

## Bi계 초전도 박막의 단결정 생성영역

천민우, 김태곤, 박용필

동신대학교

### Phase Diagram of Single Crystal in Bi System

Min-Woo Cheon, Tae-Gon Kim, Yong-Pil Park

Department of Electrical & Electronic Engineering, Dongshin Univ.

**Abstract :** Bi-system thin films are prepared by ion beam sputtering technique. Three phases of Bi-2201, Bi-2212 and Bi-2223 appear as stable ones in spite of the conditions for thin film fabrication of Bi-2212 and Bi-2223 compositions, depending on substrate temperature( $T_{sub}$ ) and ozone pressure( $PO_3$ ). It is found out that these phases show similar  $T_{sub}$  and  $PO_3$  dependence, and that the stable regions of these phases are limited within very narrow temperature.

**Key Words :** BSCCO thin film, co-deposition, sticking coefficient, Bi 2201 phase, Bi 2212 phase

### 1. 서 론

Bi계 초전도 박막은 전기·전자·정보통신 분야 뿐 아니라 다양한 산업 분야에서 첨단 디바이스로 응용할 수 있어 많은 기대가 모아지고 있다. 이를 위해서는 소자로의 응용 가능한 양질의 단결정 제작이 필수적이며, 원자 단위에서의 성장 메커니즘이 연구되어야 한다.

$Bi_2Sr_2Ca_nCu_{n+1}O_x$ (BSCCO ;  $Bi22n(n+1)$ ,  $\geq 0$ ) 시스템과 같이 다성분 화합물에 대한 연구 및 제작은 동질이상 때문에 매우 까다롭다. Bi계 존재하는 각각의 상에 대한 생성 영역을 규명하면 박막 내에서 원자의 흡수, 이동, 결합 및 막 표면에서의 재증발 등 박막 성장 메커니즘과 관련된 다양한 정보를 얻을 수 있어 고품질의 단결정 제작이 가능하다. 따라서 본 연구는 Bi계 초전도 박막을 제작하고 생성영역을 규명하고자 하였다.

### 2. 실 험

박막 제작에는 동시 증착 장치[1]를 이용하였으며 Bi 원소를 자유증발 셀에서 증발시키는 방식으로하여 다양한 원소를 보다 안정하게 공급할 수 있도록 하였다. 자유증발 셀을 채용함으로써 기판온도 의존성이 큰 Bi 원소의 부착량을 넓은 온도 범위에 걸쳐 일정하게 유지할 수 있고, 박막의 상 생성에 관해 보다 정확한 논의가 가능하게 되었다. 제작한 박막은 Energy Dispersive X-ray spectroscopy로 조성을 분석, 확인하였으며 결정구조는 X-ray diffraction으로 조사하였다. 박막제작에 사용한 동시 증착 장치를 그림 1에 나타냈다.

### 3. 결과 및 고찰

박막 조성이 Bi2212 또는 Bi2223상의 화학양론과 일치하도록 각 원소의 증착 속도를 설정하였고 산화 가스압과 기판온도를 변화시키며 성막하였다. 이때 Bi 원소의 부착 계수는 기판온도에 강하게 의존하므로 기판온도를 변화시

켜 증발량을 조정하여 기판 상에 항상 일정량의 Bi 원소가 부착할 수 있도록 하였다. 제작된 박막은 조성 분석을 통해 Bi2212 혹은 Bi2223 조성의 박막만을 데이터로 채용하였다.

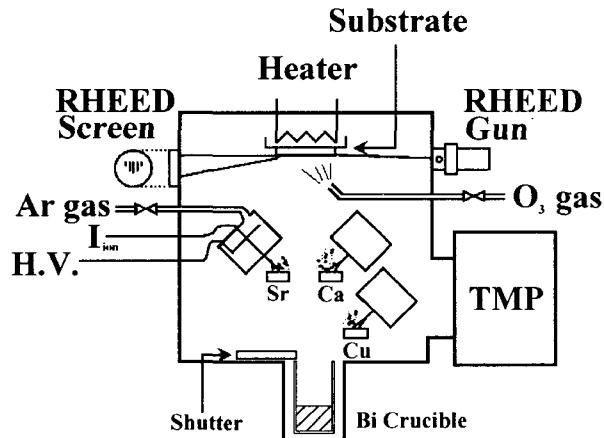


그림 1. 동시 증착 장치.

