

펄스레이저 입사수에 따른 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 박막의 표면입자밀도 변화

서정대 · 성건용

한국전자통신연구소 기초기술연구부

(1993년 11월 30일 접수)

Effect of Laser Shot Number on the Surface Particle Density of $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ Thin Films by Pulsed Laser Deposition

Jeong Dae Suh and Gun Yong Sung

Research Department, Electronics and Telecommunication Research Institute

(Received November 30, 1993)

요 약

펄스레이저 입사수에 따른 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 박막의 표면입자밀도 변화와 타겟표면의 형상변화의 관련성을 고찰하였다. 펄스레이저 입사수가 100회 이하일 경우 박막의 표면입자밀도는 $\sim 10^3 \text{ mm}^{-2}$ 로 거의 일정하였으나, 입사수가 100회 이상일 경우 박막의 표면입자 밀도는 10배 이상 증가하였다. 이러한 변화는 타겟표면의 원추체 성장에 따른 표면입자 방출경로의 변화로 설명되었다.

ABSTRACT

Effect of the laser shot number on the particulates density of the pulsed laser deposited $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ thin films and the laser irradiated surface morphology of the $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ bulk target have been investigated. Until 100 laser shots of cumulative irradiation, the films has the particulates density of $\sim 10^3 \text{ mm}^{-2}$. However, after 100 laser shots, the density was increased more than 10 times. This result has been explained by the change of particulate ejection path with the development of conical structure at the target surface.

1. 서 론

$YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 고온초전도체가 발견된 이래, 이 물질의 박막화를 위하여 기존의 거의 모든 박막증착 기술들이 사용되어 왔다. 일반적으로 스퍼터링법(sputtering)¹⁻⁵⁾, 증발증착법(thermal or electron beam evaporation)^{6,7)}, 펄스레이저 증착법(pulsed laser deposition)⁸⁻¹²⁾으로 제조한 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 고온초전도 박막이 우수한 초전도 특성을 나타내고 있는 것으로 보고되었다. 이들 기술중에서 레이저 용해법(laser ablation)으로도 불리는 펄스레이저 증착법(pulsed laser deposition)은 레이저가 발견된 이래 개척된 많은 응용분야중의 하나로¹¹⁾, 타겟표면에 펄스레이저를 조사하여 순간적으로 타겟표면 물질을 플라즈마(또는 plume) 상태로 만들어 박막을 증착하는 공정이다. 펄스레이저 증착공정은 20여년 전부터 박막증착에 사용되어 왔으나, 최근에 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 고온

초전도 박막이 성공적으로 증착됨으로서 다성분계 박막 증착의 최적공정으로 각광을 받게되었다.

그러나, 펄스레이저를 이용하여 높은 임계온도와 임계전류밀도 및 우수한 결정성을 가진, 화학양론이 타겟의 조성과 일치되는 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 박막을 얻을 수 있다는 장점에도 불구하고, 증착된 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 박막표면에 직경이 0.5~1.5 μm 정도의 구형입자인 표면입자(particulates¹³⁾, boulder¹⁴⁾, surface particle¹⁵⁾)들이 형성되어 박막표면의 평탄화에 악영향을 미치는 단점을 지니고 있다. 이러한 표면입자들은 마이크로파 표면 저항(microwave surface resistance), 에피텍셜 초격자(epitaxial superlattice)생성, 터널접합(tunnel junction)형성에 유해하게 작용하며, $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 다층박막을 이용하여 SQUID(superconducting quantum interference device), 접합소자(junction device) 등의 전자 소자 제작시 박막층의 단선을 일으킬 수 있기 때문에 소자 제작에 심각한 문제

점을 야기시킬 수 있다.

표면입자의 생성원인은 펄스레이저가 타겟표면에 조사될 때, 타겟의 연마(polishing)시 표면에 부착된 파쇄 입자나 타겟표면의 용융물질이 방출(splashing)되어 박막 표면에 부착되는 것으로 알려져 있다¹⁶⁾. 일반적으로 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 박막표면의 입자밀도를 감소시키기 위하여, 타겟표면을 재연마하여 사용하는 방법이 경험적으로 알려져 있다¹⁷⁾.

펄스레이저로 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 박막을 증착할때 입사레이저의 파장과 표면미세구조와의 관계를 고찰한 Koren 등의¹⁸⁾ 연구에 의하면, 파장이 짧은 펄스레이저를 사용하여 증착한 박막의 표면입자밀도는 긴 파장의 펄스레이저를 사용한 경우보다 낮게 관찰되었다. 한편 Singh 등은¹⁵⁾ Ag를 첨가한 $YBa_2Cu_3O_7$ 소결체 타겟을 사용하거나, 연속레이저 광선으로 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 소결체 타겟 표면을 주사(scan)한 후 펄스레이저로 박막을 증착한 경우 표면입자밀도가 통상의 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 소결체 타겟을 사용한 경우보다 1/1000로 감소함을 보고하였다. Izumi 등은¹⁹⁾ $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 소결체 타겟의 동일한 지점에 펄스레이저를 누적 조사(irradiation)하여 발생하는 플룸(plume)을 TOF-MS(time of flight-mass spectroscopy)로 분석하여 100회의 이상의 펄스레이저가 타겟의 동일한 지점에 조사되어 방출된 플룸속에는 질량수가 수백 amu의 큰 질량을 가진 이온 peak가 검출되는데, 이러한 큰 질량을 가진 입자들이 박막표면에 표면입자로 부착된다고 보고하였다.

