

할로우 캐소드 방전 스퍼터링 시스템을 이용한 대면적 YBa₂Cu₃O_{7-x} 박막 성장

서정대, 강광용, 관민환*
 한국전자통신연구원, *경상대학교, 전기공학과

Growth of Large Area YBa₂Cu₃O_{7-x} Thin Films
 by Hollow Cathode Discharge Sputtering System

Jeong-Dae Suh, Kwang Yong Kang, and *Min-Hwan Kwak
 Electronics and Telecommunications Research Institute,
 *Department of Electrical Eng. Gyeongsang

Abstract-Superconducting YBa₂Cu₃O_{7-x} (YBCO) thin films were deposited on MgO(100) substrates using a hollow cathode discharge sputtering system. Influence of the sputtering conditions such as substrate temperature and discharge sputtering gas pressure on electrical and structural properties were investigated. It was found that YBCO thin films with zero resistance temperature higher than 85 K were obtained at the pressure 200 mTorr (Ar/O₂=0.9), substrate temperature of 760 °C, and target-substrate distance of 10 mm during film deposition. Homogeneous large area YBCO films with 2 inch diameter were also successfully fabricated by this method.

1. 서 론

YBCO 고온초전도 박막은 매우 낮은 마이크로파 표면저항 값을 가지며, 높은 품질계수를 갖는 장점이 있기 때문에, 마이크로파 통신부품 소자구현에 적합한 물질로 생각되고 있다[1]. 이러한 YBCO 고온초전도 박막을 사용하여 마이크로파 소자를 구현하기 위해서는 마이크로파 소자 구조를 설계할 수 있는 2인치 크기 직경을 갖는 대면적 박막의 성장이 필수적이다. 그런데 대면적 박막성장에 있어서 최대의 문제점은 박막전체의 특성이 균질하여야 하는 점이다. 그동안 대면적 고온초전도 박막성장을 위하여 펄스레이저 증착법과 off-axis 스퍼터링 증착법이 많이 사용되어 왔다[2-4]. 펄스레이저 증착법에서는 레이저 빔에 의한 타겟표면의 증발영역이 매우 협소하여 플라즈마(플룸)의 크기가 작기 때문에 대면적 박막을 증착하기 위해서는 플라즈마를 기판에 수직으로 스캔(scan)하는 방법으로 대면적 고온초전도 박막을 성장하였다. 그러

나 이러한 방법으로 성장한 대면적 박막은 균질도가 낮은 단점이 있다. 이에 반하여 off-axis 스퍼터링 증착법을 사용하는 경우에는 플라즈마의 크기가 충분히 크기때문에 대면적 박막 전체의 균질도는 높지만 타겟과 기판이 수직하게 배치되어 있어서 증착속도가 매우 느린 단점이 있다.

본 연구에서는 이러한 대면적 박막성장의 문제점을 해결하기 위하여 할로우 캐소드(hollow cathode)을 이용한 스퍼터링 증착법으로 대면적 고온초전도 박막을 성장하였다. 그림 1.에 본 연구에서 사용한 할로우 캐소드 스퍼터링 시스템의 핵심요소인 스퍼터링 건(sputtering gun)의 구조를 개략적으로 나타내었다. 이 증착방법에서는 원통형 캐소드 안에서 전자가 진동되므로 캐소드 타겟표면에서 스퍼터링 되는 물질의 양이 일반 스퍼터링 증착법에 비하여 크며, 스퍼터링된 물질이 아르곤 가스에 의해 기판쪽으로 운반되므로 증착속도가 큰 장점이 있다. 또한 플리즈마가 스퍼터링 타겟의 직경에 의존하므로 충분히 큰 플라즈마를 형성할 수 있기 때문에 균질한 대면적박막을 제조할 수 있는 특징이 있다[5].

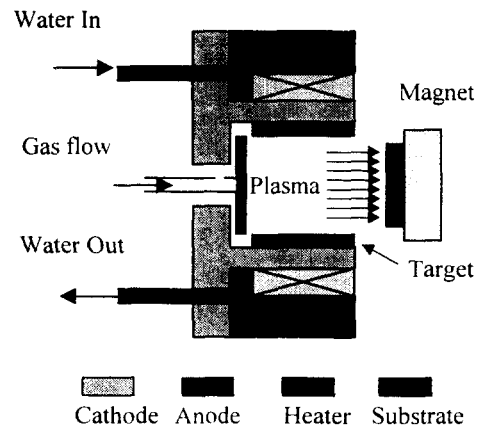


Fig. 1. Schematics of hollow cathode discharge sputtering gun.