그림 2에  $Bi: Sr: Ca: Cu = 2: 2: 1: 2$ 로 조성을 고정했을 때의 Bi 계 초전도상의 생성상도를 표시하였다. 횡축은 기판온도(K)의 역수, 종축은 산화가스 O<sub>3</sub> 압의 대수를 취한 것이다. 그림 중 ○은 Bi2201상이 생성된 박막을 나타내고, ●은 Bi2212상, ○은 Bi2223상의 생성을 각각 나타내고 있다. 충합된 그림 표시는 XRD의 피크가 Bi2201 단상[(002) 피크 위치=7.24°], Bi2212 단상[(002) 피크 위치=5.75°] 및 Bi2223상 단상[(002) 피크 위치=4.77°]의 어느 쪽에도 속하지 않은 것이다. 이들은 (002) 피크 위치가 이상적인 Bi2201상과 Bi2212상 또는 Bi2212상과 Bi2223상과의 사이에 위치해 있고, 이들 사이에 충합된 결정계의 생성을 나타내고 있다[2].

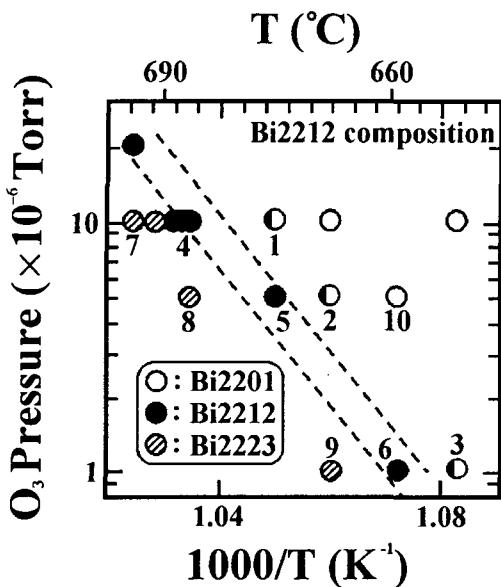


그림 2. Bi2212 조성으로 제작한 박막의 생성상도.

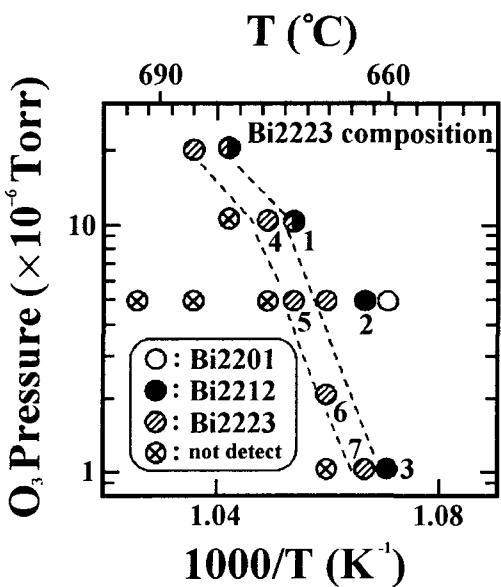


그림 3. Bi2223 조성으로 제작한 박막의 생성상도.

