

금속 열처리에 의한 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 고온 초전도체 박막의 특성

신현용*, 박창엽*, 김규수**

플로리다 주립대학교 전기공학과, *연세대학교 전기공학과, **울산전문대 전자공학과

Characteristics of rapid-thermal-annealed $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ high T_c superconducting thin-films

Hyun-Yong Shin, Chang-Yub Park*, and Kyu-Soo Kim**

Florida State Univ., *Yonsei Univ., **Ulsan Junior College

ABSTRACT

The superconducting thin films of $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ were deposited on (100) sapphire substrates at low temperature by rf magnetron sputtering and annealed at 895°C for 60 sec. using rapid-thermal-annealing(RTA) technique. The films were characterized by SEM, four-point probe resistivity measurement, XRD, and AES. The RTA processed HTS films had a preferential structure with c-axis normal to the substrate surface.

1. 서론

이트륨이나 란타넘 성분을 가진 높은 T_c 의 산화물 초전도체가 발견된 이후, 산화물 초전도체에 대한 연구가 전세계적으로 활발히 진행되고 있다. 특히 이 산화물 초전도체를 현재 사용하고 있는 반도체 디바이스와 집적화시키기 위하여 박막에 대한 많은 연구가 수행되고 있다.

$YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 와 그와 유사한 성분의 산화물 초전도체 박막의 제조에는 thermal evaporation[1], electron beam evaporation[2], laser ablation[3], 스퍼터링[4]과 같은 물리적 방법들과 CVD[5]같은 화학적 방법이 사용되고 있다. 일반적으로 이와같은 방법들은 600-700°C 또는 그 이상의 높은 기판 온도와 850-920°C의 고온에서 1시간에서 수시간의 후열처리를 요구한다. 본 연구에서는 비교적 값이 저렴한 사파이어 기판 위에 낮은 온도에서 rf magnetron 스퍼터링으로

$YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 박막을 퇴적시키고 금속 열처리법으로 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 초전도 박막을 형성시켜 그 특성을 조사하였다.

2. 실험

본 실험에 사용한 Y-Ba-Cu-O 스퍼터링 target은 순도 99.99% 이상의 Y_2O_3 , $BaCO_3$, CuO 분말을 이용하여 고상 반응법으로 제작하였다. 제작된 target의 밀도는 4.8-5.2 g/cm³이었다. 표 1의 조건 하에서 rf magnetron 스퍼터링으로 (100) 단결정 사파이어 기판에 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 박막을 퇴적하였다. 스퍼터링을 시작하기 전에 10분간의 pre-sputtering으로 target 표면의 오염을 제거하였다. 박막 퇴적 공정중에 quartz crystal monitor에 의해 측정된 박막의 퇴적속도는 5nm/min이었다.

표 1 Sputtering condition

rf power	50 W
substrate Temp.	400 °C
sputtering gas	Ar:O ₂ =95:5
gas pressure	0.15 Torr
chamber pressure	2 mTorr
target-sub. distance	40 mm
sputtering time	120 min

기판에 퇴적된 박막은 검고 윤이나는 절연성 layer로 초전도체로 상전이를 시키기 위하여 금속 열처리 방법을 사용하였다. 본 실험에서 사용한 금속 열처리 system은 텅스텐-할로겐 램프 군(群)을 가열원으로 사용하였으며 기판의 온도를 thermocouple을 부착시킨 별도의 사파이어 기판을 박막이 퇴적된 기판과 나란히 배열하여 측정하였다. 기판의 온도를 895°C까지 100°C/sec의 비율로 증가시켰으며 895°C에서 60초

동안 산소 분위기 속에서 열처리하였다. 금속 열처리 chamber는 열처리를 시작하기 전에 헬륨 가스로 3-5분 동안 세척하였다. 온도를 증가시키기 시작하여 895°C에 도달한 후 15초까지는 대기압의 헬륨 가스를, 그 이후부터 열처리 공정이 끝날 때 까지는 대기압의 산소 가스를 사용하였다.

3. 결과 및 고찰

금속 열처리를 마친 박막들은 광학 현미경을 이용하여 표면을 조사한 후 SEM, XRD, AES 등을 이용하여 박막의 물리적 특성을 측정하였다. 그림 1은 4 단계법으로 측정된 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 초전도체 박막의 온도-비저항특성 곡선이다. 측정을 위한 전류원으로는 100 μ A의 직류를 사용하였다. 금속 열처리한 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 박막은 91K에서 $T_c(\text{onset})$ 을 보였으며 그 이상의 온도에서 금속과 같은 특성을 나타내었고, 또한 80K에서 비저항이 0으로 떨어졌다. 박막의 전류밀도를 측정하기

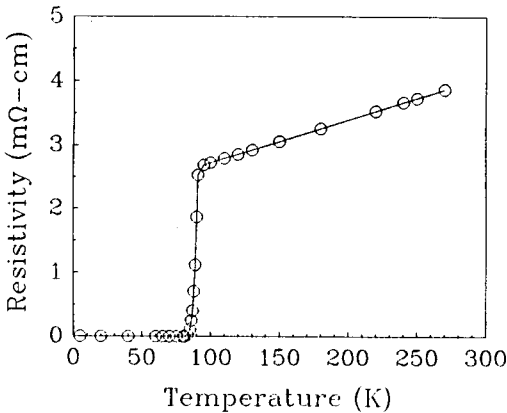


그림 1 금속 열처리에 의해 제작된 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 박막의 비저항-온도 곡선.

