

## Fabrication of NiO buffer film on textured Ni substrate for YBCO coated conductor

Jong-Won Sun<sup>a,b</sup>, Hyoung-Seop Kim<sup>b</sup>, Choon-Ghwan Jung<sup>a</sup>, Hee-Gyoun Lee<sup>a</sup>, Chan-Joong Kim<sup>a</sup>, Gye-Won Hong<sup>c</sup>

<sup>a</sup>Functional Materials Laboratory, Korea Atomic Energy Research Institute, Daejeon, Korea

<sup>b</sup>Department of Metallurgical Engineering, Chungnam National University, Daejeon, Korea

<sup>c</sup>Korea Polytechnic University

## Textured Ni 기판 위에 YBCO coated conductor 모재용 NiO 완충층 제조

선 종원<sup>a,b</sup>, 김 형섭<sup>b</sup>, 정 충환<sup>a</sup>, 이 희균<sup>a</sup>, 김 찬중<sup>a</sup>, 홍 계원<sup>c</sup>

### Abstract

NiO buffer layers were deposited on texture Ni tapes for YBCO coated conductors by MOCVD(metal organic chemical vapor deposition) method, using a single solution source. Variables were deposition temperature and flow rate of O<sub>2</sub> carrier gas. At higher temperatures, The NiO(111) texture was well developed, but the NiO(200) texture was developed at low temperatures. The best result was obtained at the deposition temperature of 470 °C and the gas flow rate of 200 sccm. FWHM value of  $\omega$  -scan for NiO(200) of the film and  $\phi$  -scan for NiO(111) of the film was 4.2° and 7°, respectively.

*Keywords* : MOCVD(metal organic chemical vapor deposition), YBCO film, NiO buffer, texture.

### 1. 서론

초전도 박막전재를 만들기 위해 집합조직을 갖는 Ni 기판에 직접 YBCO 박막을 성장시키려는 연구가 있었으나[1], Ni이 YBCO 박막 내부로 침투하여 초전도 특성이 떨어지는 문제점 등이 발생하였다. 이런 문제점을 해결하기 위해서 Ni 모재와 초전도층 중간에 완충층을 도입할 필요성이 대두되었다. 완충층은 초전도

박막의 열팽창계수 및 격자상수, 초전도 박막과의 반응성 및 고온에서의 안정성 등을 만족시켜야 한다. 특히 열팽창계수의 차이로 인해 박막에 미세 균열이 발생하고, 초전도박막의 임계전류밀도를 떨어뜨린다[2]. 또한 초전도박막과 기판과의 격자상수 차이가 크면 박막의 epitaxial 적층성장에 큰 영향을 미친다. 초기에 시도된 중간층 형성 방법은 Ni 기판을 산화시켜 Ni 위에 NiO가 생성되게 하는 것이었으나, 이 방법에 의해 생성된 NiO는 결정방향을 조절하기 어렵고, 조직이 치밀하지 못하며, Ni이 YBCO 박막내부로 종종 침투하는 등 중간층

Corresponding author. Tel :+82-42-868-2029  
e-mail: ex-sun@kaeri.re.kr

생성공정으로 적합치 않았다. 따라서, 현재까지는 단결정 산화물 기판 위에 YBCO 박막을 성장시킬 때 사용되던 기존의 완충층( $\text{CeO}_2$ ,  $\text{STO}(\text{SrTiO}_3)$ ,  $\text{MgO}$ ,  $\text{YSZ}(\text{Yttrium stabilized Zirconia})$ ,  $\text{LaAlO}_3$ ,  $\text{Pt}$ ,  $\text{BZO}(\text{BaZrO}_3)$ ,  $\text{Sm}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Y}_2\text{O}_3$ ,  $\text{BaTiO}_3$  등)이 사용되고 있다. 이들 중 적합한 중간층 물질로  $\text{CeO}_2$ ,  $\text{Y}_2\text{O}_3$ , 또는  $\text{Yb}_2\text{O}_3$  등이 있으며, 이중  $\text{CeO}_2$ 가 많이 사용되고 있다. 초전도체로 Ni의 침투를 막기 위해서는  $\text{CeO}_2$ 의 두께가 두꺼워야 하나 1000 Å 이상이 되면 균열이 발생한다[3, 4]. 따라서  $\text{CeO}_2$ 을 대체할 새로운 완충층에 대한 연구가 필요하다.

