

IBAD 법에 의한 Template 기술 개발 현황 및 전망

문승현
서울대학교 재료공학부

1. 서론

1987년 액체질소 온도를 넘는 고온초전도체의 발견이후 초전도 선재에 관한 연구는 꾸준히 진행되어져 왔으며, 현재 은합금 피복을 갖는 Bi-2223 1세대 선재는 상용화되어 있다. 1세대 선재는 PIT(powder in tube) 방법으로 제작하여 공정이 단순한 장점이 있으나, 한 방향으로 배향성을 가지게 제조될 수 밖에 없어서 임계전류에 문제를 야기 시키는 큰 각도의 난알경계(grain boundary) 문제가 있다 [1]. 또한, 이 물질은 irreversibility field H_{irr} 이 작아 77 K에서 1 T 이상의 자기장에서 사용할 수 없는 물성상의 단점과 은 합금을 피복으로 사용하여야만 하는 이유로 가격적 측면에서 대량 생산 체제를 갖추더라도 기존의 구리선이나 상용의 저온초전도 Nb-Ti 선재와 비교하여 50 배 이상의 높은 가격으로 응용처를 제한해 왔다.

YBCO($YBa_2Cu_3O_{7-x}$)를 사용하는 2세대 선재는 Ni 등 금속 tape에 박막을 형성시키는 방법으로 제작되는데 2축 배향성을 갖기 때문에 단결정 기판에 성장시킨 epitaxial 박막과 같은 높은 임계전류 밀도의 달성이 가능하고, YBCO 물질 자체의 H_{irr} 이 77 K에서 5 T 이상되어 대부분의 응용에 문제가 없는 장점을 가지고 있다 [1]. 또한 기판으로 사용하는 Ni tape과 YBCO 등의 물질 가격을 고려할 때 1세대 Bi 선재와 비교하여 1/5 이하의 가격으로 제작이 가능할 것으로 분석되어 경제성 또한 크다고 할 수 있다.

이러한 2세대 선재의 가능성에 관한 연구가 시작된 지는 10년이 훨씬 넘었지만 본격적인 주목을 받기 시작한 것은 불과 수년 전의 일이다. 그 이유는 1 cm 정도의 다결정 금속 기판에 증착에 성공하였지만 그 길이를 실용 가능한 장선으로 늘이는 연구의 발전 속도가 느린 것도 주요한 요인 중의 하나이다. 2002년에 이르러서는 실용화 수준의 임계전류를 갖

는 2세대 선재의 길이가 10 m 이상으로 길어져 실용화의 시기가 가까워졌다고 판단하여 집중적인 투자가 이루어지고 있다. 2세대 선재에 관해서는 앞의 논문에서 자세히 다룰 예정이므로 여기서는 그 기반이 되는 textured template에 대해서 논의하도록 한다. 2세대 선재 기술은 2축 배향성을 갖는 YBCO 박막을 다결정 금속 기판위에 형성시키는 구조로 이루어져 있다.(그림 1) 따라서 다결정 금속 기판의 표면을 2축 배향성을 갖게 만들고, YBCO 성장에 적합한 격자 상수를 갖으며 열적, 화학적 안정성을 갖는 template 및 완충층을 제작하는 기술이 그 요체 중의 하나라고 할 수 있다.

일반적으로 널리 사용되는 기술로는 IBAD (ion beam assisted deposition) 방법과 RABiTS (rolling assisted biaxially textured substrate)을 들 수 있으며, 그 외에 ISD (inclined substrate deposition), ITEX (ion-beam texture) 등 다양한 방법이 시도되고 있다. 그중 RABiTS는 Ni 및 Ni alloy 등 FCC (face centered cubic) 구조를 갖는 금속에 대해 rolling 공정과 열처리 공정을 적절한 조건으로 수행할 경우 금속 tape 자체가 2축 배향성을 갖는다는 사실을 이용한 것으로, 자세한 내용은 본지의 다른 논문에서 다룰 것이다. 다음 절에서는 IBAD 방법에 관해 설명한다.