위하여 사진 식각법으로 0.1mm x 0.5 mm의 다리모양(bridge pattern)을 제작한 후 1000Å의 은전극(0.5mm x 2mm, 4개)을 1×10^{-5} Torr의 진공중에서 증착시켰다. 이 은전극에 구리선을 silver paste로 접착시켜 측정한 박막의 임계 전류밀도 (J_c)는 6.1×10^4 A/cm²이었다. 그림 2는 77K에서 측정된 박막의 전류-전압 특성곡선을 보여주는 것이다. 사진 1(a)는 금속 열처리한 박막의 표면을, 사진 1(b)는 전기로에서 열처리한 박막의 표면을 보여주는 SEM사진이다. 사진 1에서 볼 수 있듯이 금속 열처리한 박막은 작은 판상 구조를 가졌으나 전기로로 열처리한 박막은 가늘고 긴 판들이 무질서한 바늘모양

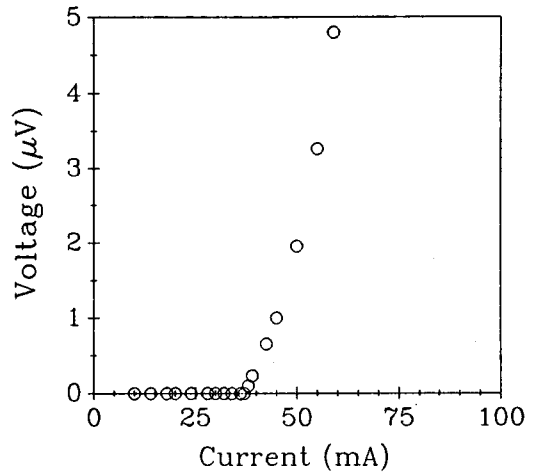


그림 2 금속 열처리에 의해 제작된 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 박막의 전압-전류 특성 곡선.

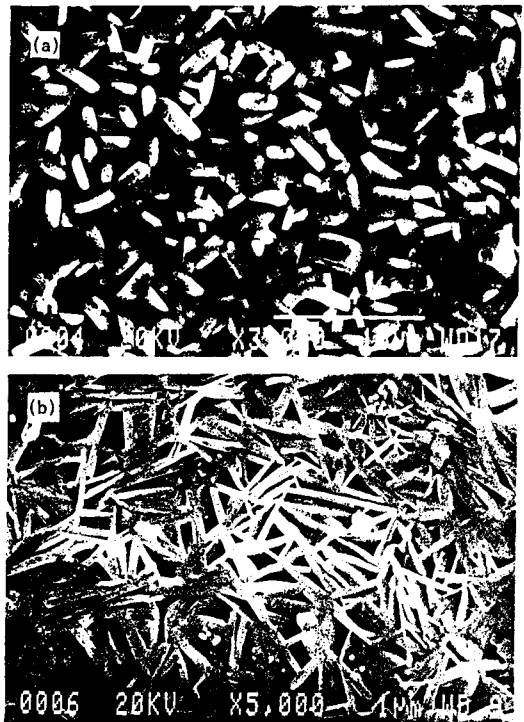


사진 1 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 박막의 SEM 사진: (a) 금속열처리, (b) 전기로 열처리

의 구조로 서로 연결되어 있음을 볼 수 있다. 이와 같은 구조상의 차이는 금속 열처리시에는 결정들이 서로 결합할 수 있는 충분한 시간이 주어지지 않았으므로 매우 작은 판상의 모양만을 이루었으나 고온의 전기로 열처리 공정에서는 충분한 시간이 주어져 작은 판상의 구조들이 서로 결합하여 넓은 판모양을 이루었다고 생각되어진다.

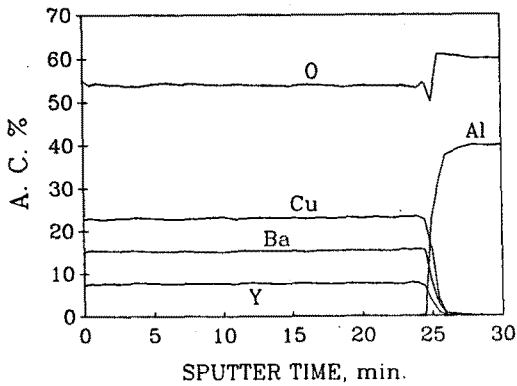


그림 3 금속 열처리에 의해 형성된 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 박막의 AES depth profile.