그러나, 펄스레이저 입사수에 따른 표면입자밀도의 변화에 대한 체계적인 연구가 행해지지 않은 관계로 표면입자 방출기구는 물론 표면입자밀도를 최소화시키기 위한 최적 입사수도 밝혀지지 않고 있다. 따라서 본 연구에서는 펄스레이저의 누적입사수를 체계적으로 변화시켜, 이에 따른 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 소결체 타겟과 증착된 박막의 표면형상을 주사전자현미경(scanning electron microscopy, SEM)으로 관찰하고 표면입자밀도를 구하여 표면입자 방출기구와 표면입자밀도를 최소화시키기 위한 최적 입사수를 제시하고자 한다.

2. 실험방법

펄스레이저를 이용한 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 박막의 증착은 진공 chamber에서 행하였다. 본 연구에서 사용한 증착 chamber의 평면도를 Fig. 1에 간략하게 도시하였다²⁰⁾. 본 연구에서는 파장이 308 nm인 XeCl 엑시머 레이저를 타겟 표면에 조사하였으며, 이때 엑시머 레이저의 펄스폭

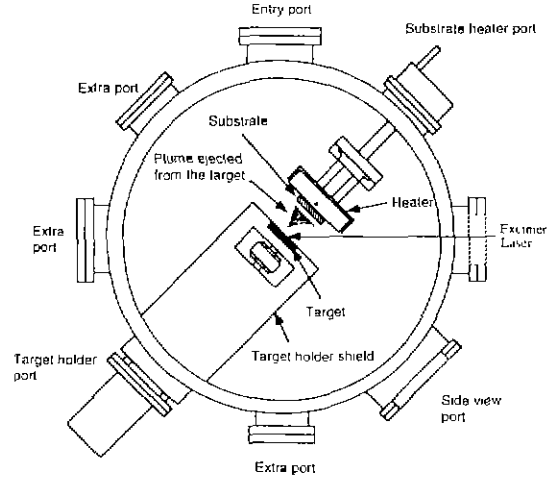


Fig. 1. Schematic of the pulsed laser deposition chamber.

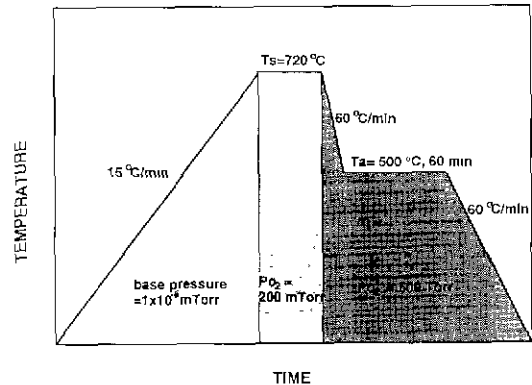


Fig. 2. Schematic of the pulsed laser deposition process for the $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ thin film deposition.

(pulse duration)은 14 nsec이었다. 펄스레이저는 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 타겟표면에 대하여 45°로 입사시켰다. 타겟표면에 조사된 펄스레이저의 에너지밀도는 $2 J/cm^2$ 이며, 동일한 타겟의 여러 지점에 레이저펄스의 입사수를 달리하여 10 Hz의 반복율(repetition rate)로 조사하였다. $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 타겟표면에 조사된 펄스레이저빔의 크기는, 레이저 입사장 앞에 설치되어 있는 광학렌즈의 초점거리를 조절하여 $2 \times 5 mm^2$ 의 면적으로 일정하게 유지하였다.

$YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 소결체 타겟은 직경 1 inch의 원판형 타겟을 사용하였으며, 박막 증착시마다 grit No. 1200의 SiC 연마지와 $0.05 \mu m Al_2O_3$ 분말을 사용하여 타겟표면을 연마하였다. 증착기판은 $LaAlO_3(100)$ 단결정을 사용하였으며, 은 페인트를 사용하여 가열대에 부착하였다.