본 연구에서는 이러한 장점을 갖는 할로우 캐소드 방전 시스템을 사용하여 증착변수가 YBCO 고온초전도 박막의 성장에 미치는 영향을 규명하여 YBCO 박막의 최적 성장 조건을 확립하고자 하였으며, 또한 이러한 최적증착조건을 이용하여 지름이 2인치 크기를 갖는 균질한 대면적 YBCO 박막을 제조하고자 하였다.

2. 실험방법

YBCO 박막은 할로우 캐소드 방전시스템을 사용하여 스퍼터링 증착법으로 제조하였다. 스퍼터링 타겟은 지름이 9 cm 인 속이 빈 원통형 소결체 타겟을 사용하였다. YBCO 박막을 증착하기 위하여 MgO(100) 배향성을 갖는 단결정 기판을 720-800 °C의 온도 영역으로 가열한 후 200 mTorr 의 스퍼터링 압력조건하에서 90-180 Watt의 스퍼터링 전력을 인가하여 2 시간동안 증착하여 성장하였다. YBCO 박막을 증착한 후 기판의 온도를 550 °C로 냉각하고 760 Torr의 산소 분위기에서 30분간 유지하여 열처리 한 후 상온으로 서냉하였다. YBCO 박막성장의 상세한 증착조건을 Table.I에 나타내었다.

증착된 YBCO 박막의 두께는 a-step profilometer를 사용하여 분석하였고, 전기적 특성은 4단자법을 사용하여 측정하였다. YBCO 박막의 결정성은 X-선 회절분석법을 사용하여 분석하였으며, 미세구조는 주사전자현미경을 사용하여 관찰하였다.

대면적 YBCO 박막을 성장하기 위하여 먼저 할로우 캐소드 방전 스퍼터링 증착변수의 영향을 고찰 한 후, 최적의 증착변수를 선택하였으며, 이 성장조건에서 지름이 2 인치 크기의 MgO (100) 단결정 박막을 사용하여 대면적 YBCO 박막을 성장하였다.

Table I. Experimental conditions.

Target	Ceramic $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$
Substrate	MgO (100) Single Crystal
Substrate Size	5×5mm, 2inch diameter
Total Pressure	200 mTorr
Gas Mixture Ratio	Ar/O ₂ =0.5 to 7.2
Sputtering Power	90 to 180 Watt
Deposition Temperature	720 to 800 °C
Substrate to Target Distance	10 to 20 mm
Annealing Temperature	550 °C
Deposition Time	120 min

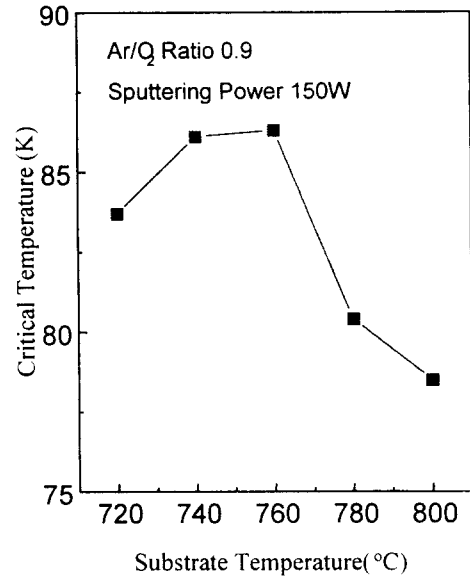


Fig.2. Dependence of zero resistance temperature of YBCO thin films on substrate temperatures.

3. 결과 및 고찰

3.1. 할로우 캐소드 스퍼터링 증착법을 이용한 YBCO 박막의 최적 성장조건 규명.

Fig. 2에 기판온도에 따른 YBCO 박막의 영저항 온도변화를 나타내었다. 스퍼터링 증착 압력은 200 mTorr (Ar/O₂=0.9)로 고정하였

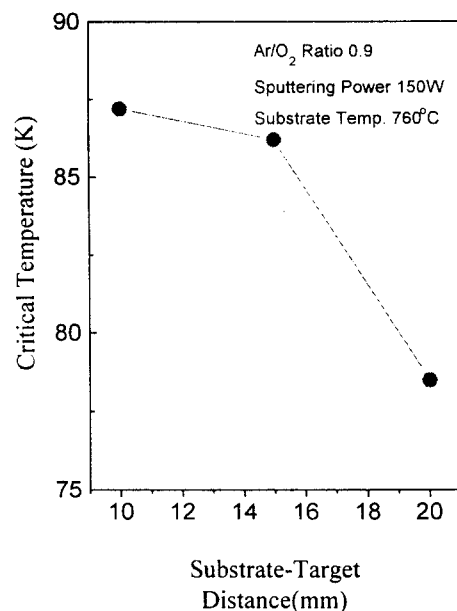


Fig. 3. Dependence of zero resistance temperature of YBCO thin films on the target-substrate distance.