그림 3은 금속 열처리에 의해 형성된 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 초전도체 박막의 조성을 보여주는 AES depth profile로서 금속 열처리에 의해 형성된 박막과 기판사이의 계면에서 매우 작은 정도의 상호 확산이 있었음을 보여준다. 이는 금속 열처리법이 박막과 기판사이의 계면에서 열처리 공정중에 발생하는 상호 확산을 감소시키는데 유효한 것임을 뜻하는 것이다. 또한 AES depth profile은 박막의 표면에서 계면까지 화학적 조성이 거의 변화가 없음을 나타내고 있다.

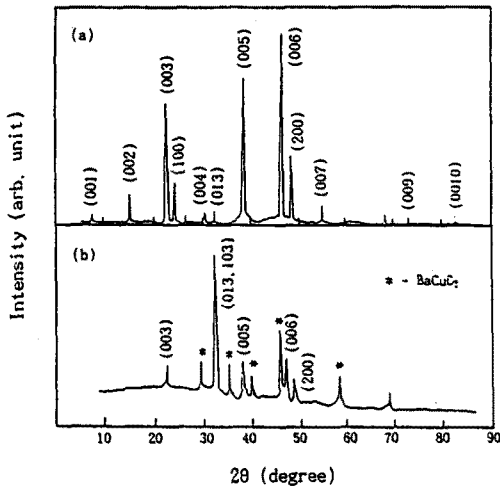


그림 4 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 박막의 X-선 회절 모양: (a) 금속 열처리, (b) 전기로 열처리

제작된 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 초전도체 박막의 구조분석을 위하여 XRD분석을 실시하였다. 그림 4는 금속 열처리에 의해 형성된 박막과 일반적인 전기로에 의해 고온 열처리한 박막의 XRD spectrum이다. 그림 4(a)는 금속 열처리에 의해 형성된 박막

으로부터 얻어진 XRD spectrum으로써 (001), (002), ..., (00L)의 x-ray diffraction peak들이 많은 것은 형성된 박막의 c-축이 주로 기판에 수직으로 배열되어 있음을 나타내고 있다. 그러나 그림 4(b)에 주어진 XRD spectrum은 전기로로 고온에서 열처리한 박막에서 얻어진 것으로 분석 결과 박막내에 초전도성의 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 와 비초전도성의 $BaCuO_2$ 가 존재하고 있으며 초전도성의 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 는 무질서하게 배열되어 있음을 보여주고 있다.

4. 결 론

금속 열처리법을 이용하여 rf magnetron 스퍼터링에 의해 사파이어 단결정 기판 위에 퇴적된 박막으로부터 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 초전도체 박막을 제작하였다. 제작된 박막은 80K에서 $T_c(\text{zero})$ 를 나타내었으며 $T_c(\text{onset})$ 이상의 온도에서의 온도-저항특성은 금속과 같은 특성을 나타냈으며 J_c 는 $6.1 \times 10^4 \text{ A/cm}^2$ 이었다. 또한 XRD 분석 결과, 제작된 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 박막은 주로 c-축이 기판에 수직인 구조를 가지고 있음을 알 수 있었다. 본 연구의 결과, rf magnetron 스퍼터링과 금속 열처리에 의해 특성이 우수한 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 초전도체 박막을 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 와 잘 반응하는 것으로 알려진 사파이어 기판에 제작할 수 있었다.

참 고 문 헌

- [1] D. D. Berkley, D. H. Kim, B. R. Johnson, A. M. Goldman, M. L. Mecartney, K. Beauchamp, and J. Maps, Appl. Phys. Lett., vol. 53, no. 8, pp. 708-709, 1988.
- [2] M. Mukaida, M. Yamamoto, Y. Tazoh, K. Kuroda, and K. Hohkawa, Jap. J. Appl. Phys., vol. 27, no. 2, pp. L211-L213, 1988.
- [3] S. Komuro, Y. Aoyagi, T. Morikawa, and S. Namba, Jap. J. Appl. Phys., vol. 27, no. 1, pp. L34-L36, 1988.
- [4] S. J. Lee, E. D. Rippert, B. Y. Jin, S. N. Song, S. J. Hwu, K. Poeppelmeier, and J. B. Ketterson, Appl. Phys. Lett., vol. 51, no. 15, pp. 1194-1196, 1987.
- [5] H. Yamane, H. Masumoto, H. Hirai, H. Iwasaki, K. Watanabe, N. Kobayashi, Y. Muto, and H. Kurosawa, Appl. Phys. Lett., vol. 53, no. 16, pp. 1548-1550, 1988.