

## Deposition of YBCO and STO/YBCO thin films using ArF PLD system

### ArF PLD System을 사용한 YBCO 박막과 STO/YBCO 박막의 제작

Tae-Bong JUNG, Ju-Euk JANG, and Joonhee Kang  
정태봉, 장주억, 강준희

Department of Physics of University of Incheon, Incheon 402-749, Korea

인천광역시 남구 도화동 인천대학교 물리학과, 402-749

Instead of using KrF excimer lasers ( $\lambda = 248$  nm) in depositing oxide thin films, as in the most of the laboratories in Korea, we have used an ArF excimer laser ( $\lambda = 197$  nm) which has a shorter wavelength. By using a beam which has a shorter wavelength, we could obtain higher quality and smoother surface YBCO thin films. We fabricated YBCO thin films with the various substrate temperature conditions and analyzed the characteristics of these films. We also studied the characteristics of the films fabricated under the various conditions of the power of laser and the oxygen pressure. The characterization tools used in this work were a transport measurement setup, an XRD, and a SEM. We also fabricated STO/YBCO multilayers to use in SFQ devices fabrication. XRD patterns of the multilayers showed that the multilayer films were grown epitaxially.

#### 1. 서론(Introduction)

고온초전도체의 발견이후 전자회로에의 응용을 위하여 양질의 박막을 제작하기 위한 노력이 경주되어 왔다. 고온초전도체 박막의 제작에 있어서 사용되는 여러 가지의 방법 중 Pulsed Laser를 사용하여 제작하는 방법이 가장 보편적으로 사용되고 있다. 현재 국내에서  $YBa_2Cu_3O_{7-x}$  (YBCO) 박막을 제작하기 위하여 사용되는 Pulsed Laser Deposition (PLD) system에는 일반적으로 KrF excimer laser가 사용되고 있다. PLD System을 사용하여 YBCO 박막을 제작할 때 파장이 짧을수록 표면상태가 좋아지는 경향이 있다는 연구 결과가 발표된 바 있으며, 이에 따라 본 연구에서는 KrF excimer laser ( $\lambda = 248$  nm)보다 파장이 짧은 ArF excimer laser ( $\lambda = 197$  nm)를 사용하여 YBCO 박막을 제작함으로써 임계온도  $T_c$ 가 높으면서도 표면의 상태가 균일한 고온 초전도 박막을 제작하고자 하였다.

PLD System을 사용하여 양질의 YBCO 박막을 제작하고자 할 경우 제작된 박막의 특성의 변화를 가져오는 중요한 변수로는 target과 기판사이의 거리와 target에 입사되는 Laser beam의 에너지밀도, [1] 박막 증착시의 chamber안의 산소분압, [2] 그리고 기판의 온도 등이 있다.

기판의 온도를  $750$  °C ~  $800$  °C의 높은 온도와 낮은 산소분압을 사용할 경우 제작된 YBCO 박막이 c축으로 성장하는 경향이 있으며, [3] 이 경우 임계온도  $T_c$ 는 높으나 표면이 거칠어 다층 박막의 제작에는 사용하기가 어려운 점이 있다.  $600$  °C ~  $650$  °C의 낮은 온도와 높은 산소분압에서 제작할 경우 제작된 YBCO 박막의 결정 성장 축이 a축을 갖는 경향이 있다. [4] 이 경우 결정의 성장이 잘 이루어져 표면은 균일하지만 상대적으로 임계온도  $T_c$ 가 낮은 것이 소자의 제작에 있어서의 단점으로 지적되고 있다.

이러한 문제를 해결하기 위하여 전 세계적으로 다양한 연구가 수행되어 왔으며, 본 연구에서는

Laser beam의 에너지 밀도와 기판의 온도에 따른 박막의 특성을 자세히 연구하고자 하였다.

본 연구에서는 특히 Laser source로부터 target에 이르는 구간 사이에서의 Laser beam의 에너지 손실을 최소로 함으로서 실험 조건의 재현성을 유지하면서 Laser 에너지밀도에 따른 임계온도  $T_c$ 의 분포와 산소압에 따른  $T_c$ 의 분포 및 표면의 균질성을 조사하였다. 또한, 고온 초전도체를 사용한 전자회로의 제작에 필요한 다층박막의 제작을 위하여  $LaAlO_3$ (LAO) 기판위에  $SrTiO_3$ (STO)/YBCO 박막을 제작하였으며 제작된 박막의 결정성은 X-선 회절패턴(XRD)을 통하여 분석하였다.