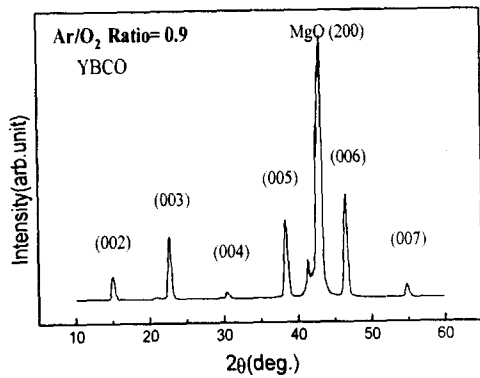


Fig.4. X-ray diffraction analysis on a YBCO thin film grown under the conditions of 760°C substrate temperature and 200 mTorr (Ar/O₂=0.9) sputtering pressure, and 10 mm target-substrate distance.

다. Fig.2 에서 보듯이 증착온도가 720 °C 에서 760 °C로 증가함에 따라 영저항 온도는 83 K에서 86 K로 증가하였으나 760 °C 이상의 온도에서 증착한 YBCO 박막의 영저항온도는 감소되었다. 이러한 이유는 기판의 온도가 너무 낮으면 YBCO 박막의 결정성이 좋지 않고, 너무 높으면 YBCO 결정상이 분해되기 때문인 것으로 생각된다. 이러한 실험결과로부터 760 °C 의 기판온도가 최적의 YBCO 박막성장온도임을 확인할 수 있었다. 기판과 타겟간의 거리가 YBCO 박막의 영저항 온도에 미치는 영향을 Fig. 3에 나타내었다. 기판의 온도는 760 °C, 스퍼터링 압력은 200 mTorr 그리고 스퍼터링 가스조성비는 0.9로 고정하였으며 스퍼터링 전력은 150 W을 인가하여 박막을 성장하였다. 기판의 거리가 타겟으로 멀어 짐에 따라 박막의 영저항 온도는 감소되었다. 이것은 기판의 거리가 타겟으로부터 멀어 짐에 따라 박막의 두께가 얇아져 박막에 응력이 발생하기 때문으로 생각 할 수 있다. 이상의 결과로부터 최적 조건에서 성장한 YBCO 박막의 X-선 회절분석 결과를 Fig. 4에 나타내었다. Fig. 4에서 보듯이 YBCO 박막피크는 (00L)(L=2,3,...정수) 회절피크만 나타 내었다. 이것은 YBCO 결정의 c-축면이 기판에 수직으로 배향되어 성장하였음을 의미한다. 따라서 YBCO박막은 c-축배향성으로 성장하였음을 알 수 있다.

3.2. 할로우 캐소드 스퍼터링 증착법을 이용한 대면적 YBCO 박막의 성장.

이상의 실험 결과를 바탕으로 지름이 2 인치

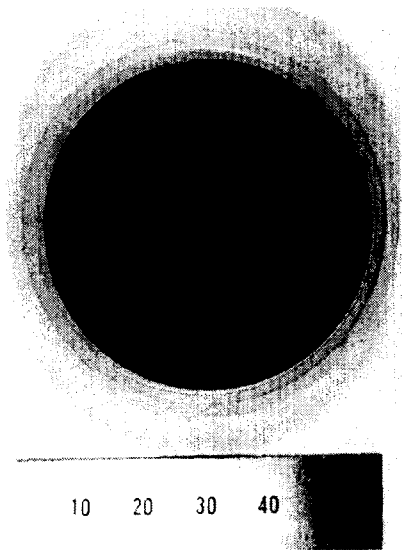


Fig. 5. Large area YBCO thin film with a diameter of 2 inch deposited by hollow cathode discharge sputtering.

크기를 갖는 MgO(100) 단결정 기판을 사용하여 대면적 YBCO 박막을 성장하였다(Fig. 5). 대면적 YBCO박막의 균질도 분석하기 위하여 영저항 온도분포를 측정하였으며 이 결과를 Fig. 6에 나타내었다. 2인치 대면적 박막의 중심부위의 영저항 온도는 85 K를 나타내었고, 가장자리 부위의 영저항 온도는 82 K을 나타내어 비교적 균일한 특성을 가진 대면적 박막이 성장하였음을 확인하였다. 2인치 대면적 YBCO 박막의 결정성을 X-선 회절 분석으로 확인 한 결과 모두 c-축 배향으로 잘 성장 하였음을 알 수 있었고, 박막의 두께분포를 a-step profilometer를 사용하여 분석한 결과 150 nm 두께에서 10 %내의 균일한 두께를 나타내었다.