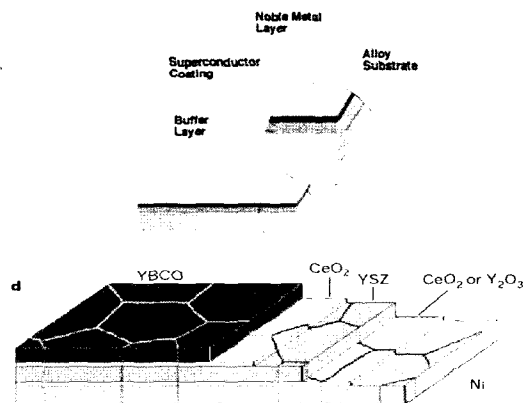


그림 1. 2세대 초전도 선재의 구조.

2. IBAD 법에 의한 template

IBAD은 일반적으로 박막의 증착과 동시에 기판을 향해 ion beam을 주사하는 방법을 의미하며(그림 2) 오래전부터 사용되어 왔던 기술로, 응용 분야는 공구, 기계공학, 우주항공, 폴리머, 세라믹 등 매우 다양하다[2]. 일반적인 IBAD 방법으로 제작한 박막의 장점은 마모 방지, 표면 개질, fatigue에 대한 저항 증가 등을 들 수 있다. Assisting ion beam을 사용하기 위해서는 1 mTorr 미만의 압력에서 증착이 행해져야 하므로, 증착 방법으로는 IBS(ion beam sputtering), e-beam evaporation, thermal evaporation 등 비교적 낮은 압력에서의 증착 방법을 사용하며, pulsed laser deposition 방법을 사용한 예도 있다. 그러나, 전통적으로 쓰인 IBAD 방법이 밀도, adhesion, 굴절율의 개선 등의 목적으로 쓰인 반면에, 현재 고온초전도 선재용 template을 위한 IBAD는 단결정과 유사한 2축 배향성을 갖는 박막을 얻기 위한 방법이라는 점에서 기존의 연구와 차이를 보이고 있다.

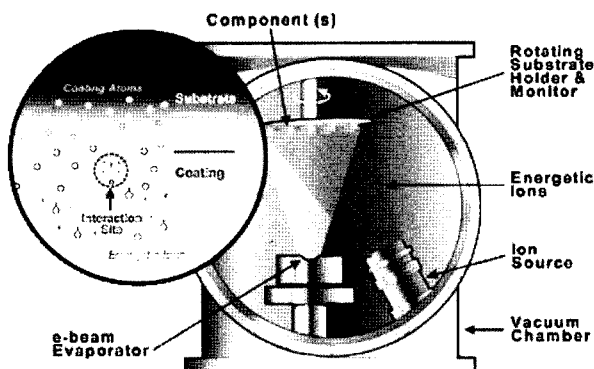


그림 2. 일반적인 IBAD 방법의 개략도.

이축 배향을 갖는 완충층을 제작하기 위한 IBAD 방법의 채용은 1991년 일본 Fujikura사의 Iijima 등에 의해 최초로 행해졌으며, YSZ(Yttria stabilized Zirconia)를 IBS 방법으로 증착하며 assisting Ar ion beam을 사용하여 30°의 in-plane texture를 얻는데 성공하였고[3], 뒤이어 미국의 Conductus사, LANL(Los Alamos national laboratory) 연구소, 독일의 Göttingen 대학 등에서 10° 내외의 개선된 결과를 내놓았다. 뒤이어 미국 Stanford 대학에서는 MgO를 이용한 IBAD

template 결과를 발표했으며[4], 현재도 다양한 물질 및 공정에 대한 연구가 세계적으로 많은 그룹에서 활발히 진행 중이다.

IBAD에 의해 왜 2축 배향성이 이루어지는지에 관해서는 아직도 명확히 설명되고 있지는 않지만, assisted ion의 channeling이 중요한 역할을 한다고 인식하는 것이 일반적 추세이다. 즉, fluorite 구조를 갖는 cubic YSZ에 대해 55도 방향 - (111) 방향 -으로 beam이 입사될 경우 정렬된 원자들의 scattering cross section은 random한 원자들의 cross section보다 훨씬 작은 channeling이 일어나므로 2축 배향성이 생겨난다는 것이다. 이는 RBS(Rutherford back scattering spectroscopy)에서 random과 aligned channel을 이용하는 것과 유사하다. 따라서 물질의 구조에 따라 입사 각도는 정해지며, 적당한 ion과 molecule의 ratio를 조절할 경우 좋은 2축 배향성을 얻을 수 있다는 것이다.