본 연구는 NiO를 MOCVD(metal organic chemical vapor deposition)법으로 Ni 모재위에 증착하였다. 또한 증착온도, 산소 flow rate 조건에 따른 NiO 증착거동을 연구하였다.

## 2. 실험방법

본 실험에서 원료물질은 열적 안정성이 있으면서 비교적 낮은 온도에서 큰 증기압을 갖는 Ni(TMHD)(TMHD=2,2,6,6-tetramethyl-3,5-haptanedione) 킬레이트 화합물을 사용하였다. 고체상태인 원료물질을 액상으로 만들기 위해 용매로 THF(tetrahydrofuran,  $\text{C}_4\text{H}_8\text{O}$ )를 사용하였다.

원료 테이프 중 정량하여 사용하고자 하는 킬레이트 화합물을 THF 용매에 녹여 원료용액을 만든 다음 원료용액에 유리섬유를 넣어 원료용액이 유리섬유에 스며들도록 하였다. 유리섬유가 충분히 적셔지면 유리섬유를 펼쳐서 건조시켰다[5, 6].

본 실험에서 사용한 반응기는 일반적인 MOCVD 장치를 연속적으로 사용하기 위해 원료공급부에 belt를 설치한 형태의 장치로 크게 원료 공급계(feeding system), 증착계(deposition system) 및 배기계(exhaust system)의 3부분으로 나눌 수 있다. MOCVD 반응기의 개략도는 Fig. 1과 같다.

원료를 묻힌 유리섬유 테이프를 원료공급부에 설치한 다음, 기판을 홀더에 고정하여 반응관 입구에 넣은 후, 회전진공펌프를 이용하여 반응관내의 압력을 0.16 Torr까지 낮추었다.

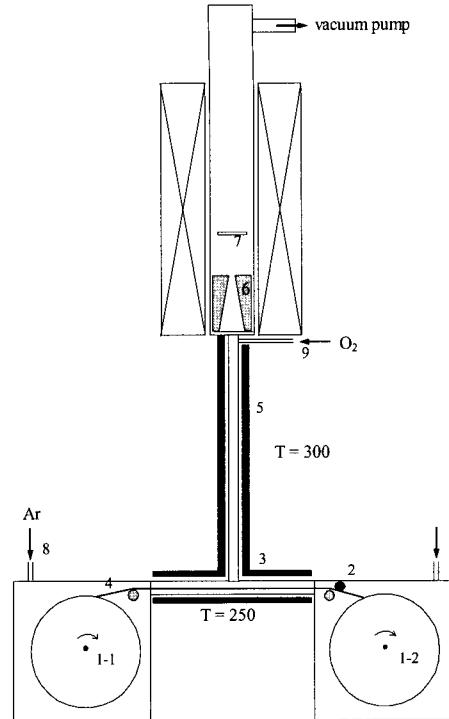


Fig. 1. Schematic diagram of belt-driven precursor feeding system and MOCVD reactor; 1-1: feeding spool with tension, 1-2: winding spool, 2: DC motor, 3: evaporation zone, 4: source feeding tape, 5: band heater, 6: nozzle, 7: substrate.