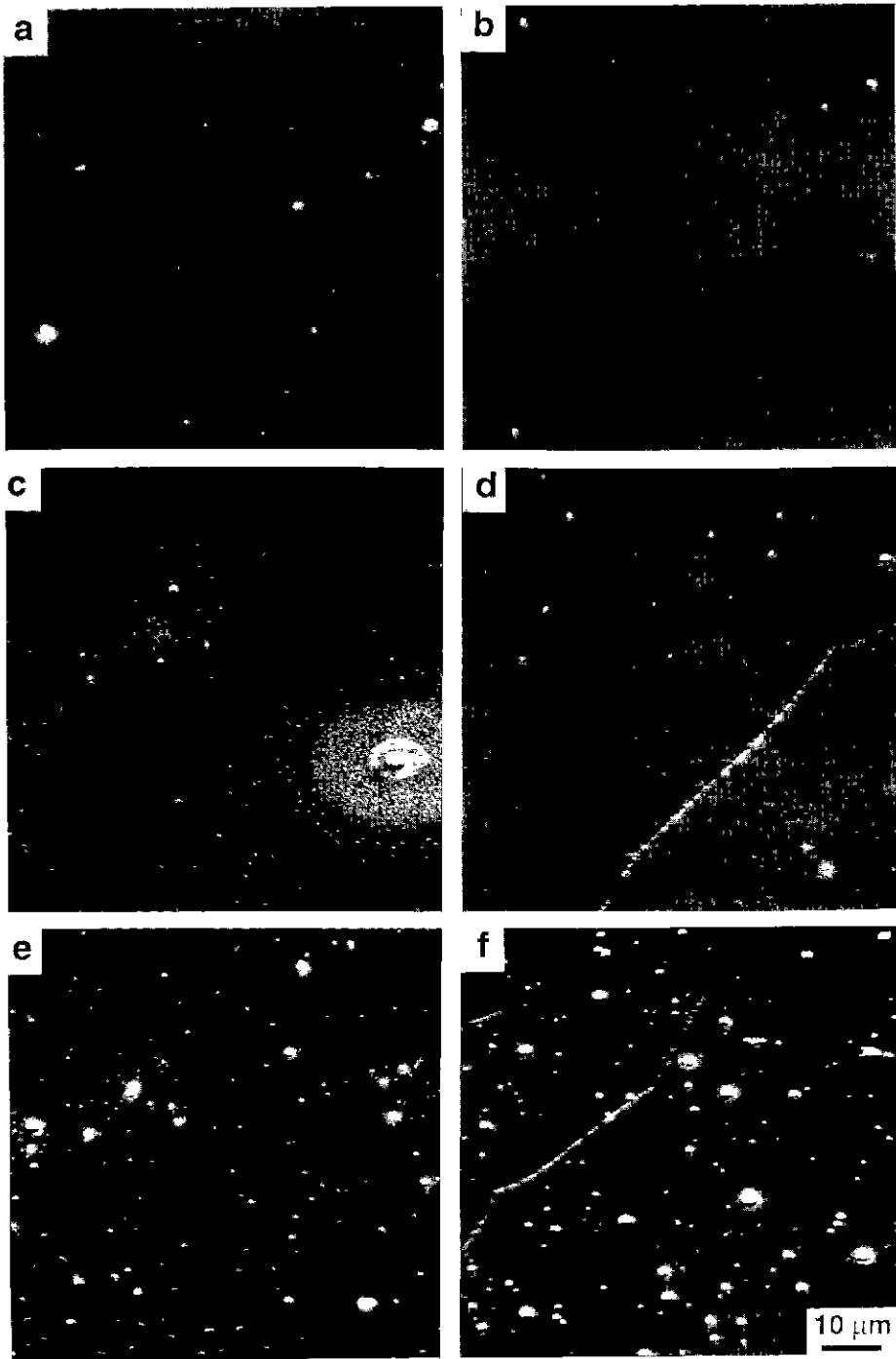


Fig. 3. Scanning electron micrographs showing the particulates on the $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ thin film surfaces. The films were deposited at 720 under 200 mTorr oxygen pressure using a XeCl excimer laser of 2.0 J/cm^2 , and 10 Hz with the number of laser shots of (a) 1, (b) 10, (c) 50, (d) 100, (e) 250, and (f) 500.

Turbo-molecular pump을 사용하여 진공 chamber의 압력을 10^{-6} Torr로 유지하면서 기관 표면을 720°C 로 승온하였다. 승온후 산소압력을 200 mTorr로 증가시켰으며, 기관의 온도와 산소압력이 안정된후 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 타깃표면에 펄스레이저를 조사하여 박막을 증착하였다. 박막 증착이 끝나면 산소압력을 500 Torr로 증가시킨후, 기관을 500°C 까지 냉각하고 이 온도에서 한시간 동안 in-situ로 열처리한 후 상온으로 자연 냉각하였다. Fig. 2에 본 실험의 공정을 개략적으로 도시하였다.

$YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 박막표면은 표면입자와 박막에서 성장한 outgrowth를 구별하기 위하여 박막표면에 대하여 45° 기울여 SEM으로 관찰하였으며, 표면입자 밀도는 SEM 사진상의 표면입자수를 세어서 면적으로 나누어 구하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 박막의 표면입자밀도 변화

Fig. 3은 타깃 표면의 한 지점에 조사된 펄스레이저 입사수에 따른 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 박막 표면을 SEM으로 관찰한 사진이다. Fig. 3(a)~(d)에서 보듯이, 펄스레이저 입사수를 100회까지 조사하여 증착한 박막의 경우 표면입자밀도가 낮으나, Fig. 3(e), (f)에서 보듯이 펄스레이저 입사수가 100회 이상에서는 현저히 증가되었음을 볼 수 있다. Fig. 4는 펄스레이저 입사수에 따른 박막상의 표면입자밀도 변화를 도시한 것이다. 100회 이하의 펄스레이저 입사수로 증착한 박막의 표면입자밀도가 $5 \times 10^3 \text{ mm}^{-2}$ 로 거의 일정하게 유지되는데 그 이유는 타깃을 연마한 후에 표면에 부착되었던 파쇄입자들이 1회의 펄스레이저에 의해 거의 대부분 방출되고 더이상의 파쇄입자방출이 없기 때문으로 생각된다. 한편, 이 결과는 증착전에 수회의 레이저 빔 조사로 타깃 표면의 부착물들을 미리 제거하는 타깃 전처리 공정이 초기 입사시 생성되는 표면입자들을 억제한다는 구체적인 증거로서 타깃 전처리 공정의 효과를 입증해 준다. 한편 펄스레이저 입사수가 타깃표면의 한 지점에 100회 이상 누적되어 조사되는 시점에서 표면입자밀도가 현저하게 증가되어 250회 누적조사시 박막의 표면입자밀도는 $4 \times 10^4 \text{ mm}^{-2}$ 이었다. 즉 타깃표면으로부터 방출된 표면입자의 부착이 누적입사수 100회 이상에서 급격히 일어난다는 결과를 얻었다.