## 2. 실험 방법

ArF excimer laser에서 나오는 photon의 파장은 197 nm에 불과하여 에너지가 높기 때문에 공기 중의 산소에 의해 에너지가 흡수되므로 본 연구에서는 Laser source로부터 target에 이르는 구간을 최소로 함으로서 Laser beam의 에너지 손실을 최소화하였다. Laser beam이 target에 45°의 각도로 입사 되도록 빔의 경로를 set-up 하였으며 이때 발생하는 plume은 기판에 수직으로 입사 되도록 하였다. 박막의 성장이 균일하게 이루어지도록 박막제작 중 기판을 회전시켰으며 기판의 가열은 quartz lamp를 사용하였다. 기판은 silver paste를 사용하여 stainless steel holder에 부착하였으며, thermocouple을 사용하여 기판 holder의 표면온도를 측정함으로써 기판의 온도를 추정하였다. 본 논문에서 사용한 기판온도의 값들은 모두 기판 holder의 표면온도를 나타낸다. 진공 Chamber 안의 진공도는  $10^{-6}$  Torr ~  $10^{-7}$  Torr를 유지한 후 산소를 주입하여 박막을 제작하였다.

YBCO 박막의 제작시 박막의 특성에 laser beam의 에너지 밀도가 가장 큰 영향을 미치는 것을 관찰하여 에너지 밀도를 작은 단계로 나누어 실험하였으며 제작된 박막의 임계온도  $T_c$ 가 에너지 밀도에 의하여 어떠한 영향을 받는지를 관찰하였다. 또한 산소의 분압에 따른 임계온도  $T_c$ 의 변화도 관찰하여 최적의 박막을 제작하기 위한 산소분압의 조건을 얻고자 하였다.

임계온도  $T_c$ 의 측정은 직류 4단자 법을 사용하

였으며 표면상태는 주사현미경(SEM)을 통하여 분석하였다.

다층박막에 대한 연구를 위하여 가장 보편적으로 많이 사용되고 있는 STO 박막을 절연체로 선택하였으며 이를 위하여 STO/YBCO 박막을 LAO 기판 위에 제작하여 XRD패턴을 통하여 각 층의 결정성을 관찰하였다.

## 3. 결과

에너지밀도에 따른 박막의 전기적인 특성을 알아보기 위하여 laser beam의 에너지 밀도를  $1.14 J/cm^2 \sim 1.33 J/cm^2$  까지  $0.05 J/cm^2$ 의 간격으로 변화시키며 박막을 제작하였다. 다른 제작조건들은 일정하게 유지하기 위하여 기판의 온도는 740 °C, 산소분압은 400 mTorr, 기판과 target 사이의 거리는 56 mm를 유지하여 에너지 밀도만에 의한 박막의 전기적성질의 변화를 알아보하고자 하였다.

그림 1과 그림 2는 각각 여러 Laser beam의 에너지밀도로 제작된 박막들의 R-T 변화와 임계온도  $T_c$ 의 변화를 보여 주고 있다. 이 그림들에서 알 수 있듯이 박막의 전기적인 특성이 레이저 빔의 에너지 밀도에 매우 민감함을 알 수 있다. 이 그림들에서 볼 수 있듯이 Laser 에너지밀도가

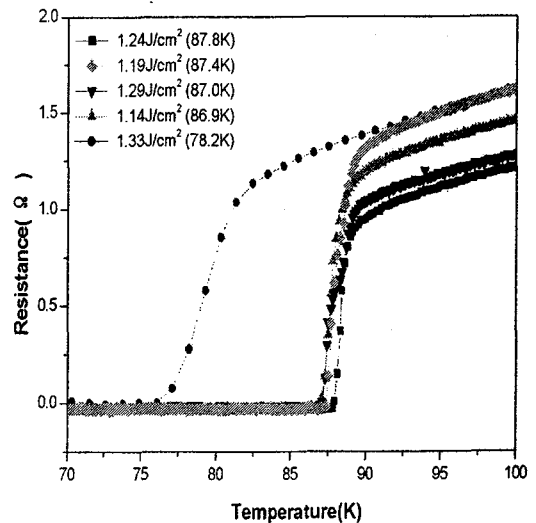


그림 1 Laser beam energy 밀도에 따른 YBCO 박막의 임계온도 그래프.

