

CVD법에 의한 Si(111) 기판에 YBaCuO계 초전도 박막의 제조

양 석 우 · 김 영 순 · 신 형 식

전북대학교 화학공학과

(1997년 1월 28일 접수, 1997년 7월 18일 채택)

Preparation of YBaCuO System Superconducting Thin Films on Si(111) substrates by Chemical Vapor Deposition

Suk-Woo Yang, Young-Soon Kim, and Hyung-Shik Shin

Department of Chemical Engineering, Chonbuk National University, Chonju 561-756, Korea

(Received January 28, 1997, Accepted July 18, 1997)

요 약 : 화학증착법을 통하여 650°C의 증착온도와 0.0126 Torr의 산소분압인 증착조건에서 원료물질로 β -diketonates 킬레이트 화합물을 사용하여 Si(111) 및 SrTiO₃(100) 기판에 YBa₂Cu₃O₇ 고온 초전도 박막을 제조하였다. SrTiO₃(100)기판에서 제조된 박막의 T_{c,onset}과 T_{c,0}는 각각 91 K와 87 K로 나타났다. 또한, Si(111)기판에서 제조된 박막의 T_{c,onset}은 91 K였지만 T_{c,0}는 액체질소 비등점(77.3 K)에서는 보이지 않았다. SrTiO₃(100)에 증착된 초전도 박막은 치밀하고 2차원적으로 배열된 미세구조를 갖고 있는 반면, Si(111)에 증착된 초전도 박막은 상대적으로 기공이 많으며 무질서한 미세구조를 형성하였다.

Abstract : Superconducting YBa₂Cu₃O₇ thin films were prepared at the deposition temperature of 650°C under oxygen partial pressure of 0.0126 Torr on Si(111) and SrTiO₃(100) substrates by chemical vapor deposition technique using β -diketonates of Y, Ba and Cu as source materials. The thin film fabricated on SrTiO₃(100) had a T_{c,onset} of 91 K and T_{c,0} of 87 K. The thin film prepared on Si(111) had a T_{c,onset} of 91 K but didn't have a T_{c,0} at liquid nitrogen boiling point(77.3 K). Dense and two-dimensionally well aligned microstructure was developed for the film deposited on SrTiO₃(100) substrate whereas a relatively porous and randomly distributed microstructure was developed for the film prepared on Si(111) substrate.

1. 서 론

최근 각광을 받고 있는 반도체 산업에 초전도체를 이용하려는 연구가 폭넓게 진행되고 있다. 특히, 초전도 박막은 NMR-CT, SQUID, IR sensor 및 supercomputer 등에 널리 응용될 수 있기 때문이다. 고온 초전도 박막을 microelectronics 분야에 응용하는 데 기판물질로서 Si를 사용하는 것은 매우 이상적이며, 또한 획기적인 효과를 가져오리라 기대된다. Si 기판에 직접 양질의 Y계(YBa₂Cu₃O₇) 고온 초전도 박막을 증착시키는 연구가 많은 연구자들[1-3]에 의해 수행되고 있으나 아직까지 만족할 만한 성과를 거두지 못하고 있다. 이러한 연구들은 sputtering, evaporation 및 laser ablation과 같은 물리증착(Physical Vapor Deposition; PVD) 방법에 국한되어 있는 실정이다. 본 연구팀은 이와 같은 PVD 공정에 비하여 조직이 치밀하고 기판과의 접착력이 우수하며 반응물들이 기체상태로

반응구역에 전달되기 때문에 복잡한 형태를 갖는 물질 위에 증착이 가능한 화학증착(Cheical Vapor Deposition; CVD)법으로 Si 기판에 Y계 고온 초전도 박막의 직접적인 제조를 시도하였다. 일반적으로 Y계 고온 초전도 박막 제조공정은 크게 PVD 공정과 CVD 공정으로 나눌 수 있다. PVD 공정을 통한 박막의 제조방법은 위에 언급한 electron beam evaporation, magnetron sputtering, ion beam deposition 및 molecular beam epitaxy 등이 있는데, 이와 같은 증착방법은 박막의 조성을 쉽게 조절할 수 있고, 좋은 제질의 박막을 얻을 수 있는 장점을 가지고 있는 반면, 증착반응 과정에서 고진공이 요구되며 장치비가 많이 들고 복잡할 뿐만 아니라 증착속도가 낮고 증착면적이 작기 때문에 큰 규모의 공정에 적합하지 않은 단점을 가지고 있다. 이에 비하여 CVD법은 PVD 공정에 비하여 장치비가 적게 들고 대규모 공정으로의 scale-up이 쉽기 때문에 대량생산이 가능할 뿐만 아니라, 고순도의 박막을 얻을 수

있는 장점을 가지고 있다.

Berry 등[4]이 1988년 CVD법으로 β -diketone 킬레이트 화합물[5-7]을 원료물질로하여 MgO 기판에 증착온도 920°C에서 임계온도(T_c)가 20 K인 Y계 초전도 박막을 처음으로 제조한 이래, 연구자들은 증착온도를 낮추고, 임계온도 및 임계전류밀도를 높이는 방향으로 연구가 진행되어 왔다.