각 상의 생성 영역은 금속원소의 증기압 곡선과 동일한 양상으로 우측 하단 쪽으로 band 상태의 분포를 보이고 있다. 일정한 압력 선상에서 비교하면, 기판온도가 저온에서 고온 측으로 이동함에 따라 박막의 결정구조는 Bi2201 → Bi2212 → Bi2223으로 변화한다. 또한 기판온도가 일정한 선상에서는 가스 압력에 따라 동일한 양상의 변화가 보인다. 따라서 단위격자에서 c 축의 길이가 길어지면 그 생성 영역은 고온 저압 측으로 이동해 가는 것을 알 수 있다. 또 그림에 표시된 것보다 높은 온도 영역에서는 Bi 계 초전도상의 생성은 관찰되지 않았으며 약간의 CaO의

피크가 확인될 뿐이었다.

다음으로 박막조성이 Bi2223이 되도록 각 원소의 증발량을 조정하고, 기판온도 및 산화가스압을 다양하게 변화시켜 박막을 제작하여 초전도상의 생성조건을 조사했다. 그림 3에 상도를 나타냈다. 그림에서 ○는 Bi2201상, ●는 Bi2212상, ⊗는 Bi2223상이 생성된 막을 각각 나타낸다. ⊗는 XRD 패턴에서 BSCCO 상의 생성이 관찰되지 않았던 막을 나타낸다. 그림 2의 경우와 같이 조성이 Bi2223임에도 불구하고 Bi2201, Bi2212 및 Bi2223의 각상이 생성된 경향을 보이고 있다. 동일한 가스압 조건에서는 기판온도가 상승함에 따라 생성상은 Bi2201상 → Bi2212상 → Bi2223상으로 변화하고 있다. 또 이들의 생성상은 우측 하단 방향으로 경사진 직선으로 표시된 영역 위에 분포하고 있으나, 그림 2의 직선에 비해 그림 3의 기울기가 크다. 각상의 생성 영역은 그림 3이 전반적으로 저온 측으로 이동해 있고, 그림 3의 Bi2223상의 생성영역과 그림 2에서의 Bi2212상의 생성영역은 거의 일치하고 있다.

#### 4. 결 론

자유 증발셀을 이용한 동시 증착 장치로 제작한 Bi 계 산화물 초전도체의 생성 조건을 밝혔다. Bi 계 산화물을 초전도체는 3 개의 상( $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_n\text{Cu}_{n+1}$ ; n=0, 1, 2)이 존재한다. 이를 상 가운데 높은 전이온도를 나타낸 Bi2212상(n=1)과 Bi2223상(n=2)의 화학양론에 박막 조성을 고정하여 성막한 결과, 기판 온도 및 산화 가스압을 최적화함으로써 각 상의 단상막을 얻을 수 있었다. 그러나 박막조성을 Bi2212 또는 Bi2223으로 설정했음에도 불구하고, 어느 경우나 Bi2201, Bi2212 및 Bi2223상이 생성되었고 이들 안정상의 생성 영역은 기판 온도-산화 가스압의 Arrhenius 플롯에서 우측 하단 방향으로 경사진 직선으로 표시되어 매우 좁은 영역에 분포되어 있다. 또한, Bi2212 조성에서 Bi2212상의 생성 영역과, Bi2223 조성에서 Bi2223상의 생성 영역은 거의 일치하지만 이들의 생성 한계를 표시하는 직선의 기울기는 크게 다르다는 것을 알았다.

#### 감사의 글

본 연구는 산업자원부의 지역혁신 인력양성사업의 연구결과로 수행되었음.

#### 참고 문헌

- [1] Y. P. Park and J. U. Lee, "Characteristics of co-deposition for Bi-superconductor thin film using Ion Beam Sputtering method", J. of KIEEME, vol. 10, No. 5, p. 425, 1997.
- [2] R. S. Roth, C. J. Rawlins, B. P. Burton, and F. Beech, "Phase equilibria and crystal chemistry in portions of the system  $\text{SrO}-\text{CaO}-\text{Bi}_2\text{O}_3-\text{CuO}$ , Part II -the system  $\text{SrO}-\text{Bi}_2-\text{O}_3-\text{CuO}$ ", J. Res. Natl Inst. Stand. Technol. Vol. 95, No. 3, pp. 291-335, 1990.