4. 결 론

할로우 캐소드 방전 스퍼터링 시스템을 사용하여 증착변수에 따른 YBCO 박막의 전기적, 구조적 특성을 고찰하였고 대면적 박막을 성장하였다. YBCO 박막의 최적 성장조건은 760 °C의 증착온도와, 200 mTorr(Ar/O₂=0.9)의 증착압력, 그리고 10 mm의 기판-타겟 거리로 규명되었고, 이 조건에서 성장한 YBCO 박막은 c-축 배향 성장과 86 K의 영저항 온도를 나타내었다. 이 증착조건을 사용하여 지름이 2인치 크기인 균질한 특성을 갖는 대면적 YBCO 박막을 성장할 수 있었으며, 이러한 결과는 대면적 박막 성장에서 가장 중요한 문제점인 균질한 특성을 갖는 대면적 박막성장에 할로우 캐소드 방전 스퍼터링 증착법이 효율적임을 입증한 것으로 생각된다.

(참 고 문 헌)

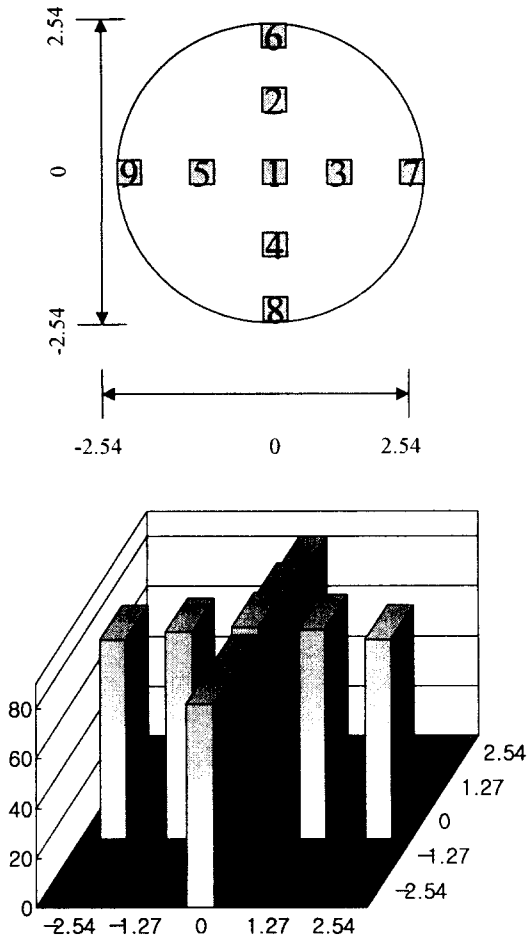


Fig.6. Critical temperature profile of large area YBCO thin film with 2 inch diameter grown by hollow cathode sputtering.

- (1) J. M. Pond, K. R. Carroll, D. B. Chrisey, J. S. Horwitz, and V. C. Cestone, "A Nobel Microstrip Compatible Technique for Depositing $YBa_2Cu_3O_{7-d}$ on Both Surfaces of a Substrate", IEEE Trans. Appl. Supercon., Vol. 3(1), 1711 (1993).
- (2) J. A. Greea and M. D. Tabat, "Large-area Pulsed Laser Deposition: Techniques and Applications", J. Vac. Sci. Technol. A 13(3), 1175 (1995).
- (3) M. Lorenz, H. Hochmuth, H. Borner, and D. Natusch, "Large Area Pulsed Laser Deposition of YBCO Thin Films on 3-inch Wafers", Physica C 235-240, 639 (1994).
- (4) R. A. Rao, Q. Gan, C. B. Eom, Y. Suzuki, A. A. McDaniel, and J. W. P. Hsu, "Uniform Deposition of $YBa_2Cu_3O_7$ Thin Films Over an 8 Inch Diameter Area by a 90° Off-axis Sputtering Technique", Appl. Phys. Lett., Vol. 69(25), 3911 (1996).
- (5) H. Koch, L. J. Friedrich, V. Hinkel, F. Ludwig, B. Politt, and T. Schurig, "Hollow Cathode Discharge Sputtering Device for Uniform Large Area Thin Film Deposition", J. Vac. Sci. Technol. Vol. A9 (4), 2374 (1991).