3.2. $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 타깃의 표면형상 변화

펄스레이저 입사수에 따른 표면입자밀도 변화의 원인

을 고찰하기 위하여 펄스레이저가 조사된 타깃표면을 관찰하였다. Fig. 5는 펄스레이저 입사수에 따른 타깃표면의 미세구조의 변화를 관찰한 SEM 사진이다. 1회의 펄스레이저가 타깃표면에 조사된 경우(Fig. 5(b)), 표면의 미세구조는 Fig. 5(a)의 연마된 타깃표면의 미세구조와 거의 같은 평탄한 구조이나 표면이 용융되었음을 보여주고 있다. 펄스레이저 입사수가 20회로 증가함에 따라, Fig. 5(d)에서 보듯이 타깃표면의 용융은 더욱 뚜렷하고, 표면의 평탄성은 유지되고 있으나, 입사되는 고 에너지의 레이저와 타깃 간의 물리적인 반응에 의해 Fig. 5(d)의 화살표가 가리키는 돌기들이 생성됨을 볼 수 있다. 60회로 펄스레이저 입사수가 증가하면, Fig. 5(e)에서 보듯이, 이러한 표면돌기의 생성은 더욱 뚜렷해짐을 알 수 있다. 펄스레이저 입사수가 100회로 증가하면, Fig. 5(f)에서 보듯이 표면에서 현저하게 굴곡이 형성되어 표면의 평탄성이 저하됨을 볼 수 있다. 표면돌기의 생성은 펄스레이저가 타깃표면에 조사된 부위에서 상분리가 발생하여 수 μm 크기의 Y성분이 과잉인 상이 생성되고, 이 상은 레이저에 의한 증발 저항성이 강하기 때문에, 입사하는 레이저 빔에 대하여 물질방출 저항체(cap rocks)의 역할을 하여, 표면돌기로 자라게 되고 결국에는 원추형 구조(conical structure)로 성장하게 된다는 보고가 있다²¹⁾. 결국, 타깃표면의 굴곡은 레이저가 타깃표면에 조사될 때, 표면돌기보다는 표면돌기 사이의 바닥면에서 물질방출이 더욱 우세하기 때문에 형성됨을 의미한다. Fig. 6에서 보여주는 타깃표면상의 원추체의 꼭지부위 A와 타깃의 바닥면 B의 화학조성을 EDS(energy dispersive spectroscopy)로 분석한 결과, 원추체의 꼭지 부위는 Y : Ba : Cu = 5 : 3 : 1로 Y성분이 Ba이나 Cu에 비하여 많이 존재하였으며, 바닥면은 Y : Ba : Cu = 1 : 6 : 26으로 Y성분이 Ba이나 Cu에 비하여 적게 존재하였다. 이러한 결과는 원추체의 화학조성이 Y성분 과잉 상으로 보고된 결과들과 잘 일치한다²¹⁻²³⁾.

Fig. 7는 펄스레이저 입사수에 따른 타깃표면의 원추체의 성장을 관찰한 SEM 사진이다. Fig. 7(a)에서 보듯이, 펄스레이저 입사수가 점차 증가함에 따라, 입사수 100회일 때의 타깃표면의 굴곡구조가 원추형태의 돌출물로 이루어진 표면구조로 변화되었음을 볼 수 있다. 그리고, 원추체 사이의 타깃 바닥면 부위는 물질방출로 점점 깊어짐을 볼 수 있다. 이러한 타깃표면의 상분리에 의한 원추형 구조의 생성은 레이저가 조사됨에 따라 물질방출영역이 줄어들게 되는 결과를 나타내어 플룸강도(plume intensity)를 저하시켜 증착속도를 감소시키게 된다^{21,22)}.

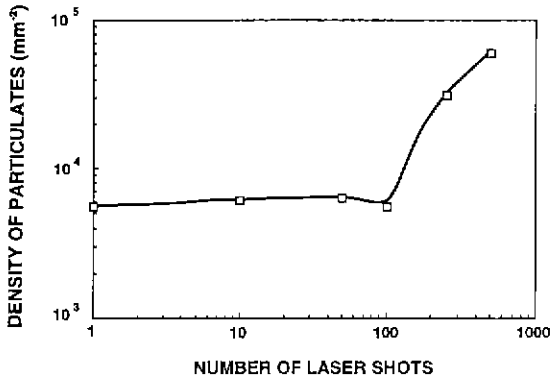


Fig. 4. Variation of the density of particulates on the pulsed laser deposited $YBa_2Cu_7O_{7-x}$ thin film surface as a function of the number of laser shots.

Fig. 8은 레이저 입사수에 따른 원추체의 높이와 밑면의 직경 변화를 도시한 것이다. 펄스레이저 입사수가 증가함에 따라 원추체의 크기의 증가율은 점차 감소하였다. Fig. 7에서 150회 펄스레이저를 조사한 경우에 생긴 원추체의 높이와 직경이 거의 같으나, 펄스레이저 입사수가 증가함에 따라 원추체의 길이가 직경에 비하여 2배 이상 커짐을 알 수 있다. 이것은 원추체 사이에 있는 타겟 바닥면에서의 물질 방출속도가 원추체 표면의 물질 방출속도보다 빠름을 의미한다. 한편, 펄스레이저 입사수가 증가함에 따라 원추체의 높이와 직경의 변화는 점차 작아진다. 이러한 이유는 원추체 발달에 따른 바닥면에서의 물질방출면적이 감소되고, 또 물질방출이 타겟표면에 수직으로 방출되므로 45° 입사하는 레이저 빔의 방향으로 자라는 원추체의 발달에 따라, 물질방출이 원

