위해서는 $\Delta\phi$ 가 5도 이하로 면내배향성이 향상되어야 한다는 것을 알 수 있다.

3. 임계전류 향상 연구

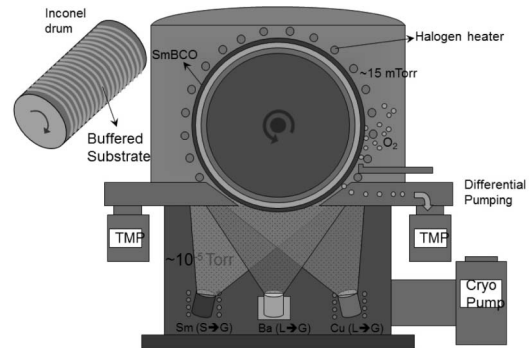


Fig. 4. Schematic layout of EDDC system for the deposition of SmBCO film.

REBCO-CC의 임계전류를 높이기 위해서는 초전도체의 임계전류밀도뿐만 아니라 증착하는 막의 두께를 높이는 것이 일반적인 방법이다.

Fig. 3는 PLD로 증착 YBCO막의 J_c 가 두께가 증가함에 따라 어떻게 변하는 지를 보여주고 있다⁸⁾. 아주 얇은 두께의 YBCO막에서는 8 MA/cm^2 의 상당히 높은 J_c 가 보고되고 있으나, $2 \mu\text{m}$ 이내에서는 J_c 값이 두께가 증가하면서 크게 떨어지는 경향을 보이고 있다. 기판 표면 근처의 아주 얇은 초전도체에서는 높은 J_c 가 나타나지만 막이 두꺼워 지면서 초전도 결정의 배향성이 떨어지거나 크랙, 공극 등이 결함이 많이 나타나면서 전류의 흐름을 방해하는 것으로 설명할 수 있다.

Fig. 3의 그래프에는 1 cm 폭 기준으로 $1,000 \text{ A}$ 를 달성하기 위한 미국 DOE의 2010년도 개발 목표를 보여주고 있다. $1,000 \text{ A}$ 를 달성하기 위해서는 두 개의 방법이 있을 수 있는데 하나는 막을 두껍게 입히는 것이고, 다른 하나는 J_c 가 아주 높은 아주 얇은 두께의 YBCO 박막과 완충층을 삽입층(interlayer)으로 하여 다층 구조의 초전도체를 만드는 방법이다. Foltyn 등은 $\sim 3.4 \mu\text{m}$ 정도의 YBCO+CeO₂ 다층막에서 $1,200 \text{ A}$ 의 임계전류가 달성될 수 있다는 보고⁸⁾를 하였다.

국내에서는 2001년부터 한국전기연구원(KERI)이 주도하여 교과부 지원의 프론티어 DAPAS(Development of Advanced Power systems by Applied Superconductivity technologies)사업에서 산학연 협동연구로 고온초전도 CC의 고성능화 연구과제를 수행하였다. KERI는 YBCO

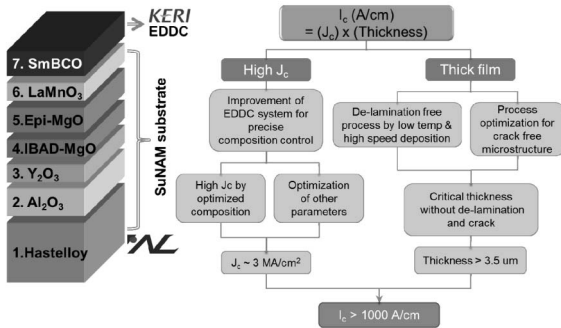


Fig. 5. Architecture of KERI coated conductor and experimental plan for 1,000 A/cm R&D target in DAPAS-CC project.

대신 고자장 특성이 우수한 SmBCO 물질을 선택하여 반응형 동시증발(Reactive Co-Evaporation, RCE)공정으로 고임계전류의 SmBCO-CC를 제조하는 공정을 확립하였다.

Fig. 4에 EDDC (Evaporation using Drum in Dual Chamber)의 장치 개략도를 나타냈다. EDDC는 RCE(Reactive Co-Evaporation)기술에 속하며, KAIST에서 개발된 원천기술로 실험실 규모의 장비를 KERI에서 100 m급 CC를 제조할 수 있는 장비로 개조하였으며 수 차례의 수정 보완을 통하여 장치의 성능을 향상시켰고 이 장치를 이용하여 100 m급의 SmBCO CC를 제조한 적이 있다. EDDC 장치는 하부 증발챔버와 상부 반응챔버로 구성되었고 상부 반응챔버 내에 기판 테이프가 감긴 인코벨 드럼이 700~800°C 고온 산소분위기하에서 회전하는 구조로 되어 있다. 하부챔버에서 증발된 원자들은 상부챔버의 기판 표면에 혼합물 상태로 붙고 고온의 산소 영역으로 이동할 때 원자들의 확산과 산화반응이 동시에 일어나면서 Sm:Ba:Cu가 1:2:3 조성의 초전도화합물상이 생성된다. 동시증발법으로 고품질의 초전도층을 제조하기 위해서는 정밀하고 재현성 있는 조성제어기술과 양축으로 초전도결정을 배향시키면서 성장시키는 것이 중요한데 결정 배향성은 MgO 및 LMO층의 결정배향성, 반응온도, 산소분압 등에 의존한다.