실제 연구 결과는 단순한 위의 설명으로는 모든 현상을 설명하기에는 힘들어 보인다. 특히 미국 Stanford 대학의 Hammond 연구진이 처음 보여준 MgO 물질에 대한 연구는 더욱 많은 관심을 끌고 있다. NaCl 구조의 MgO에서 ion beam의 입사각은 45도- (110) 방향 - 이었으며, 이 경우 YSZ와 유사한 정도의 2축 배향성을 갖는데 필요한 두께는 10 nm 정도이다. 이는 YSZ와 비교하여 거의 1/100의 두께에서 texture가 이루어지는 것으로, 경우에 따라 두께가 두꺼워질 경우 배향성이 나빠지는 결과가 나타나기도 했다. 따라서 한편에서는 IBAD mechanism에 관한 이론적인 연구가 활발하게 이루어지고 있다. 대표적인 한 예를 들면 미국 Princeton 대학의 Srolovitz 연구진은 이러한 실험 결과를 바탕으로 Monte Carlo simulation 연구를 꾸준히 수행하여, ion beam energy, 방향, 증착종의 양 등에 따른 시간적 변화를 조사하여 back sputtering, channeling 등의 효과가 어떻게 나타나는지에 대해 수 편의 논문을 발표하였다[5]. 그 결과 IBAD template의 2축 배향성 성장 mechanism의 이해에 기여를 하였으나, 아직도 실험적 결과를 모두 설명하지는 못하고 있는 실정이다.

IBAD 법에 의해 template이 완성되어도 그 위에 바로 YBCO 증착은 쉽지 않다.

Template 물질 자체만으로 YBCO와 격자 상수와 열팽창 계수가 일치하고, Ni 등 금속 기판과 화학적 반응을 일으키지 않아야 하며, 접착력도 우수해야 하므로 이러한 template 상하에 다른 여러 물질을 증착하는 것이 일반적이다. 현재 금속 기판과 IBAD template 층 사이에는 Y_2O_3 , CeO_2 , Si_xN_y 등의 얇은(~10 nm) 비정질 층을 증착하는 것이 일반적이며, 이어 증착된 IBAD 층 위에는 IBAD-template 물질과 YBCO 증착 방법에 따라 다른 종류의 물질을 완충층으로 사용하는 추세이다. YSZ나 GZO ($Gd_2Zr_2O_7$)의 경우 CeO_2 가 주로 YBCO 완충층으로 사용되는데, 이는 이물질이 2축 배향성을 개선하는 성향을 보이기 때문이다. 한편 MgO template의 경우 표면 평탄화를 위해 MgO homo-epi 층을 증착하고, 그 위에 CeO_2 , STO($SrTiO_3$), SRO($SrRuO_3$) 등의 층을 epitaxial 증착한다. 현재까지 SRO에서 가장 좋은 결과를 얻고 있으나, 예로 YBCO의 MOD(metal-organic decomposition) 공정과 SRO는 맞지 않으므로 MOD 공정을 기준으로 반드시 CeO_2 류의 완충층을 사용해야 한다. 넓은 의미에서 2세대 선재용 IBAD template은 완충층을 포함한 이러한 모든 층을 포함하여 지칭하기도 한다.

현재 IBAD template의 연구 방향은 단결정과 가까운 결정구조를 갖는 초전도층 증착에 적절한 막을 어떻게 얻느냐 하는 연구와 더불어 얼마나 빠르게 제작하느냐하는 실용화에 비중을 둔 방향으로도 연구가 집중되고 있다. 여기서 빠르다는 의미는 증착 속도뿐만 아니라 증착 면적도 동시에 고려된 부피공정 속도(volumetric process rate)이다. 따라서 IBAD template 층의 두께는 초전도층 증착에 적당하다는 전제하에 가급적 얇고, 물질의 가짓수를 줄이는 방향이 바람직하다.