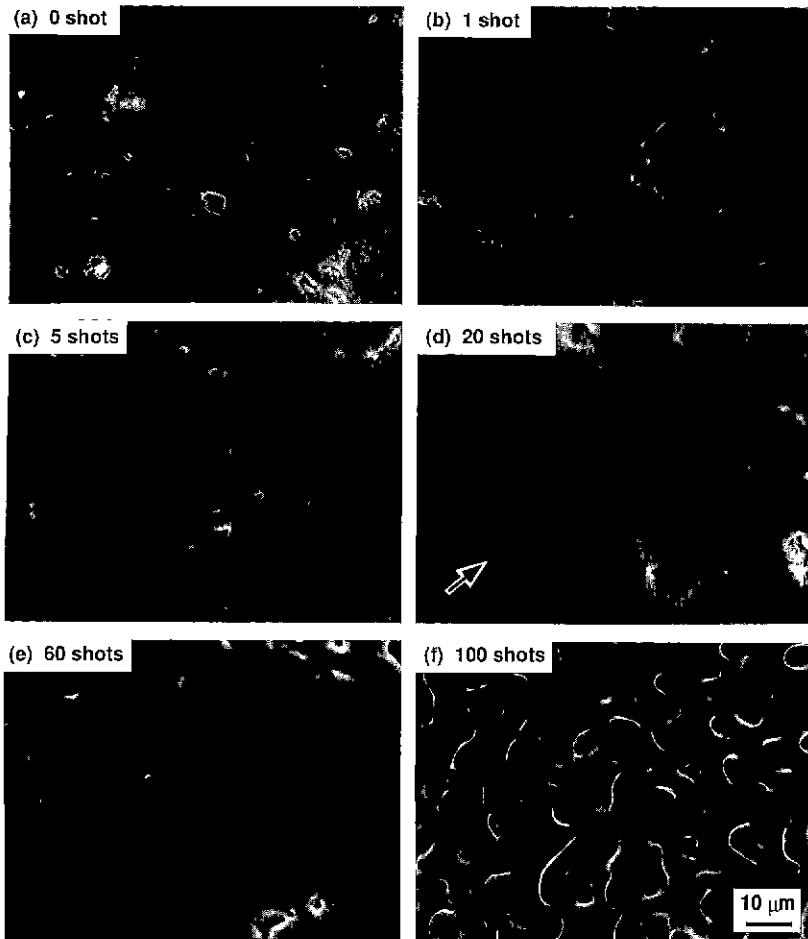


Fig. 5. Scanning electron micrographs showing the surfaces of $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ target after laser exposures with (a) 0, (b) 1, (c) 5, (d) 20, (e) 60, (f) 100 laser shots Arrow mark shows the cap feature.

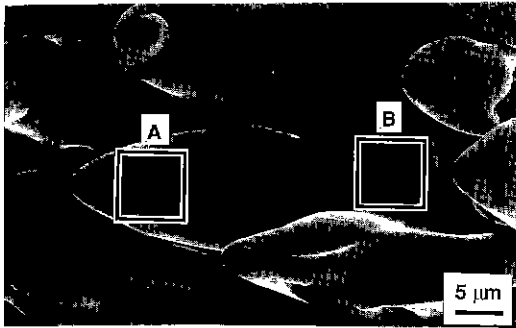


Fig. 6. Scanning electron micrograph showing the surface of $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ target after laser exposure with 450 shots. A and B indicate the areas analyzed by EDS.

추체에 의해 방해되기 때문으로 생각된다.

3.3. 표면입자 방출 기구

펄스레이저 입사에 의해서 타겟표면에서 원추체가 형성되면 박막의 표면입자밀도가 현저히 증가되는 현상은, 타겟표면에서 원추체의 생성시점을 전후하여 타겟 표면

상의 액상의 방출거동의 변화로 설명할 수 있다. 액상의 방출기구를 Chan 등²⁰⁾은 펄스레이저가 타겟의 표면에 조사되면, 펄스레이저의 초기에 흡수된 에너지에 의해 타겟표면이 융점까지 가열된후 증발온도에 이르러 표면 물질의 증발이 일어나면, 이때의 생성된 증기압력(vapor pressure) 때문에 반작용으로 반발압력(recoil pressure)이 생기고, 이 반발압력은 타겟표면의 액상에 작용하여 액상물질을 레이저빔의 조사영역 외곽으로 밀쳐내어 타겟표면으로부터 방출시키는 기구를 제시하였으며, Singh 등²⁵⁻²⁹⁾ 다음과 같은 부표면(subsurface) 폭발모델을 제안하였다. 레이저가 타겟표면에 조사될때, 광 에너지가 타겟표면으로부터 타겟내부로 광흡수계수의 역수깊이 만큼 흡수되어 타겟표면에서 평면적 표면증발(planar surface evaporation)이 일어나는 동안 표면은 증발잠열로 냉각되지만 표면 바로 밑의 부표면에 흡수된 한정된 양의 레이저 에너지는 열전도에 의해 방열되어야 하므로 표면증발이 진행되는 어느 순간에 부표면의 온도가 표면보다 높아지는 과열(superheating)이 발생한다. 이러한 과열로 부표면에서 기상(gas phase)이 생성되고 표면의 액상층을 폭발적으로 밀쳐내게 된다는 것이 부표면 폭