Y계 고온 초전도 박막을 직접 Si 기판 위에 증착시키는 경우 가장 큰 문제점[8]으로 세가지의 들 수 있다. 첫째, Si 기판에 Y, Ba 및 Cu 등의 원료물질이 반응 확산되어 초전도성을 저하시키며, 둘째, SrTiO₃, MgO 및 YSZ 등의 세라믹 기판은 Table 1[9]에 보인 바와 같이 열팽창계수(thermal expansion coefficient)가 Y계 고온 초전도 박막과 비슷하여 열팽창과 수축에 따른 영향을 적게 받지만 Si 기판은 Y계 고온 초전도 박막보다 열팽창계수가 작아 수축시 박막에 tensile stress가 걸려 crack이 발생하는 요인으로 작용한다. 셋째, Si 기판과 Y계 고온 초전도 박막간의 lattice mismatch를 들 수 있다.

위와 같은 문제점들을 해결하기 위한 방법[8]으로 첫째, Y계 초전도 박막을 저온에서 증착하는 방법이고 둘째, buffer layer를 도입하는 방법이며, 셋째, 초전도 박막을 후막으로 제조하는 것이다. 본 연구팀은 이 중 가장 근본적인 해결책이라 여겨지는 저온 증착에 주안점을 두어 연구를 수행하였다. 원료물질과 Si 기판 간의 반응 확산과 열팽창계수에 따른 crack 등의 문제점은 증착온도를 낮춘다면 상호반응성과 열팽창 및 수축에 따른 영향을 적게 받아 초전도 특성이 상당히 개선될 것으로 여겨진다.

따라서 본 연구는 먼저 기존의 증착온도보다 저온에서 Y계 고온 초전도 박막을 세라믹(MgO(100), SrTiO₃(100))기판에 증착시킨 후 이를 바탕으로 Si(111) 기판에 Y계 고온 초전도 박막을 제조하였다. 제조한 시편에 대하여 전기저항 측정과 X-ray 회절분석 및 전자현미경 등의 분석장비로 Y계 초전도 박막의 전기적 성질과 결정구조 및 미세조직을 각각 관찰하였다.

2. 이론적 배경

2.1. Y계 초전도 박막 제조시 증착온도와 산소분압간의 열역학적 관계

Hammond 등[10]은 Y계 초전도 박막에 대해 전기화학적 방법을 통하여, 증착온도(deposition temperature; T_d)와 산소분압간에 밀접한 열역학적 관계가 있음을 보였다. Fig. 1은 여러 방법으로 제조한 Y계 초전도 박막에 대하여, 증착온도와 산소분압간의 열역학적 관계를 보이고 있으며, 증착온도를 낮추려면 산소분압이 낮아야 함을 알 수 있다. 여기에서 전기적성질(T_c 및 J_c)이 우수한 초전도 박막은 열역학적 안정선에 매우 가까이 존재하는 것을 알 수 있고, Y₁Ba₂Cu₃O₇의 박막이 $y=6$ 을 기준하여 Y₂BaCuO₅, BaCuO₂ 및 Cu₂O로 분해되는 영역과 정방정계 구조(tetragonal structure)를 형성하는 영역으로 나누어지는 것을 보이고 있다. $y=6.5$ 일 때 정방정계 구조에서 사방정계 구조(orthorhombic structure)로 상전이 되고, $y=6.9$ 일 때 $T_{c,0}$ 는 90 K의 고온 초전도 박막이 얻어지는 것을 나타내고 있다. 이와 같이 Y계 초전도 박막의 산소 함유량이 초전도 전기적 성질에 큰 영향을 미치므로 Y계 초전도 박막을 제

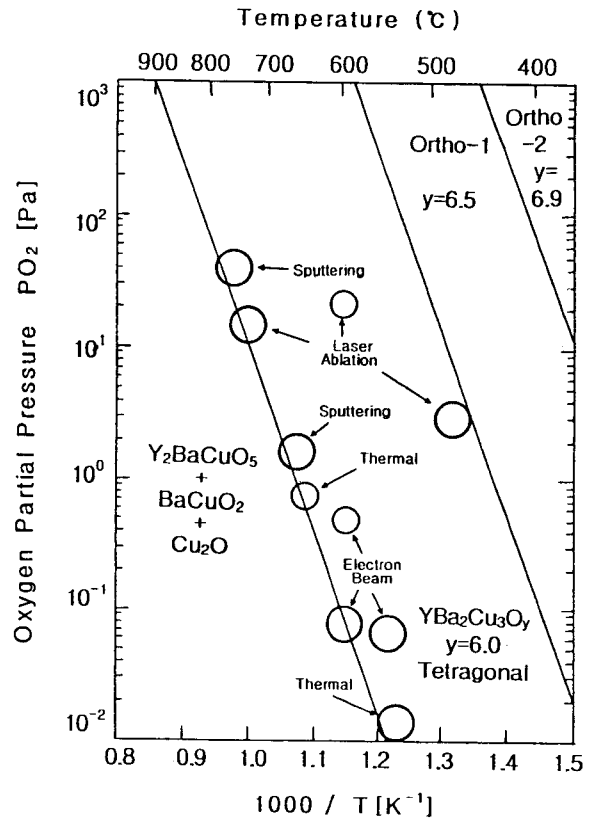


Fig. 1. Plot of oxygen partial pressure vs. deposition temperature showing the critical stability line for YBCO [Ref. 10].