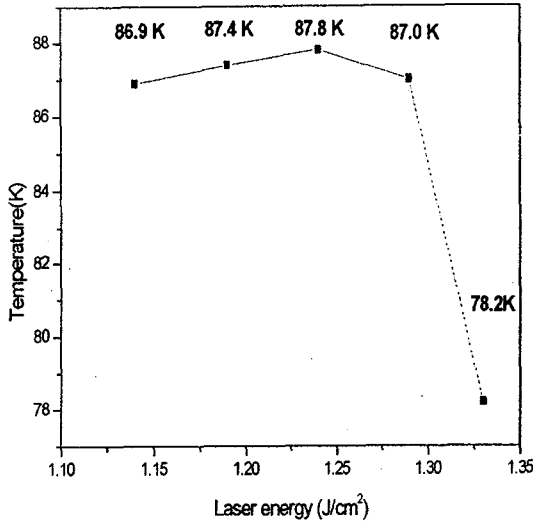


그림 2 Laser beam energy 밀도에 따른 임계 온도 Tc (K)의 분포.

1.24 J/cm<sup>2</sup>에서 임계온도 Tc가 87.8K로 가장 전기적인 특성이 좋은 박막을 제작되었으며 에너지 밀도가 이보다 낮아지면 임계온도가 서서히 낮아지며 이 조건에서 에너지밀도를 0.1 J/cm<sup>2</sup>만 높여도 박막의 임계온도가 급격히 낮아지는 것을 알 수 있었다.

에너지밀도가 최적의 상태인 1.24 J/cm<sup>2</sup>에서의 박막의 증착률은 0.39 Å/pulse이었으며 에너지 밀도를 1.14 J/cm<sup>2</sup>로 낮추었을 때의 증착률은 0.26 Å/pulse로 에너지밀도에 따른 증착률의 변화가 심하게 나타났다.

산소분압 조건에 따른 제작된 박막의 전기적인 특성을 조사하기 위하여 laser beam의 에너지 밀도는 1.24 J/cm<sup>2</sup>로, 기판의 온도는 740 °C로, 기판과 target 사이의 거리는 56 mm로 고정시키고 산소분압을 100 mTorr ~ 400 mTorr까지 100 mTorr의 간격으로 변화시키며 박막을 제작하였다. 이에 따라 제작된 박막들의 R-T 변화와 임계온도 Tc의 변화가 각각 그림 3과 그림 4에 보여지고 있다. 이 그림들에서 볼 수 있듯이 박막의 전기적인 특성이 산소분압이 증가함에 따라 좋아지는 것을 알 수 있다.

400 mTorr에서 제작된 박막의 증착률은 0.39 Å/pulse이었으며 100 mTorr에서의 증착률은

0.278 Å/pulse로 산소분압이 증가함에 따라 박막의 증착률도 증가하였다.

임계온도가 가장 좋은 박막의 제작조건은 에너지밀도 1.24 J/cm<sup>2</sup>, 산소분압 400 mTorr, 기판온도 740 °C, 기판과 target 사이의 거리 56 mm로 결론되었다. 이러한 조건으로 제작된 박막의 두께는 1880 Å이었으며 이 때의 증착률은 0.39 Å/pulse 이었다.