KERI의 EDDC 장치는 batch type이기 때문에 원통드럼의 구조상 100 m 이상의 길이를 제조하는 것이 불가능하다. 국내에서 DAPAS 사업 기간 중에 설립된 (주)

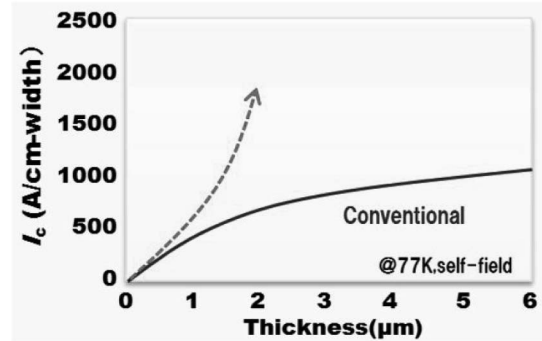


Fig. 6. Thickness vs. I_c for 3G HTS wire in future Japanese national project³⁾.

서남에서는 연속 릴투릴 공정으로 초전도층을 증착할 수 있는 RCE-DR(Deposition & Reaction) 장비를 개발하였다. 이 공정은 30 kW의 e-gun으로 소스 금속을 증발시켜 멀티턴으로 이동하는 기판테이프 표면에 비정질상의 초전도층 전구체 혼합물을 증착시키고 인라인으로 연결된 반응열처리로에서 순간적으로 초전도상을 형성시키는 새로운 고속 conversion 공정이다.

KERI는 DAPAS 사업에서 (주)서남에서 제공한 IBAD-MgO 기판을 이용하여 세계 최고 수준인 1,000 A/cm-w (77 K, self field)의 SmBCO를 개발하는데 성공하였다. Fig. 5에 SmBCO-CC의 층구조와 1,000 A/cm DAPAS 사업의 최종 목표를 달성하기 위한 실험계획을 나타냈다. DAPAS 연구사업에서는 (주)서남에서 제공한 IBAD 기판을 이용하였으며, EDDC 공정으로 SmBCO 증착에 집중하여 우수한 연구성과를 거두었다. 1,000 A의 임계전류를 달성하기 위해서는 후막에서 높은 J_c 를 내지 않으면 불가능하였기 때문에 증착 변수들을 분석하고 최적화하는 연구를 수행하였다. 우선 가장 까다로운 초전도체 화합물의 조성을 체계적으로 제어할 수 있는 기술을 개발하였고, 기판온도, 반응챔버의 산소분압 등을 최적화하였으며, 2011년 3월에 KERI 연구팀은 두께 5 μm 의 후막에서도 SmBCO 초전도체의 결정 배향성이 무너지지 않고 조직이 치밀한 막을 제조할 수 있는 공정 조건을 최적화함으로써 세계 최고 수준의 CC 제조기술을 확보하는 성과를 올렸다.

4. 3세대 HTS 선재의 연구 방향

미국, 일본, 한국을 중심으로 한 개발 경쟁을 통하여 CC의 제조 길이와 임계전류 성능이 해마다 기록이 경신될 정도로 향상되었으나, 아직도 상용화 측면에서는 성능이나 가격에 문제가 있다. 특히 비싼 선재 가격을 시장을 본격적으로 확대시키는데 걸림돌이 되고 있다. CC로 만든 초전도전력 케이블들이 실제 전력계통에 적용한 개발 성과도 보고되고 있으나 자장이 걸리는 다른 응용기기에서는 CC의 임계전류 특성이 요구 수준에 못 미치기 때문에 개발된 사례가 많지 않다.

최근에 Shiohara 박사가 다산 컨퍼런스에서 발표한 자료⁹⁾에 의하면 일본 ISTECC는 2013년부터 3세대 개념의 CC 개발을 위한 프로젝트를 준비 중에 있다. Fig. 6과 같이 ~2 μm 의 초전도층 두께에서도 임계전류밀도, J_c 가 10 MA/cm^2 로 기존의 CC에 비하여 두 배 이상으로 아주 높고, 낮은 교류손실을 위하여 면내결정배향 특성 $\Delta\phi$ 가 2도 이하, 고자장 특성도 65 K, 5 T 조건에서 임계전류가 500 $\text{A}/\text{cm-w}$ 인 REBCO-CC를 개발하는 목표를 세우고 있다. 또한 이러한 3세대 CC에서는 테이프 선재의 폭과 길이방향으로의 균일성 향상과 박리 문제를 해결하기 위한 고강도화 기술도 개발할 예정이다.