Table 1. Parameters of YBCO and Selected Dielectrics[Ref. 9].

Material	Structure	Lattice constant (Å)	Thermal expansion coefficient (10 ⁻⁶ /°C)
YBCO	orthorhombic	a = 3.83 b = 3.89 c = 11.7	8.5
SrTiO ₃	cubic	3.905	9.4
MgO	cubic	4.213	14
YSZ	cubic	5.147	11
LaAlO ₃	f.c.	7.580	9.8
LaGaO ₃	rhomboidal	a 90° 5'	9
	pseudocubic	a = 3.888	
		b = 3.884 c = 3.888	
NdGaO ₃	orthorhombic	a = 5.428	a : 12
		b = 5.493	b : 7
		c = 7.729	c : 6
CeO ₂	cubic	5.411	9.5

조하는 공정에서 산소함량을 결정짓는 여러 변수의 선택이 매우 중요함을 알 수 있다.

Kanehori 등[11]은 SrTiO₃(100) 기판으로 700°C의 증착온도에서 산소분압을 4.15 Torr에서 0.6 Torr로 낮추며 실험한 결과

열역학적 안정선에 접근하면서 점차 양호한 초전도의 전기적 특성이 나타남을 보여주고 있으며, Yamane 등[12]도 SrTiO₃(100) 기판을 사용하여 650°C의 증착온도와 0.036 Torr의 산소 분압의 증착조건에서 Y계 고온 초전도 박막을 열역학적 안정선에 접근시켜 제조하였을 때, 전기적 특성(T_c = 85 K)이 800°C 이상의 증착온도에서 제조한 박막과 유사한 결과를 얻었다.

2.2. 화학증착 반응

일반적인 화학증착 반응은 고온 분위기의 반응구역으로 반응물을 기체상태로 보내어 기판 위에서 화학반응을 일으켜 고체상태의 증착층을 얻는 방법이다. 이러한 화학증착 반응은 반응물들이 기체상태에서 화학반응을 일으켜 그 생성물이 기판 위에 증착하는 균일반응(homogeneous reaction)과 반응기체가 기판 표면에 흡착된 후, 흡착된 반응물들이 화학반응을 일으켜 생성물이 증착하는 불균일반응(heterogeneous reaction)으로 구분된다. 균일반응은 불균일반응에 비해 반응속도가 매우 느리고 기판과 증착층 간의 결합력도 좋지 않으므로 박막 제조를 위해서는 이 반응을 피해야 한다. 그러나 불균일반응의 경우에는 반응기체가 기판 표면에 흡착된 후, 기판 표면에서 화학반응을 일으키므로 기판과 증착층간의 결합력이 좋게 되어 바람직한 증착반응이라 할 수 있다. 이와 같은 불균일반응의 경우 생성물이 증착되기까지 여러 단계를 거치게 되는데 각각의 단계는 다음과 같다.

- 1) 반응기체의 증착구역으로의 이동
- 2) 기판 표면으로 반응기체의 확산
- 3) 기판 표면에 반응기체의 흡착(adsorption)
- 4) 기판 표면에서 화학반응
- 5) 기판 표면에서 기체생성물의 탈착(desorption)
- 6) 기체생성물의 증착구역에서 밖으로 확산

위와 같은 전체의 과정중 화학증착 반응속도는 가장 느린 과정에 의해 지배를 받는다. 1), 2) 및 6) 과정이 전체 화학증착 반응속도를 지배할 때 이를 물질전달(mass transport)에 의해 지배를 받는다고 하며 3), 4) 및 5) 과정에 의해 지배를 받을 때를 표면반응(surface reaction)에 의해 지배를 받는다고 한다.

3. 실험 및 측정방법

3.1. 실험장치

본 연구에서 사용한 CVD 장치는 크게 원료 공급계, 증착계 및 배기계의 3부분으로 나눌 수 있다. 반응관은 석영으로 제작하였으며, 장치의 개략도를 Fig. 2에 나타내었다.