3. IBAD 법에 의한 template 기술 개발 현황

IBAD 법에 의한 template 기술이 최근 큰 주목을 받고 있는 이유는 2세대 선재의 빠른 발전과 밀접한 연관이 있다. 지난 수년간 초전도 선재에 관한 연구 역량이 2세대 선재에 집중되면서 2002년 이후 길이 10 m 이상, 임계전류 100 A 이상 급의 선재가 여러 기관

에서 발표되고 있다. 예외적으로 미국 AMSC(American Superconductor)사의 RABiTS 기판 사용 예만을 제외하면, 일본 Fujikura사, 독일의 Göttingen 대학, 미국의 IGC-superpower, LANL 등 많은 결과들이 IBAD 방법의 template을 이용하여 나온 결과들이기 때문이다. 본 절에서는 기관별 기술 개발 동향을 살펴보고자 한다.

일본의 경우 Fujikura사는 최초의 IBAD YSZ template을 이용하여 2세대 초전도 선재의 가능성을 보인 이후 꾸준히 장선화를 위한 연구 개발을 진행해 오고 있다. 다양한 실험을 통하여 fluorite 구조의 YSZ에서 Pyrochlore 구조의 GZO로 물질 선정을 교체하고, 6 cm x 66 cm의 RF ion source가 장착된 장선화를 위한 장비를 새로 구축하여 활발한 연구를 진행하고 있다.^[6] 특히 최근 GZO IBAD template위에 CeO_2 층을 성장시킬 경우 빠른 시간 내에 더 좋은 2축 배향성을 얻을 수 있다는 사실을 밝혀내었으며, 이러한 방법으로 100 m 길이의 IBAD template 제작 결과를 금년 초에 발표하였다. (그림 3) 이는 현재까지 세계에서 가장 긴 결과이며, 이런 template 위에 2002년에 46 m 길이의 74 A/cm-width, 2003년에 100 m 길이의 30 A/cm-width의 2세대 선재 결과를 발표하였다.

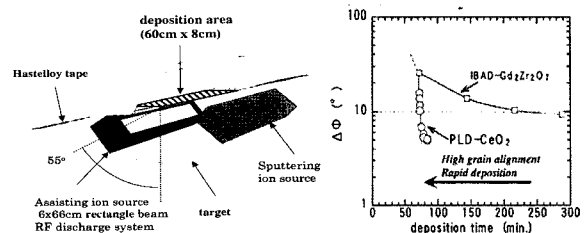
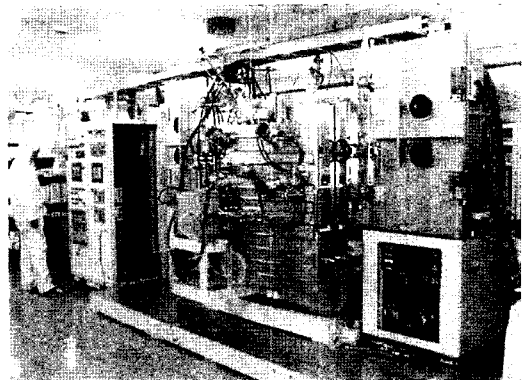


그림 3. 일본 Fujikura사의 IBAD system 사진과 내부 개략도 및 CeO_2 층에 관한 결과.

또한, 일본의 ISTECH 나고야 연구소에서는 금년 초 장선화를 위한 IBAD 장비를 설치하고, 이를 이용하여 100 A 이상의 임계전류를 가지는 20 m 길이 2세대 선재 결과를 발표하였다. 이상에서 살펴본 바와 같이 현재 장선화 연구는 일본이 세계를 선도하고 있다. 일본은 IBAD 외에 여러 가지 새로운 방법의 2축 배향 template을 제작하는 연구를 활발히 진행하고 있음에도 불구하고, 장선화 연구는 IBAD를 중심으로 행하고 있음을 주목할 필요가 있다.