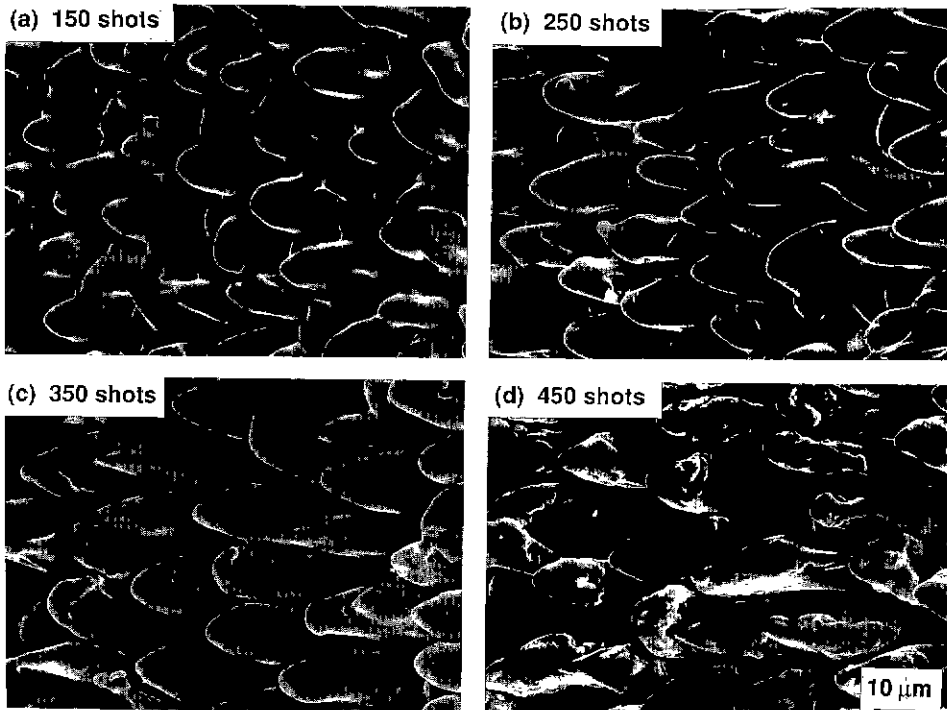


Fig. 7. Scanning electron micrographs showing the surfaces of $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ target after laser exposures with (a) 150, (b) 250, (c)350, and (d) 450 laser shots.

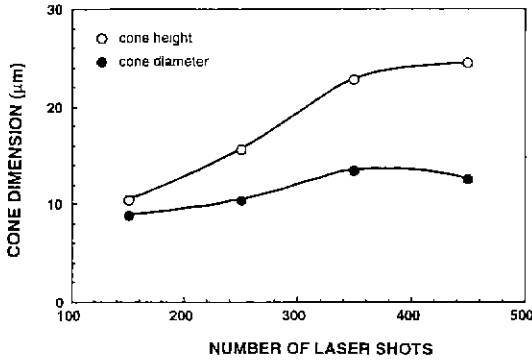


Fig. 8. Variation of the cone height and diameters at the $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ target surface after laser exposure as a function of the number of laser shots.

발모델이다.

이상의 기구들과 본 연구의 실험결과들을 토대로 타깃표면 형상에 따른 박막의 표면입자밀도 변화 거동을 설명하는 표면입자 방출기구를 다음과 같이 제안하고자 한다. 고에너지의 레이저 펄스가 평탄한 타깃표면에 조사되면, Fig. 9(a)같이 타깃표면이 가열되어 액상(liquid)이 생성되고 표면증발(vaporization)이 일어나게 된다. 이때 발생하는 높은 증기압력(vapor pressure)은 증발물질(vapor)을 타깃표면의 수직방향으로 밀쳐내고 이때 수반되는 반발압력이 액상에 작용하여 그림과 같이 액상을 밀쳐내어(liquid expulsion) 액상들이 방울(droplet)모양으로 방출된다. 이때 액상방울의 방출방향이 타깃표면에 수직하지않아서 액상방울들이 타깃과 마주보고 있는 기판표면에 도달될 확률이 매우 작다. 레이저펄스 조사가 누적됨에 따라 타깃표면은 Fig. 9(b)와 같이 굴곡이 생긴 상태로 변화되는데 타깃표면의 평탄성은 계속 유지되어 액상의 방출거동은 Fig. 9(a)와 별차이가 없다. 그러나 Fig. 9(c)와 같이 타깃표면에서 원추체(cone)가 생성되는 시점에서는, 타깃표면의 평탄성은 더이상 유지되지 않아 원추체 사이의 타깃바닥면에 존재하는 액상이 방출되어 레이저 입사빔 전체면적으로 분산된다. Fig. 9(d)는 타깃표면의 형상이 원추체 구조로 완전히 변화되었을때의 액상의 방출을 도시한 것으로 액상의 방출은 레이저 입사빔 전체면적으로 분산되지만, 타깃바닥면 사이의 영역이 깊어져 액상들의 방출방향이 기판으로 향하게 된다. 따라서 기판에 수직인 방향으로 이동되는 액상방울이 현저히 증가하게 된다. 이상의 표면입자 방출기구로 타깃표면의 원추체 생성 이후 박막의 표면입자밀도의 급격한 증가를 잘 설명할 수 있으며, 박막 증착시 표면