원료 공급계는 가스 실린더, MFC(mass flow controller), 원료물질을 담은 보우트(boat), 원료물질의 가열장치 및 tape heater 등으로 구성되며, 증발된 원료물질의 운반가스(carrier gas)로서 Ar과 반응가스로서 O₂를 각각 사용하였다. 가스들은 MFC에 의하여 그 유량이 조절되며, 각각의 원료물질은 비례온도 조절기를 사용하여 일정한 가열온도에서 자동적으로 조절이 되게 하였고 tape heater를 사용하여 증발된 원료물질이 기판(substrate)에 도달하기 전에 반응관 내벽에 달라 붙지 않

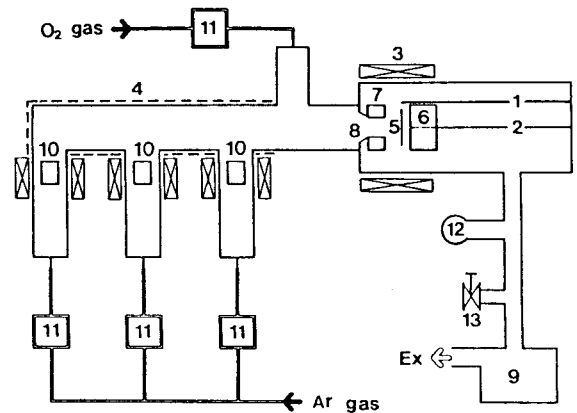


Fig. 2. Schematic diagram of Chemical Vapor Deposition System.

도록 하였다.

증착계는 화학증착 반응이 일어나는 부분으로서 기판을 지지하는 모재(susceptor) 및 열전대(thermocouple)로 이루어져 있으며, 기판은 가스 흐름방향과 수직으로 설치하였고, 기판의 온도는 비례온도 조절기로 원하는 증착온도에서 자동 조절이 되게 하였다. 또한 본 실험의 가장 중요한 변수인 기판온도를 정확히 측정하기 위하여 두 개의 열전대를 사용하였는데, 열전대(B)는 온도 조절용으로 모재 내에 설치하였고, 열전대(A)는 기판과 같은 위치에 설치함으로써 온도를 정확히 측정할 수 있도록 하였다.

배기계에서는 반응관 내의 압력을 Pirani Gauge로 측정하였고, 압력 조절밸브를 사용하여 반응관 내의 압력을 조절하였으며 저압을 유지하기 위하여 회전 진공펌프를 사용하였다.

3.2. 원료물질 및 기판준비

본 연구에서 사용한 원료물질은 무수물의 고체로서 비교적 낮은 온도에서 열적 안정성과 증발성이 있는 미국 Strem사의 Y(thd)₃, Ba(thd)₂ 및 Cu(thd)₂ (thd = 2,2,6,6-tetramethyl-3,5-heptanedione) β-diketone 킬레이트 화합물[5-7]을 사용하였으며, 사용한 기판은 MgO(100), SrTiO₃(100), 및 Si(111)을 사용하였다.

3.3. 실험방법

원료물질의 양을 정확히 칭량한 후 보우트에 담아 반응관 내의 정한 위치에 넣은 다음, 기판을 수직으로 모재에 고정시켜 반응관 내에 장입하였고 운반가스와 반응가스는 MFC를 이용하여 일정량 흐르게 한 뒤 기판부분을 가열하면서 회전 진공펌프를 작동시켜 반응관 내의 압력을 낮추었다. 그리고 압력 조절밸브를 사용하여 반응관 내의 압력을 일정하게 유지시켰다. 반응초기 시간은 기판이 원하는 증착온도에 도달한 후, 각각의 원료부분을 가열한 때로 정하였다. 40분 동안 증착시킨 후 원료 가열부분의 전원을 끄고 산소 분위기에서 증착부분의 온도를 증착온도로부터 500°C까지 5°C/min 속도로 냉각하였으며, 그후 500°C에서 5분간 유지한 후 300°C까지 서서히 냉각하였다. 냉각과정에서는 산소가스만을 300 ml/min으로 흐르게 하였다. Fig. 3은 증착과정을 나타낸 것이다.

4. 결과 및 고찰

4.1. 세라믹 기판에서의 YBaCuO계 초전도 박막의 증착

화학증착법으로 Si 기판에 직접 Y계 고온 초전도 박막을 제조하기 위해서 먼저 MgO(100)과 SrTiO₃(100)의 세라믹 기판으로 증착조건을 확립하였다. 일반적으로 세라믹 기판은 Y계 고온 초전도 박막과 900°C의 고온에서도 반응성이 없는 장점이 있는 반면 가공성면에서 취약한 단점을 가지고 있다. 본 연구에서는 증착온도를 650°C로 낮추어 Y계 고온 초전도 박막을 세라믹 기판에 증착하여 초전도 특성을 살펴보았으며, 이 때 전체압력과 산소분압이 각각 4 Torr와 0.0126 Torr였다.

Fig. 4는 세라믹 기판에 증착한 Y계 고온 초전도 박막의 온도-저항곡선을 보여주고 있다. 여기에서, $T_{c,0} \approx 87$ K로 기판에 따라 차이 없이 비슷한 저항값을 나타내었다. Fig. 5는 XRD 분석결과이며 모든 시편에서 preferred orientation을 갖는 초전도상 입자들이 성장한 것으로 판단된다. 즉, a축과 c축이 기판에 수직인 (h00) 및 (00l)의 방향성을 갖고 성장하였다. Fig. 6은 세라믹 기판에 제조된 Y계 고온 초전도 박막의 표면 미세구조 분석을 위한 SEM 사진들이다. 박막은 육안으로 살펴볼 때 거울같이 매끄러운 검정색이었다. (a)의 MgO(100) 기판에서 성장한 Y계 고온 초전도 박막의 미세구조는 1 μm 정도의 크기를 갖는 입자와 함께 다공성을 다소 포함한 미세구조를 갖고 있어 J_c 에 좋지 않은 영향을 주리라 사료된다. (b)의 SrTiO₃(100) 기판에서는 0.5 μm-0.8 μm의 크기를 갖는 입자가 규칙적으로 2차원적인 배열을 하고 있다.