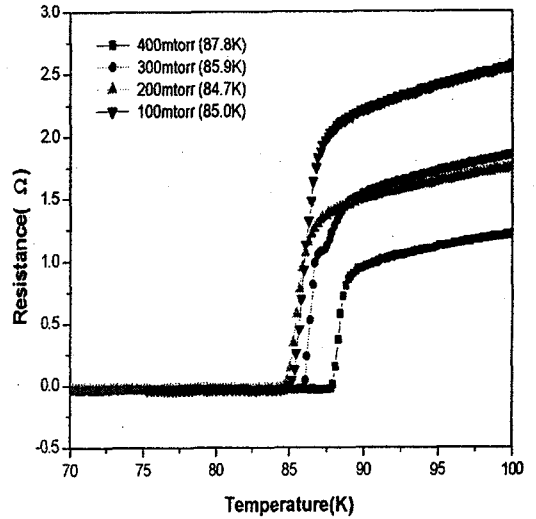


그림 3 산소 분압에 따른 YBCO 박막의 임계온도 그래프

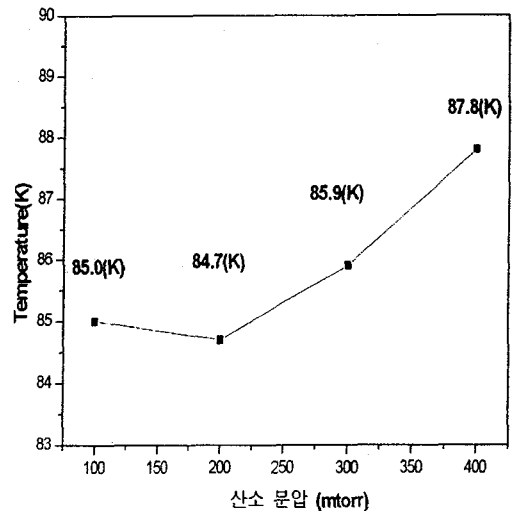


그림 4 산소의 분압에 따른 임계온도의 분포.

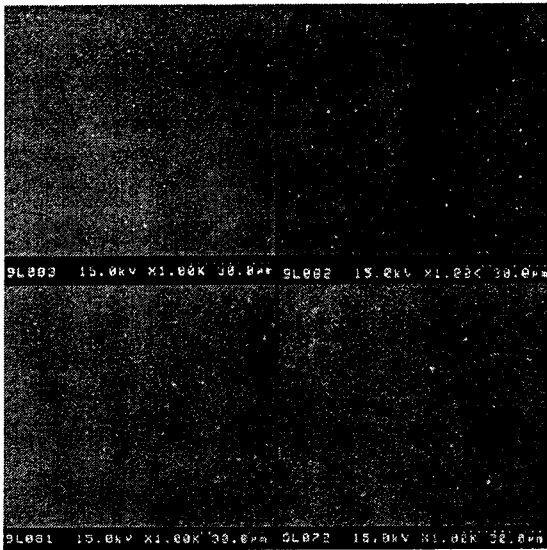


그림 5 산소 분압에 따른 박막의 표면 SEM 사진.

100mTorr(좌측위), 200mTorr(우측위)

300mTorr(좌측아래), 400mTorr(우측아래)

산소분압에 따른 제작된 박막의 표면특성을 조사하기 위하여 SEM을 사용하였으며 그림 5에는 여러 산소분압의 조건하에서 제작된 박막의 표면을 SEM으로 찍은 사진들이 보여지고 있다. 이 그림들에서 볼 수 있듯이 모든 박막들의 표면이 대체적으로 boulder 수가 적고 매끈한 성질을 가지고 있음을 알 수 있다. 이는 다른 연구결과에 보고된 [5] 바와 일치한다. 제작된 박막들의 표면 상태가 사용된 산소분압의 값에 의하여 별로 영향을 받지 않았기 때문에 본 연구에서는 가장 좋은 YBCO박막의 전기적인 특성을 얻을 수 있는 400 mTorr의 산소분압을 사용하여 YBCO박막을 제작하였다.

STO/YBCO 다층박막을 LAO기판 위에 제작하였으며 이 때 사용한 YBCO의 박막제작조건은 laser beam 에너지밀도  $1.24 \text{ J/cm}^2$ , 기판온도  $740^\circ\text{C}$ , 기판과 target 사이의 거리  $56 \text{ mm}$ , 산소분압  $400 \text{ mTorr}$ 이었으며 STO박막은 산소분압만  $100 \text{ mTorr}$ 로 줄이고 나머지는 같은 조건으로 하여 제작하였다.