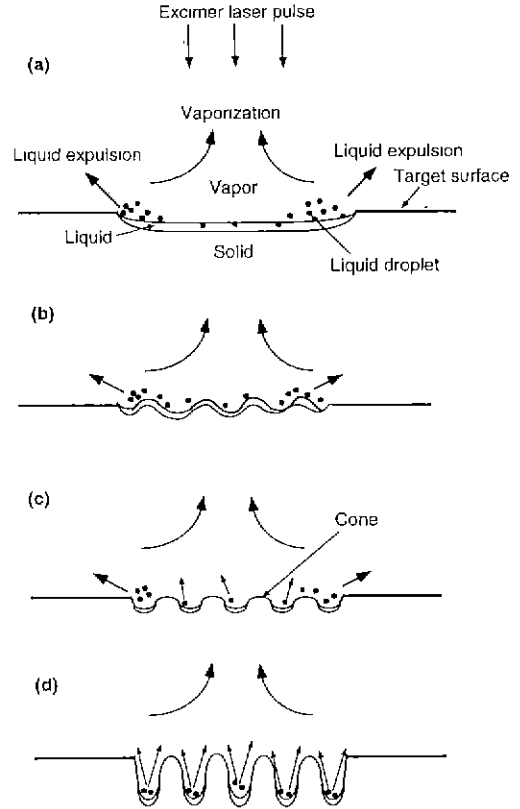


Fig. 9. Schematics of the particulate ejection process with the change of target surface morphology.

입자밀도를 최소화시키기 위한 동일지점에 대한 최대 누적입사수를 결정하는 기준을 마련할 수 있다.

4. 결 론

펄스레이저를 이용한 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 박막 증착시, 펄스 레이저 입사수에 따른 타깃표면의 형상변화와 박막의 표면입자밀도의 관계를 고찰한 결과, 펄스레이저의 조사에 의해 타깃표면의 평탄성이 유지되는 동안에는 박막에 부착되는 표면입자들이 거의 없고, 타깃표면에 원추체가 생성되어 타깃표면의 평탄성이 상실되면 표면입자밀도가 현저히 증가됨을 알았다. 이러한 결과는 액상 방울들이 평탄한 타깃에서는 레이저 빔 조사면적 외곽으로 방출되지만, 원추체 구조를 가진 표면에서는 레이저 빔 조사면적 전체로 분산된다는 표면입자 방출기구로 잘 설명할 수 있었다. 결론적으로 표면입자밀도가 낮은 평탄한 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 박막을 증착하기 위해서는 타깃의

동일지점에 대한 레이저 입사수를 원추체 구조 생성전으로 제한하여 박막을 증착하는 것이 바람직하다. 뿐만 아니라 타겟을 연마시 표면에 부착된 파쇄입자들이 초기 입사 레이저에 의해 방출되므로 증착전에 수회의 레이저 빔 조사로 타겟 표면의 부착물들을 미리 제거하는 타겟 전처리 공정도 표면입자 생성을 억제하는데 매우 중요하다.

감사의 글

본 연구에 많은 도움을 준 이일항 박사께 감사드리며, 본 연구는 한국통신의 연구비 지원에 의해 수행되었으므로 이에 감사의 뜻을 표합니다.