4.2. Si(111) 기판에서 YBaCuO계 초전도 박막의 제조

4.2.1. 전기저항의 측정

세라믹 기판을 사용하여 Y계 고온 초전도 박막의 증착조건 ($T_d = 650^\circ\text{C}$, $P(\text{O}_2) = 0.0126$ Torr)을 확립한 후, Si 기판에 직접 Y계 초전도 박막을 제조하였다. Fig. 7은 Si(111)과 SrTiO₃(100)을 기판으로 사용하였을 때의 온도-저항곡선을 나타낸 것이다. 초전도체의 성질 중의 하나는 $T_{c,0}$ 이하에서 그 물질의

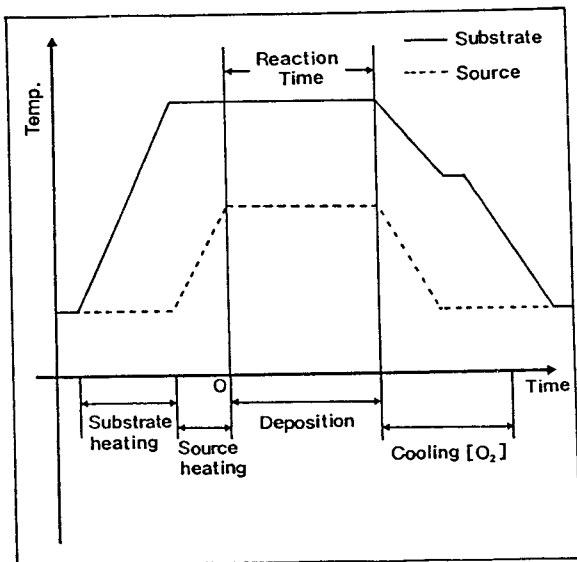


Fig. 3. Deposition procedure of YBaCuO thin film by CVD.

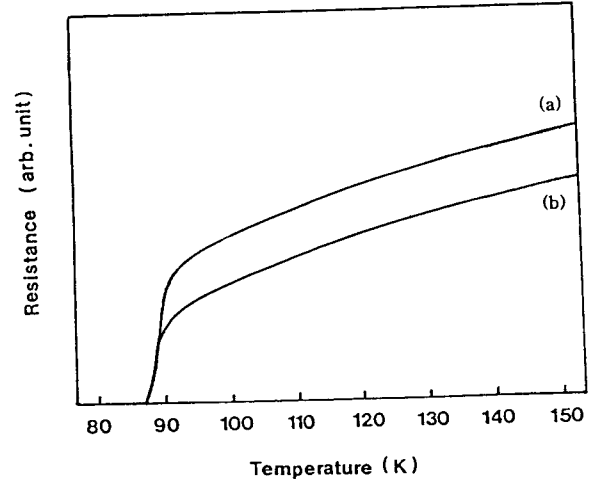


Fig. 4. Temperature vs. electrical resistance for the films prepared on substrates of (a) MgO(100) and (b) SrTiO₃(100) under $P(\text{O}_2) = 0.0126$ Torr at 650°C by CVD.

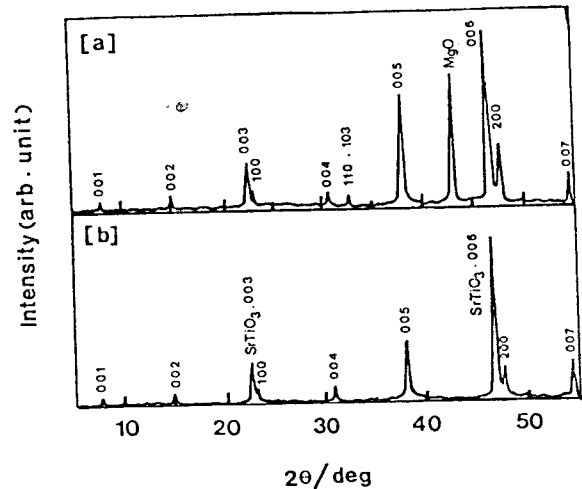


Fig. 5. X-ray diffraction patterns for the films prepared on substrates of (a) MgO(100) and (b) SrTiO₃(100) under $P(\text{O}_2) = 0.0126$ Torr at 650°C by CVD.