유럽도 독일, 영국의 여러 대학을 중심으로 활발한 연구가 진행되고 있으나, 일본, 미국과 비교하여 최근의 투자는 미흡한 편이다. 가장 활발한 연구는 독일의 Göttingen 대학의 결과로 IBAD YSZ template을 stainless steel 기판위에 IBS 증착법으로 제작하였다.⁽⁷⁾ 10 m 길이에 관한 결과를 금년 초 발표하였으며, 특히 주목을 끄는 사실은 이 template위에 PLD 법으로 자체 제작한 2세대 선재의 단위 넓이당 임계전류가 223 A/cm로 현재 같은 길이급에서 세계 최대치를 나타내고 있다는 점이다.(그림 4) 현재 Göttingen 그룹을 이끌고 있는 Freyhardt 교수는 C&C technology라는 회사를 설립하여 2세대 선재의 상용화를 선도하려고 노력중이다.

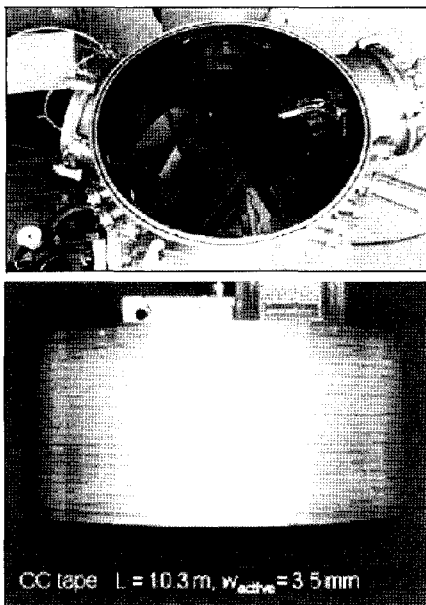


그림 4. 독일 Göttingen 그룹의 초기 IBAD 시스템 사진 및 IBAD YSZ 위에 제작된 2세대 YBCO 선재의 사진.

독일의 경우 이러한 형태의 대학에서 발전한 기술 중심의 초전도 회사가 많은데, 예로 co-evaporation 기술의 Theva, microwave filter를 제작하는 Cryoelectra등을 들 수 있으며 이러한 회사들도 부분적으로 2세대 선재 연구를 진행하고 있다. 그 외에 독일의 Siemens사도 IBAD 연구를 수행하고 있으며, 20 cm 정도의 단선에 대해 임계전류 105 A 이상의 우수한 결과를 발표하고 있다. 전반적으로 유럽은 Göttingen 그룹을 제외하곤 창의적인 단선 쪽의 연구에 중심이 맞추어져 있다고 할 수 있다.

일본과 더불어 2세대 초전도 선재에 대한 연구가 가장 활발한 미국의 경우 ORNL(Oak Ridge national laboratory), LANL 등 국립연구소를 중심으로 대형 국가과제가 할당되어 대학은 기초연구, 국립연구소는 응용연구, 이에 참여한 IGC-superpower사, AMSC사 등 기업은 산업화를 위한 장선화 연구 형태로 기술 개발이 진행되고 있다. 특히 IBAD 연구는 LANL을 중심으로 연구가 진행 중이며, 연구의 가속화를 위하여 LANL에 research park이 조성되어 현재 장선화 연구를 가속중에 있으며, IGC-superpower사가 적극적으로 참여하고 있다.

LANL은 IBAD YSZ로 세계 최초로 1 m 길이의 결과를 발표한 바 있으며, 최근에는 100 배 이상 속도 개선이 가능한 IBAD MgO 연구에 주력하고 있다. 주요 연구 성과를 살펴보면, 첫째로 IBAD를 위한 금속 모재의 표면 거칠기와 2축 배향성 사이에 밀접한 관계를 갖는다는 사실을 발견하고, 쉽게 평탄한 금속 기판을 얻을 수 있는 reel to reel electro-polishing 방법을 개발하였다. 둘째로, IBAD-MgO template 층과 금속 기판과의 접착력, 평탄화 등을 고려하여 금속 기판위에 비정질층을 증착하고 있으며, 현재 초기의 Si_xN_y 에서 Y_2O_3 로 물질을 대체하여 사용하고 있다. 셋째로 IBAD MgO template은 10 nm 이하의 얇은 두께에서 최적의 2축 배향성을 갖는 경향이 있으므로 in-situ RHEED를 부착하여 실시간 최적화를 시도하고 있다. 넷째로 IBAD-MgO 층의 평탄화와 더 좋은 결정성을 위하여 homo-epi 층을 증착하는 연구도 수행하였다. 그 외에 다양한 buffer층에 관한 연구와 2축 배향성의 원인을 찾는 연구도 중점적으로 수행하여 최근에는 단결정 수준(5°