2 μm 의 두께에서도 1,000 A 이상의 높은 임계전류를 달성하기 위해서는 기존의 공정 개념을 뛰어 넘는 새로운 breakthrough 기술이 필요하다고 본다.

자장 중에서의 임계전류를 향상시키기 위해서는 자속선을 고정할 수 인공핀닝센터(Artificial Pinning Center, APC)용 신물질 제조 및 형성 기술과 APC의 사이즈와 분포를 자장과 온도, 각도 조건에 맞게 제어할 수 있는 고도의 공정기술이 필요하다.

국내에서는 DAPAS 사업 이후에 고자장에서 사용할 수 있는 고성능 CC 개발이 이루어지지 못하였으나 최근 KERI에서는 내부과제로 EDDC를 이용한 고자장용 CC 연구과제를 착수하였다.

5. 맺음말

CC 연구는 2000년대 초반까지 주로 미국, 일본이 국책 프로젝트에 힘입어 연구 개발을 주도하였다. CC에서 가장 중요한 임계전류 성능이 수백 m급의 긴 길이에서도 400 $\text{A}/\text{cm-w}$ 를 넘는 기록들이 경쟁적으로 보고되었으나 확립된 양산 조건에서 안정적으로 CC를 생산하여 공급하는 데에는 이르지 못하고 있다. 일본에서는 3세대 개념의 CC를 개발하는 연구를 내년부터 시작할 예정이다. 우리나라는 DAPAS 사업의 지원으로 2000년대 중반부터 미국, 일본에 뒤떨어지지 않는 연구 성과를 내고 특히, 임계전류(77 K, self-field)와 길이 성능 면에서는 세계적 수준으로 제조기술이 발전하였다. 그러나 제조공정의 안정성 부족과 후공정의 보완 등 아직도 해결해야 할 문제들이 있다. 특히 우리나라에서 개발한 RCE 공정에 맞는 APC(Artificial Pinning Center)기술을 시급하게 개발하지 않으면 애써 이룩한 우리나라의 CC 경쟁력이 후퇴하지 않을 까 걱정이다. CC는 초전도를 이용하는 녹색성장기술의 핵심 소재이기 때문에 지속적인 발전을 위해서는 정부의 관심이 있어야 할 것으로 보며, 장기과제의 발굴을 통하여 계속 연구개발을 할 수 있는 여건이 마련되는 것이 중요하다고 본다.

참고문헌

1. J.G. Bednorz and K.A. Muller, "Possible High Tc Superconductivity in the Ba-La-Cu-O System", *Z. Phys.*, **B 64** 189-193 (1986)*Ceram. Int.*, **29** [2] 159-68 (2003).
2. M. K. Wu, J. R. Ashburn, C. J. Torng, P. H. Hor, R. L. Meng, L. Gao, Z. J. Huang, Y. Q. Wang, and C. W. Chu, "Superconductivity at 93 K in a New Mixed-Phase Y-Ba-Cu-O Compound System at Ambient Pressure", *Phys. Rev. Lett.*, **58** 908-10 (1987).
3. Traute F. Lehner, "2G HTS Wire Status in the USA", International Superconductivity Industry Summit, Oct. 31-Nov. 1, 2011, Korea.
4. D. Dimos, P. Chaudhari, J. Mannhart, and F.K. LeGoues, "Orientation Dependence of Grain-Boundary Critical Currents in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ Bicrystals", *Phys. Rev. Lett.*, **2** 219-22 (1988).
5. D.M. Feldmann, T.G. Holesinger, R.Feenstra, C. Cantoni, W. Zhang, M. Rupich, X. Li, J.H. Durrell, A. Curevich, and D.C. Larbalestier, "Mechanism for



- Enhanced Supercurrent Across Meandered Grain Boundaries in High-temperature Superconductors”, *J. Appl. Phys.*, **102** 083912 (2007).
6. J.C. Gonzalez, N. Mestres, T. Puig, J. Gazquez, F. Sandiumenge, X. Obrados, A. Usoskin, Ch. Joose, H.C. Freyhardt, and R. Feenstra, “Biaxial Texture Analysis of Coated Conductors by Micro-Raman Spectroscopy”, *Phys. Rev.*, **B 70** 094525 (2004).
 7. J. S. Morrell et al., “Epitaxial Growth of Gadolinium Oxide on Roll-Textured Nickel Using a Solution Growth Technique”, *J. Mater. Res.*, **15** 621 (2000).
 8. S. R. Foltyn, L. Civale, J. L. MacManus-Driscoll, Q. X. Jia, B. Maiorov, H. Wang, and M. Maley, “Materials Science Challenges for High-Temperature Superconducting wire”, *Nature Materials*, **6** 631-42 (2007).
 9. Yuh Shiohara, “Future Prospects of REBCO Coated

Conductors”, 2012 DASAN Conference on Superconductivity, Nov.7-11th, Jeju, Korea.

●● 오상수



- 1992년 Kyoto 대학 금속공학과 박사
- 1992년-현재 한국전기연구원 책임연구원