전기저항이 영이 되어 전기전도도가 무한대로 되는 것이다. 이를 확인하기 위하여 시편을 $T_{c,0}$ 보다 더 낮은 온도인 액체질소 비등점인 77 K까지 서서히 냉각시키면서 온도에 따른 전기저항을 측정하였다. 본 실험에서 제조한 시편은 silver-paste를 이용한 페인트 접착법을 사용하였으며, 측정부분에 온도센서를 설치하여 온도변화와 저항과의 관계를 AC-4단자법을 이용하여 박막의 전기저항을 측정하였다. 측정값의 저항이 급격히 떨어지기 시작하는 온도를 $T_{c,onset}$ 이라 하고 저항이 영으로 되는 온도를 $T_{c,0}$ 라 하며, $T_{c,onset} - T_{c,0}$ 를 전이온도 폭인 ΔT 라 한다. Si 기판과 SrTiO₃ 기판에 각각 증착한 초전도 박막은 $T_{c,onset}$ 이 91 K로 비슷하게 나타났지만 Si 기판에 증착한 초전도 박막의 $T_{c,0}$ 는 액체질소 온도(77 K) 이상에서는 보이지 않았다. 이는 650°C의 증착온도가 Si 기판에 Y계 고온 초전도 박막을 증착시키는 데 충분히 낮지 않다는 것을 보여주는 것이다. 따라서

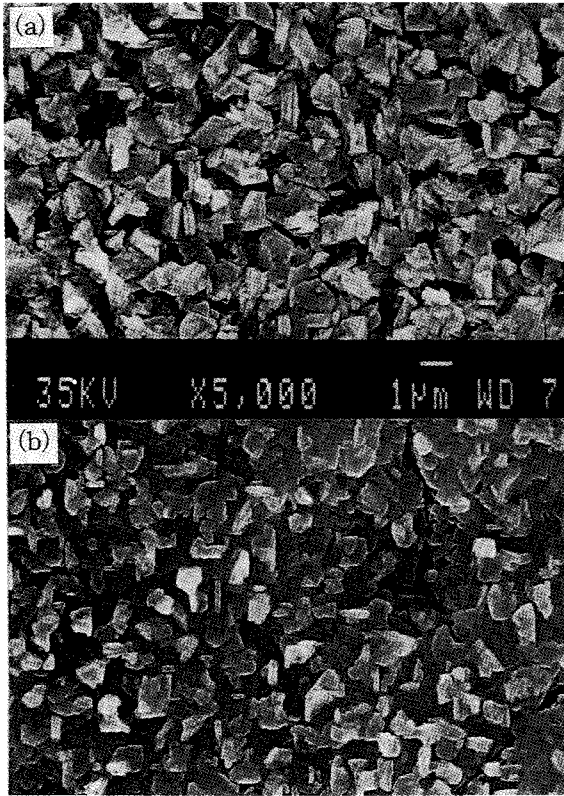


Fig. 6. Surface SEM micrographs for the films prepared on substrates of (a) MgO(100) and (b) SrTiO₃(100) under P(O₂) = 0.0126 Torr at 650°C by CVD.

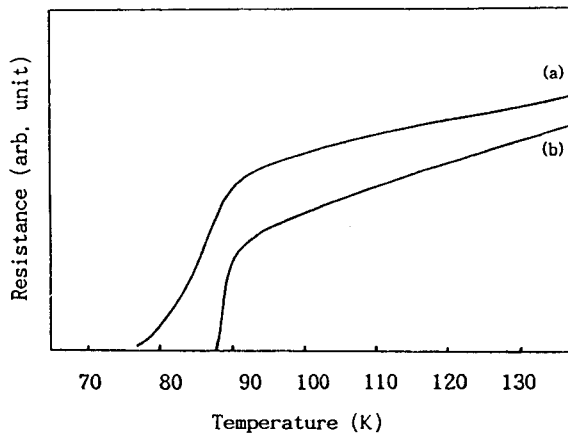


Fig. 7. Temperature vs. electrical resistance for the films prepared on substrates of (a) Si(111) and (b) SrTiO₃(100) under P(O₂) = 0.0126 Torr at 650°C by CVD.

증착온도를 더욱 낮추는 연구가 필요하리라 사료되며, 증착온도를 낮추어야 하는 이유로 Si 기판에 직접 Y계 고온 초전도 박막을 증착시킬 때, 증착온도가 낮으면 Y계 원료물질과 Si 기판 간의 반응, Y계 초전도 박막과 Si 기판의 열팽창계수가 다른점, 초전도 박막과 Si 기판 간의 lattice mismatch 등의 영향을 적게 받기 때문[8]이다. 또한 Hammond 등[10]이 열역학

적으로 연구한 바에 의하면 저온에서 YBaCuO계 고온 초전도 박막을 제조하기 위해서는 낮은 산소분압이 요구된다는 것이 밝혀졌다.