이하의 in-plane texture)의 결과를 발표하기도 하였으나, 장선화에 관한 연구는 상대적으로 부족한 추세이다[8][9]. (그림 5)

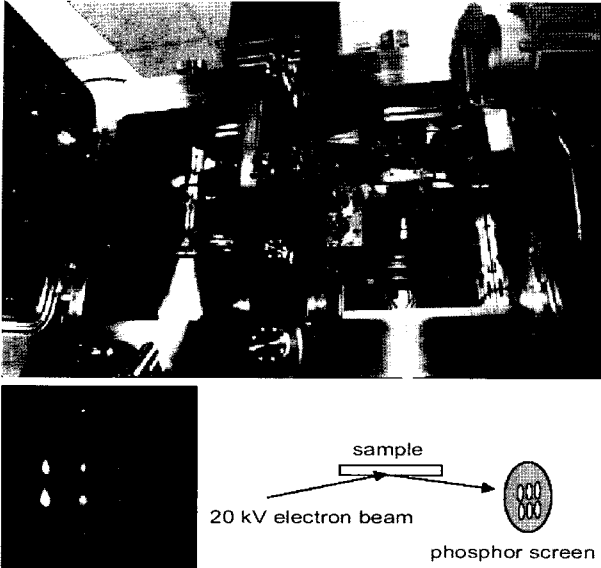


그림 5. LANL research park에서 운용중인 IBAD system 사진. Ion source, RHEED gun 및 screen을 챔버 내부에서 관측할 수 있다. 아래는 in-situ RHEED의 schematic 및 MgO IBAD template의 RHEED pattern.

미국의 기업중에서는 IGC-superpower가 IBAD template에 관한 연구가 가장 활발하다. 단 사기업이므로 보안등의 이유로 주요 연구과정을 생략한 결과 위주의 발표를 하고 있어서 현재 가장 앞선 결과를 정확히 파악하기는 힘들다. 금년 1월 미국 Florida에서 개최된 DOE(Department of energy) 초전도 wire workshop 결과로부터 살펴보면, 10 m 급에서 100 A 이상의 임계전류를 PLD 및 MOCVD 방법으로 발표한데서 유추할 수 있듯이 10 m 이상의 우수한 IBAD template을 제작하고 있음을 확인할 수 있다.^[10] IGC-superpower사는 이미 2000년 pilot scale의 IBAD system을 구축하였으며, 구체적 방법을 밝히지 않는 자체의 금속 모재 polishing 시설을 구축하고 있다. 따라서 현재 수십 m 급 이상의 우수한 IBAD template을 제작하고 있다고 예측된다. 한편 RABiTS 연구에 주력하고 있는 AMSC 사도 짧은 길이의 LANL의 IBAD MgO template 위에 자사의 MOD 방법으로 2세대 선재를 제작하여 IBAD MgO 방법에 대한 관심을 표명하고 있다.



그림 6. IGC-SuperPower사의 pilot scale IBAD template 증착 설비(위)와 증착 챔버의 내부(아래).

4. 결 론

지금까지 IBAD 기술 및 2세대 고온초전도 선재용 IBAD template 기술 개발 현황에 대하여 살펴보았다. 앞에서 밝힌 바와 같이 차세대 초전도 응용 기기의 핵심 기반재료로 자리 잡을 2세대 선재에서 현재 가장 앞서나가고 있는 template 기술은 IBAD 기술이다. 또한, 비정질 또는 다결정 기판위에 2축 배향성을 갖는 template을 제작하는 IBAD 기술은 고온초전도 선재를 위해 개발되었지만, 반도체, display, 자성 재료 등 첨단 산업에 연관되어 발전되어 나아가리라 예측할 수 있다.

초기에는 고가 장비의 비용 문제 등을 이유로 일부 채용을 꺼려하기도 했지만 현재 경제성에 대한 검토를 하더라도 IBAD 공정을 채택하지 못할 이유는 없다. 특히 속도와 성능 면에서 뛰어난 IBAD MgO template 기술이 정착될 경우, 모든 고온초전도 기기에 응용이 가능한 10 \$/kAm의 가격 달성도 가능하리라 예측된다.