각 층의 결정성은 XRD패턴을 통하여 조사하였으며 그림 6에는 LAO 기판위에 STO/YBCO 박막을 제작하여 XRD패턴을 얻은 것이 보여지고

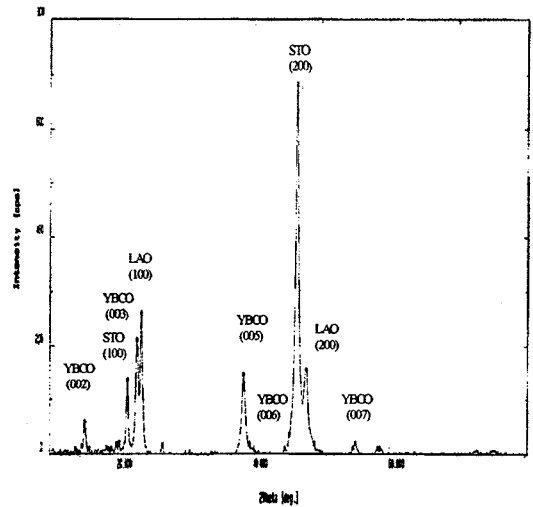


그림 6 STO/YBCO/LAO 박막의 XRD pattern의 분석

있다. 이 그림에서 볼 수 있듯이 STO박막과 YBCO 박막이 모두 잘 성장하였음을 알 수 있다.

#### 4. 결론

본 연구에서는 photon의 에너지가 높은 ArF excimer laser beam을 사용하여 YBCO박막을 제작하였다. 박막의 전기적인 특성에 영향을 주는 여러 가지의 제작조건들을 세밀히 조사하였으며, YBCO박막의 전기적인 특성에 가장 민감하게 영향을 주는 것은 laser의 energy 밀도임을 알아내었다. 본 연구의 결과로 우수한 YBCO 박막을 제작하기 위한 laser의 energy 밀도는  $1.24 \text{ J/cm}^2$ 임을 알아내었으며 밀도가 이보다 낮아지면 임계온도가 서서히 낮아지고 energy 밀도가 이보다  $0.1 \text{ J/cm}^2$ 만 높아져도 임계온도가 약  $10 \text{ K}$ 의 차이로 급격하게 떨어짐을 관찰하였다.

또한 박막제작시의 산소분압에 따라 박막의 전기적인 특성이 영향을 받음을 알 수 있었다. 산소분압이 증가할수록 박막의 임계온도는 높아졌으며 박막의 표면은 산소분압에는 관계없이 모든 박막이 비교적 매끈한 표면구조를 보여 주었다.

STO/YBCO 다층박막을 LAO기판 위에 성공적으로 제작하였으며 XRD패턴을 조사한 결과 올바른 결정성을 갖고 있었다.

본 연구를 통하여 photon의 에너지가 높은 ArF excimer laser를 사용하여 좋은 성질의 박막을 제작할 수 있음을 결론지었다. 본 연구에서 개발된 제작방법을 사용할 경우 전자회로의 개발에 필요한 우수한 다층박막의 제작이 가능할 것으로 기대된다.

## 감사의 글

본 연구는 과학기술부 특정연구개발사업의 지원과 한국과학재단지정 인천대학교 멀티미디어 연구센터의 지원에 의한 것입니다.

## 참고 문헌

- [1] H. F. Sakeek, M. Higgins, W. G. Graham, T. Morrow, R. J. Turner and D. G. Walmesley, *J. Appl. Phys.* 70, 2455 (1991)
- [2] J. Q. Zheng, M. C. Shih, S. Williamms, S. J. Lee, Hiroshi Kajiyama, X. K. Wang, Z. Zhao, K. Viani, S. Jacobson, p. Dutta, R. P. H. Chang and J. B. Ketterson, *Appl. Phys. Lett.* 59, 231 (1991)
- [3] X. D. Wu, A. Inam, T. Venkatesan, C. C. Chang, P. Barboux, J. M. Tarascom, B. Wilkens, *Appl. Phys. Lett.*, 52, 754(1988)
- [4] J. D. Suh, G. Y. Sung, *Physica C*, 252, 54(1995)
- [5] J. C. Pack, MOST, KRIS-93-145-IR, 26 (1993)