4.2.2. X-선 회절분석

Si 기판에 증착된 Y계 초전도 박막의 결정성을 알아보기 위하여 X-선 회절분석기를 사용하였는데, Cu(K α_1) target을 사용하였고 5°~55°의 구간을 2 θ 간격으로 회절선을 분석하였다. Fig. 8은 증착시간을 달리하면서 Si 기판에 Y계 초전도 박막을 제조하였을 때의 X-선 회절분석 그림이다. 시편 제조시 증착온도와 산소분압이 각각 650°C와 0.0126 Torr였다. (a)는 40분 동안 증착한 것이며, (b)는 2시간 동안 증착한 것이다. (a) 시편에서는 2 θ 가 약 15°일 때 Ba silicate peak, 28.4°와 47.3°에서 기판인 Si(111) peak이 나타났으며 YBa₂Cu₃O_y의 초전도상은 32.6°, 38.7° 및 40.3°에서 약하게 관찰되었다. 2 θ 가 약 15°에서 BaSiO₃, Ba₂SiO₄, BaSi₂O₇, Ba₂Si₃O₈ 및 BaSi₅O₁₃ 등의 Ba silicate 등이 보이는 것으로 보아 이러한 증착조건에서는 Ba과 Si 간에 반응성이 있는 것으로 보인다. 2시간 동안 증착시킨 (b)는 초전도상의 주 peak인 110, 103 peak이 32.6°에서 기판인 Si(111) peak보다 intensity가 더 높게 나타났고 22.8°, 38.7°, 40.3° 및 46.7°에서도 초전도 peak이 보였지만 전체적으로 방향성이 random하게 나타났다. 이렇게 Si 기판에 증착된 Y계 고온 초전도 박막의 방향성이 증착시간의 길고 짧음에 관계없이 random하게 나타나는 것은 증착온도가 높은 것에 따른 Si 기판과 초전도 박막 간의 반응, 열팽창계수와 격자상수의 차이 때문인 것으로 판단된다. 또한 증착시간을 2시간으로 길게 하였을 때, Ba silicate가 사라지는 것은 thick film으로 제조하는 경우인데, 증착시간을 길게 하면 Y계 원료분말 특히, 반응성이 높은 Ba과 Si 간에 충분히 반응을 하고 난 후 증착되는 것으로

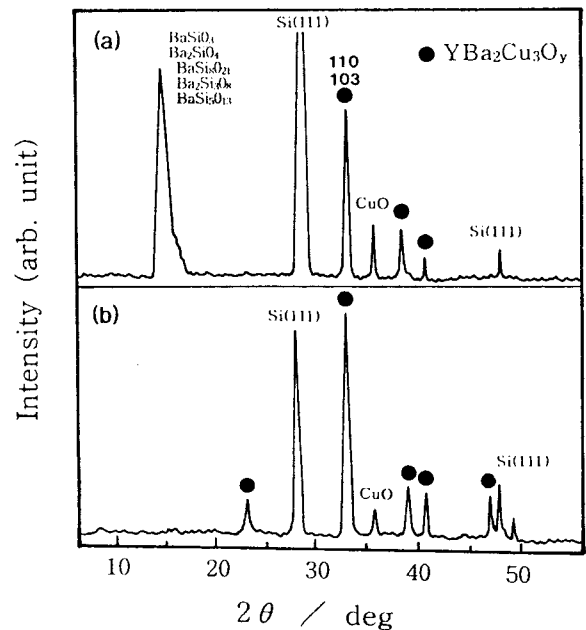


Fig. 8. X-ray diffraction patterns for the films prepared on Si(111) substrate for (a) 40 min and (b) 2 h under P(O₂) = 0.0126 Torr at 650°C by CVD.

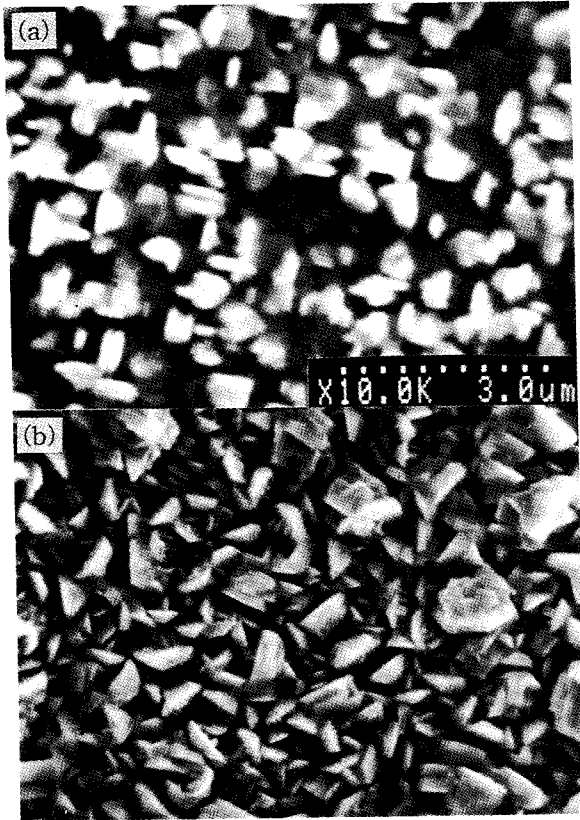


Fig. 9. Surface SEM micrographs for the films prepared on substrates of (a) SrTiO₃(100) (b) Si(111) and under P(O₂) = 0.0126 Torr at 650°C by CVD.