완충층의 제조를 위해 환원가스인  $\text{Ar}+\text{H}_2$  ( $\text{Ar}:96\%$ ,  $\text{H}_2:4\%$ )를 1000 sccm으로 흘려주었으며, 압력을 10 Torr로 유지하였다. 반응관내의 압력이 안정되면 기판을 반응부까지 밀어 넣고 10분간 Ni 기판을 예열하여 표면의 산화막과 기타 불순물들을 제거하였다. 예열이 끝난후  $\text{Ar}+\text{H}_2$ ( $\text{Ar}:96\%$ ,  $\text{H}_2:4\%$ )를 Ar로 바꾸고, 원료와  $\text{O}_2$ 를 공급하며 10분동안 반응시켰다. 반응 후 열처리를 하지 않고 반응기에서 증착된 기판을 꺼내서 상온에서 냉각하였다.

Ni 기판위에 증착한 NiO 완충층의 결정구조 및 생성된 상은 Rigaku사의 XRD로 조사하였다. X-선 회절분석은 35kV, 15mA에서 Cu-K $\alpha$  ( $\lambda = 1.5418 \text{ \AA}$ ) target을 사용하였고, X-선 회절각( $2\theta$ )은  $35\text{--}45^\circ$  구간에서 측정하였다. 또한 증착한 박막들의 표면 미세조직은 SEM을 이용하여 분석하였다.

3. 실험결과 및 토의

Fig. 2는 산소량은 200 sccm으로 고정시키고 온도만 변화시킨 NiO 완충층의 XRD 패턴이다. 온도가 증가함에 따라 NiO(111) 회절선의 강도가 높아진다. 증착온도 470°C에는 NiO(111) 회절선의 강도가 가장 낮고, NiO(200) 회절선의 강도가 가장 높다. 450°C에서의 경우는 낮은 온도로 인해 NiO 증착이 전체적으로 잘 일어나지 못했음을 보여준다.

Fig. 3은 증착온도를 470°C로 고정시키고 산소량만 변화시켜 제조한 NiO 완충층의 XRD 패턴이다. NiO(111) 회절선의 강도는 산소량에 관계없이 낮게 나왔고, 산소량이 200 sccm 일 때 NiO(200) 회절선의 강도가 가장 높다.

Fig. 4는 전체압력(10 Torr)과 반응시간(10분)을 동일하게 유지하고, 산소량은 100 sccm ~ 300 sccm, 증착온도는 450°C ~ 530°C에서 증착한 NiO 완충층의 I(200)/(I(200)+I(111))의 회절강도비이다. Fig. 4에 보이는 것과 같이 증착온도와 관계없이 200 sccm에서 회절강도비가 가장 높음을 알 수 있다. 450°C에서는 산소량에 관계없이 I(200)/(I(200)+I(111))의 회절강도비가 전체적으로 낮음을 알 수 있었고, 나머지 온도에서는 일정한 비율로 변화함을 알 수

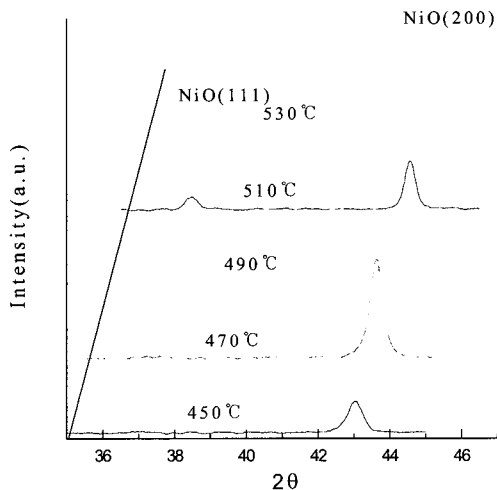


Fig. 2. X-ray diffraction patterns of the NiO buffer layers deposited on Ni substrates at various temperatures of 450°C, 470°C, 490°C, 510°C and 530°C, respectively.

있다.