장선화에 대한 연구가 2002년부터 본격적으로 시작되었지만 아직까지는 수십m 급에 대한 결과가 최대이다. 실용화를 위해서는 최소 100 m 이상의 단위 길이, 실질적으로는 1 km 단위 길이를 갖는 선재가 바람직하다. 이를 위해서는 현재 가지고 있는 문제에 대한 본질적 연구와 더불어 엔지니어링 측면의 접근도 필요하리라고 판단된다. 앞으로 실용화를 위해서는 신재료, in-situ monitoring 및 control 분야를 중심으로 IBAD template은 발전해 나갈 것이며, 2010년 이전에 가시적인 2세대 선재 시장 형성이 예측된다.

현재 국내에서는 IBAD template 기술이 막 태동하는 단계로 가시적인 연구 성과는 없는 형편이다. 하지만 기존의 고온초전도 박막에 대한 폭넓은 연구 기반과 집중적 투자를 바탕으로 창의적 연구를 수행할 경우, 2세대 초전도 선재의 상용화가 가시화될 것으로 예측되는 2007년 이전에는 선진국과 대등한 위치에 설 수 있을 것으로 전망한다.

참고문헌

- [1] David Larbalestier, Alex Gurevich, D. Matthew Feldmann and Anatoly Polyanskii, "High- T_c superconducting materials for electric power applications", *Nature* 414, pp 368 ~ 377, Nov. 2001.
- [2] J. M. E. Harper, J. J. Cuomo, R. J. Gambino, and H. R. Kaufman, in *Ion Bombardment Modification of Surfaces*, edited by O. Auciello and R. Kelly (Elsevier, New York, 1984).
- [3] Y. Iijima, N. Tanabe, O. Kohno, and Y. Ikeno, "In-plane aligned $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ thin films deposited on polycrystalline substrates", *Appl. Phys. Lett.* 60, pp 769 ~ 771, Feb. 1992.
- [4] C. P. Wang, K. B. Do, M. R. Beasley, T. H. Geballe, and R. H. Hammond, "Deposition of in-plane textured MgO on amorphous Si_3N_4 substrates by ion-beam-assisted deposition and comparisons with ion-beam-assisted deposited yttria-stabilized-zirconia", *Appl. Phys. Lett.* 71, pp 2955~2957, Nov. 1997.
- [5] L. Dong, L. A. Zepada-Ruiz and D. J. Srolocitz, "Sputtering and in-plane texture control during the deposition of MgO", *J. Appl. Phys.* 89, pp 4105~4112, Apr. 2001.
- [6] Y. Iijima, K. Kakimoto, T. Saitoh, T. Kato, T. Hirayama, "Temperature and RE elemental dependence for $ZrO_2-RE_2O_3$ oxide film growth by IBAD method", *Physica C* 378-381, pp 960~964, 2002.
- [7] J. Wiesmann, K. Heinemann, H. C. Feyhardt, "Large-area deposition of biaxially textured YSZ buffer layers using and IBAD-process", *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B* 120, pp 290~292, 1996.
- [8] J. R. Groves, et. al., "High critical current density $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ thick films using ion beam assisted deposition MgO bi-axially oriented template layers on nickel-based superalloy substrates", *J. Mater. Res. Vol. 16, No. 8*, pp 2175~2178, Aug. 2001.
- [9] S. R. Foltyn, et. al., "Strongly coupled critical current density values achieved in $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ coated conductors with near-single crystal texture", *Appl. Phys. Lett.* 82, pp 4519~4521, June 2003.
- [10] IBAD template을 포함한 coated conductor 전반에 관한 최근 정보는 DOE에서 관리하는 다음의 web site를 참조. <http://www.eere.energy.gov/superconductivity/>

저자이력



문승현 (文勝鉉)

1964년 9월 23일생, 1987년 서울대학교 물리학과 졸업, 1994년 동 대학원 졸업(이학박사), 1994~2002년 LG전자기술원 선임연구원, 책임연구원, 2002~현재, 서울대학교 재료공학부 BK계약교수