로 생각할 수 있다. 따라서 증착시간을 길게 하였을 때, Si와 Y계 초전도 박막간의 반응성에 대한 문제점을 해결하는 것 중의 하나인 후막으로 제조하는 방법이지만, 실제적으로 micro-electronics에서 etching을 해야 하는 경우 근본적인 문제점에 봉착할 가능성도 배제할 수 없다. 한편, Fig. 5와 Fig 8에 나타난 X-선 회절 peak의 경향이 다른 것은 YBaCuO 고온 초전도 박막이 증착하게 될 기판의 특성이 매우 다르기 때문이다. Fig. 5에서 사용된 세라믹 단결정 기판(MgO, SrTiO₃)은 가공성은 매우 어려우나 Y계 고온 초전도 박막과 거의 반응성이 없고 Fig. 8에서 사용된 Si 기판은 Y계 초전도 박막과 반응성이 클 뿐만 아니라 초전도 박막과의 열팽창계수와 격자상수의 차가 크므로 세라믹 단결정 기판처럼 epitaxy 성장이 어려운 것으로 판단된다[13].

4.2.3. 미세조직의 관찰

Fig. 9는 각각 Si 기판과 SrTiO₃ 기판에 증착한 Y계 초전도 박막의 전자현미경 사진이다. (a)는 SrTiO₃(100) 기판에 증착한 초전도 박막의 미세조직으로 0.5μm~0.8μm 크기의 입자가 규칙적인 2차원적 배열을 하고 있다. (b)는 Si 기판에 증착한 초전도 박막으로 입자는 무질서하며 불규칙적인 모양을 띠고 있다. 또한 40분의 증착시간 동안 Si 기판에서 성장한 Y계 초전도 박막의 두께는 1.5μm로 일정하게 성장한 것으로 나타났다.

5. 결 론

본 연구에서는 β-diketone 킬레이트 화합물을 원료물질로 사용하여 먼저 세라믹 기판에서 Y계 고온 초전도 박막의 증착 조건을 확립한 후, Si 기판에 직접 Y계 초전도 박막을 제조하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

- 1) 본 연구팀이 보유한 CVD 장치로 650°C와 0.0126 Torr의 제조조건에서 MgO 기판과 SrTiO₃ 기판을 사용하여 T_{C0}가 87 K이고 a축과 c축으로 방향성을 갖는 Y계 고온 초전도 박막을 제조하였다.
- 2) 세라믹 기판에서 확립된 증착조건으로 Si 기판에 Y계 초전도 박막을 제조한 결과 T_{C,onset}은 91 K로 나타났지만 T_{C0}는 액체질소 비등점에서는 나타나지 않았다.
- 3) 증착시간을 늘려 Si 기판에 Y계 초전도 박막을 제조했을 때 Ba silicate가 사라졌다.
- 4) Si 기판에 증착한 Y계 초전도 박막의 미세구조는 무질서하며 불규칙한 모양을 띠고 있다.

감 사

이 논문은 1995년도 교육부 학술연구조성비(신소재분야)에 의하여 연구되었으며, 이에 감사드립니다.

참 고 문 헌

1. T. Venkatesan, E. W. Chase, X. D. Wu, A. Inam, C. C. Chang and F. K. Shokoohi, *Appl. Phys. Lett.*, **53**, 243(1988).
2. R. M. Silver, A. B. Berezin, M. Wendman and A. L. de Lozanne, *Appl. Phys. Lett.*, **52**, 2174(1988).
3. G. Koren, E. Polturak, B. Fisher, D. Cohen and G. Kimel, *Appl. Phys. Lett.*, **53**, 2330(1988).
4. A. D. Berry, D. K. Gaskill, R. T. Holm, E. J. Cukauskas, R. Kaplan, and R. L. Henry, *Appl. Phys. Lett.*, **52**, 1743(1988).
5. K. J. Eisentraut and R. E. Sievers, *J. inorg. nucl. Chem.*, **29**, 1931(1967).
6. J. E. Schwarberg, R. E. Sievers and R. W. Moshier, *Analytical Chemistry*, **42**, 1828(1970).
7. R. Belcher, K. Blessel, T. Cardwell, M. Pravica, W. I. Stephen and P. C. Uden, *J. inorg. nucl. Chem.*, **35**, 1127(1973).
8. A. Mogro-Campero, *Supercond. Sci. Technol.*, **3**, 155(1990).
9. F. C. Wellstood, J. J. Kingston and John Clarke, *J. Appl. Phys.*, **75**, 683(1994).
10. R. H. Hammond and R. Bormann, *Physica C*, **162-164**, 703 (1989).
11. K. Kanehori, N. Sughi, T. Fukazawa and K. Miyauchi, *Thin Solid Films*, **182**, 265(1989).
12. H. Yamane, M. Hasei, H. Kurosawa and T. Hirai, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **30**, L1003(1991).
13. G. H. Kim, D. S. Park, Y. B. Kwon, D. Y. Kim and S. M. Jeong, *Korean Applied Physics*, **3**, 542(1990).