Fig. 5와 Fig. 6은 470°C, 200 sccm 에서 증착한 NiO의 표면과 단면 사진이다. 사진에서 보이는 것과 같이 NiO 결정이 균질하고 일정 방향으

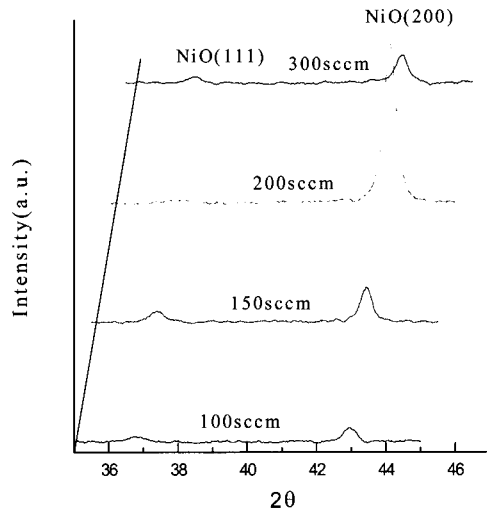


Fig. 3. X-ray diffraction patterns of the NiO buffer layers deposited on Ni substrates at various oxygen flow rates of 100 sccm, 150 sccm, 200 sccm and 300 sccm.

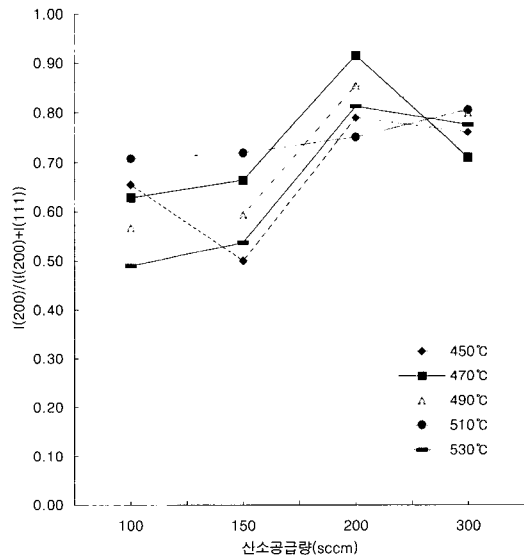


Fig. 4. Intensity ratio of I(200)/(I(200)+I(111)) of NiO buffer layer on Ni substrates with various oxygen flow rates and depositon temperatures.

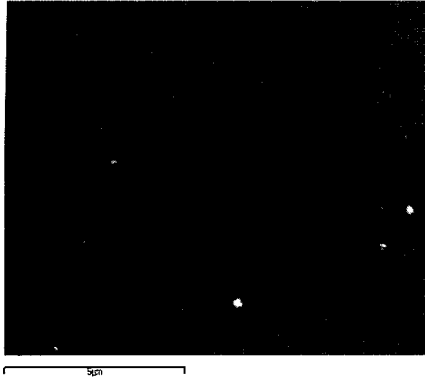


Fig. 5. SEM image of the surface of NiO deposited at 470°C.

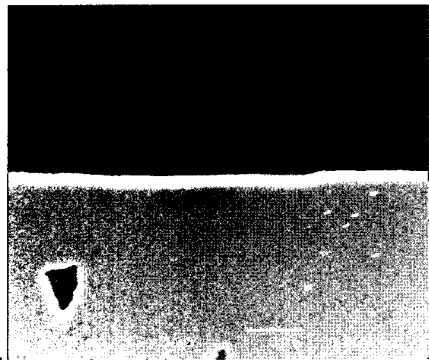


Fig. 6. SEM image of the cut end of NiO buffer layer deposited on Ni substrate.

로 성장하였음을 알 수 있다

증착온도를 470°C, 산소분압 10 Torr, 기판의 기울기를 60° 로 하여 제조된 NiO 완충층의  $\omega$ -scan과  $\phi$ -scan을 Fig. 7에 나타내었다. NiO(200)에 대한 out-of-plane의 FWHM 값이 4.2°, NiO(111)에 대한 in-plane의 FWHM 값이 7° 로서 우수한 배향성을 나타냈다.