REFERENCES

1. M. Hong, S.H. Liou, J. Kwo, and B.A. Davidson, "Superconducting Y-Ba-Cu-O Oxide Films by Sputtering," *Appl. Phys. Lett.*, **51**(9), 694-696 (1987).
2. S.H. Liou, H. Hong, J. Kwo, B.A. Davidson, H.S. Chen, S. Nakahara, T. Boone, and R.J. Felder, "Y-Ba-Cu-O Films by RF Magnetron Sputtering Using Single Composite Target; Superconducting and Structural Properties," *Appl. Phys. Lett.*, **52**(20), 1735-1737 (1988).
3. C.B. Eom, J.Z. Sun, K. Yamamoto, A.F. Marshall, K.E. Luther, and T.H. Geballe, "In Situ Grown $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ Thin Films from Single-Target Magnetron Sputtering," *Appl. Phys. Lett.*, **55**(6), 595-597 (1989).
4. G.Y. Sung, J.D. Suh, K.Y. Kang, and S.H. Chang, "Fabrication of High-Tc Superconducting $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ Thin Films by Off-Axis RF Magnetron Sputtering," *J. Korean Ceram. Soc.*, **28**(3), 243-251 (1991).
5. G.Y. Sung, K.Y. Kang, and S.C. Park, "Synthesis and Preparation of Lanthanum Aluminate Target for Radio-Frequency Magnetron Sputtering," *J. Am. Ceram. Soc.*, **74**(2) 437-439 (1991).
6. X.K. Wang, K.C. Sheng, S.J. Lee, Y.H. Shen, S.N. Song, D.X. Li, R.P.H. Chang, and J.B. Ketterson, "Oriented Thin Films of $YBaCu(F)O$ with High Tc and Jc Prepared by Electron Beam Multilayer Evaporation," *Appl. Phys. Lett.*, **54**(16), 1573-1575 (1989).
7. A. Mongro-Campero, L.G. Turner, E.L. Hall, M.F. Garbaskas, and N. Lewis, "Epitaxial Growth and Critical Current Density of Thin Films of $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ on $LaAlO_3$ Substrates," *Appl. Phys. Lett.*, **54**(26), 2719-2721 (1989).
8. C.C. Chang, X.D. Wu, A. Inam, D.M. Hwang, T. Venkatesan, D. Barboux, and J.M. Tarascon, "Smooth High Tc $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ Films by Laser Deposition at $650^\circ C$," *Appl. Phys. Lett.*, **53**(6), 517-519 (1988).
9. H.S. Kwok and Q.Y. Ying, "Dynamics of In Situ $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ Superconducting Film Formation," *Physica C*, **177**, 122-128 (1991).
10. M.G. Norton and C.B. Carter, "On the Optimization of the Laser Ablation Process for the Deposition of $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ Thin Film," *Physica C*, **172**, 47-56 (1990).
11. J. Cheung and J. Horwitz, "Pulsed Laser Deposition History and Laser-Target Interactions," *MRS Bulletin*, **17**(2), 30-36 (1992).
12. G.Y. Sung, J.D. Suh, K.Y. Kang, and J.Y. Lee, "Control of a-Axis and c-Axis Orientation of The $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ Thin Films by Pulsed Laser Deposition," *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* **275**, 849-854 (1992).
13. G. Koren, R.J. Baseman, A. Gupta, M.I. Lutwyche, and R.B. Laibowitz, "Particulate Reduction in Laser-ablated $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ Thin Films by Laser Induced Plume Heating," *Appl. Phys. Lett.*, **56**(21), 2144-2146 (1990).
14. R. Ramesh, A. Inam, D.M. Hwang, T.D. Sands, C.C. Chang, and D.L. Hart, "Surface Outgrowth Problem in c-Axis Oriented Y-Ba-Cu-O Superconducting Thin Films," *Appl. Phys. Lett.*, **58**(14), 1557-1559 (1991).
15. R.K. Singh, D. Bhattacharya, and J. Narayan, "Control of Surface Particle Density in Pulsed Laser Deposition of Superconducting $YBa_2Cu_3O_7$ and Diamondlike Carbon Thin Films," *Appl. Phys. Lett.*, **61**(4), 483-485 (1992).
16. J.T. Cheung and H. Sankur, "Growth of Thin Films by Laser-Induced Evaporation," *CRC Crit. Rev. Solid State Mater. Sci.*, **15**(1), 63-109 (1988).
17. C.C. Chang, X.D. Wu, R. Ramesh, X.X. Xi, T.S. Ravi, T. Venkatesan, D.M. Hwang, R.E. Muenchausen, S. Foltyn, and N.S. Nogar, "Origin of Surface Roughness for c-Axis Oriented Y-Ba-Cu-O Superconducting Films," *Appl. Phys. Lett.*, **57**(17), 1814-1816 (1990).
18. G. Koren, A. Gupta, R.J. Baseman, M.I. Lutwyche, and R.B. Laibowitz, "Laser Wavelength Dependent Properties of $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ Thin Films Deposited by Laser Ablation," *Appl. Phys. Lett.*, **55**(23), 2450-2452 (1989).
19. H. Izumi, K. Ohata, T. Sawada, T. Morishita, and S. Tanaka, "Cumulative Laser Irradiation Effect on Ions in the Plume of $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ and Particulates at the Film Surface," *Appl. Phys. Lett.*, **59**(23), 2950-2951 (1991).
20. G.Y. Sung, J.D. Suh, H.K. Lee, and J.Y. Lee, "Construction of a Pulsed Laser Deposition System for the Growth of high Temperature Superconducting Thin Films," *Korean Appl. Phys.*, **6**(2), 157-162 (1993).
21. S.R. Foltyn, R.C. Dye, K.C. Ott, E. Peterson, K.M. Hubbard, W. Hutchinson, "Target Modification in the Excimer Laser Deposition of $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ Thin Films," *Appl. Phys. Lett.*, **59**(5), 594-596 (1991).

22. R. Pinto, S.P. Pai, C.P. D'Souza, L.C. Gupta and R. Vijayaraghavan, D. Kumar, and M. Sharon, "Optimization of KrF Laser Ablation Parameters for In-Situ Growth of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ Thin Films," *Physica C*, **196**, 264-270 (1992).
23. K.H. Young, "Morphology and Composition of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ Targets After Long Period Laser Ablation," *Physica C*, **211**, 1-12 (1993).
24. C.L. Chan and J. Mazumder, "One-Dimensional Steady-State Model for Damage by Vaporization and Liquid Expulsion Due to Laser-Material Interaction," *J. Appl. Phys.*, **62**(11), 4579-4586 (1987).
25. R.K. Singh, D. Bhattacharya, and J. Narayan, "Subsurface Heating Effects During Pulsed Laser Evaporation of Materials," *Appl. Phys. Lett.*, **57**(19), 2022-2024 (1990).
26. R.K. Singh, O.W. Holland, and J. Narayan, "Theoretical Model for Deposition of Superconducting Thin Films Using Pulsed Laser Evaporation Technique," *J. Appl. Phys.*, **68**(1), 233-247 (1990).
27. D. Bhattacharya, R.K. Singh, and P.H. Holloway, "Laser-Target Interactions During Pulsed Laser Deposition of Superconducting Thin Films," *J. Appl. Phys.*, **70**(10), 5433-5439 (1991).
28. A. Hoffman, "The Effect of ArF Laser Ablation of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ on the Composition and Morphology of the Ablated Surface," *Supercond. Sci Technol.*, **3**, 118-120 (1990).
29. W. Kautek, B. Roas, and L. Schultz, "Pulsed Laser Deposition of Hi-Tc Superconductor Films in the Ultraviolet, Visible, and Near Infrared Range," *Journal of Less-common Metals*, **164 & 165**, 292-299 (1990).