본 연구 결과에 의하면 NiO 완충층의 증착 및 결정방위는 기판의 온도와 산소량에 따라 변함을 알 수 있었다. 또한 470°C, 200 sccm에서 제조한 NiO 완충층이 다른 조건에서 제조한 NiO 완충층보다 결정입자가 뚜렷하게 Ni 기판에 수직인 c-축 방향으로 성장하였음을 알 수 있다.

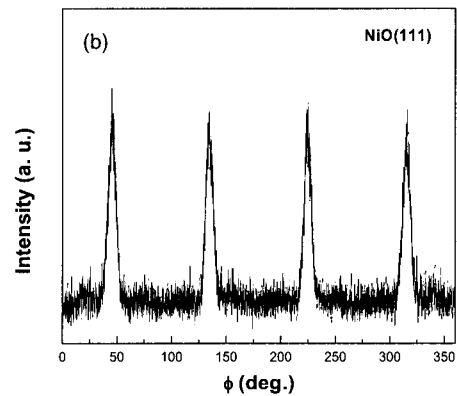
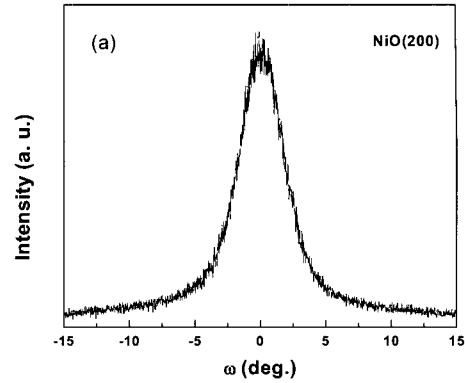


Fig. 7. X-ray rocking curve and the  $\phi$ -scan showing the out-of-plane and in-plane texture of the NiO film. (a) Rocking curves for NiO(200) and (b)  $\phi$ -scan for NiO(111).

#### 4. 결론

집합조직을 갖는 Ni 테이프 위에 MOCVD 공정으로 NiO를 증착하였다. 변수는 증착온도와 운반가스의 flow rate였다. 증착온도가 높으면 (200)면보다는 (111)면으로 NiO가 증착되었다. 증착온도 470°C, 산소 flow rate 200 sccm에서 (200) 회절선만이 잘 발달된 NiO 증착이 이루어졌다. NiO(200)에 대한 out-of-plane의 FWHM 값이 4.2°, NiO(111)에 대한 in-plane의 FWHM 값이 7° 로서 배향성이 우수했다.

#### 참고문헌

- [1] A. Ginsbach, R. Schneider, H. W. Grueninger and G.

- Grabe, *IEEE Trans. Mag.*, **27(2)**, 1410(1991).
- [2] S. Miura, T. Yoshitake, S. Matsubara, Y. Miyajaka, and N. Shohata, *Appl. Phys.*, **63**, 4591(1998).
- [3] Qing he, D. K. Christen, J. D. Budai, E. D. Specht, D. F. Lee, A. Goyal, D. P. Norton, M. Paranthman, F. A. List, D. M. Kroeger, *Physica C*, **275**, 155(1997).
- [4] M. Paranthman, A. Goyal, A. List, E. D. Specht, D. F. Lee, P. M. Martin, Qing he, D. K. Christen, D. P. Norton, J. D. Budai, D. M. Kroeger, *Physica C*, **275**, 266(1997).
- [5] H. G. Lee, Y. M. Lee, C. H. Jung, and G. W. Hong, *Metals and materials*, **6(30)**, 261(2000).
- [6] H. G. Lee, Y. M. Lee, H. S. Shin, C. H. Jung, D. J. Youm and G. W. Hong, *Supercond. Sci. Technol.* **13**, 1368(2000).