

PVD 법에 의한 Coated Conductor 기술개발 현황 및 전망

박 찬
한국전기연구원 재료응용연구단

1. 서 론

유연성 있는 얇은 금속 테입위에 증착된 다층의 산화물 박막으로 이루어진 coated conductor는 2세대 고온초전도 선재로 알려져 있으며, powder-in-tube 공정으로 제조되는 1세대 고온초전도 선재보다 통전능력과 고자장 특성이 우수하다. 통전능력이 우수한 장선의 coated conductor를 경제적으로 제조하는 기술의 개발은 액체질소온도에서 사용 가능한 초전도 대전력기기의 실용화를 위하여 반드시 필요하며, 이를 위한 노력이 미국과 일본을 중심으로 활발하게 진행되고 있다. 실제로 미국과 일본에서는 고온초전도 재료 분야에서 사용되는 대부분의 연구비가 coated conductor 관련 사업에 투입되고 있다. 완충층, 초전도층 및 보호층 등으로 이루어진 다층 박막은 다양한 박막 증착 공정으로 제조되고 있다. 장선의 선재 제조를 위하여 연속 박막 증착이 필요하며, 보다 경제적으로 특성이 우수한 박막을 장선으로 제조하는 공정을 개발하는 것이 요구된다. 박막 제조 공정은 물리적증착 (physical vapor deposition - PVD)과 화학적 증착 (chemical vapor deposition - CVD)으로 나눌 수 있다. pulsed laser deposition (PLD), ion beam sputtering 등의 PVD 공정은 CC 개발초기에 사용되었고, 이후 evaporation과 sputtering 등의 PVD 공정이 사용되고 있다. 이 글에서는 texture template, 완충층 및 초전도층의 제조에 PVD 공정이 어떻게 사용되고 있는지를 간략하게 알아본다.

2. texture template - PVD

coated conductor 선재제조에 사용되는 대표적인 초전도 재료인 YBCO는 입계의 misorientation 각도가 증가할수록 통전능

력이 급격히 저하하는 성질을 가진다. 유연성, 통전능력, 장선이라는 조건들이 요구되는 초전도 선재를 제조하기 위하여 초전도층 입계의 misorientation 각도를 작게 만들어야 한다 (초전도층을 이축배향성을 가지게 만들어야 한다). 초전도층의 texture를 어디서부터 어떻게 가져오느냐에 따라 RABiTS (rolling assisted biaxially textured substrate)[1], IBAD (ionized beam assisted deposition)[2], ISD (inclined substrate deposition)[3], ITEX (ion-beam texturing)[4] 등의 공정이 사용되고 있다 (그림 1). 냉간압연 및 열처리공정으로 이축배향성을 가지는 금속테입을 제조하고, 그 위에 같은 이축배향성을 유지하면서 완충층과 초전도층을 증착하여 texture된 초전도층을 제조하는 RABiTS, 다결정 금속테입위에 증착중인 산화물 박막에 이온빔을 특정 각도로 주사하여 texture 된 산화물 박막을 증착하는 (ion beam

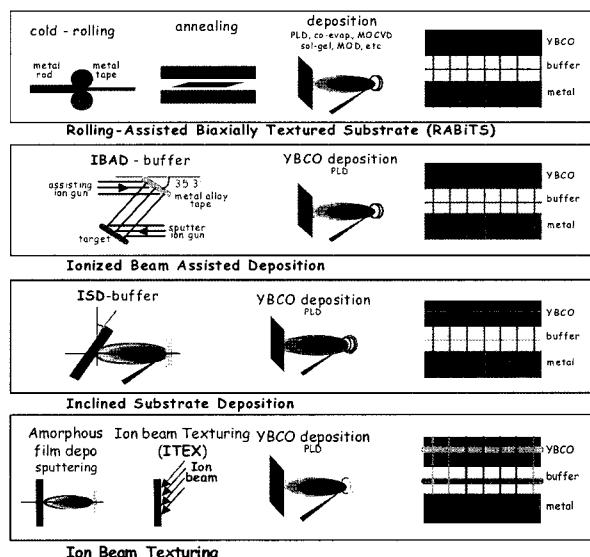


그림 1. texture template에 따른 coated conductor 제조 공정.

sputtering, evaporation) IBAD, 다결정 금속테입을 타겟 표면과 특정각도로 기울여서 증착되는 (evaporation, pulsed laser deposition) 산화물 박막의 texture를 얻는 ISD, 다결정 금속기판위에 비정질 산화물 박막을 증착한 (sputtering) 후 이온 빔을 주사하여 texture된 결정질 산화물 박막을 얻는 ITEX 등의 공정으로 texture template을 만들고, 같은 texture를 유지하면서 완충층과 초전도층을 증착하여 texture된 초전도층을 제조한다.

이축배향성을 가지는 금속테입을 사용하는 RABiTS를 제외한 IBAD, ISD, ITEX 등의 공정은 다결정금속 테입과 그 위에 인위적으로 texture 시킨 산화물 박막을 이용한다는 공통점이 있으며, sputtering, evaporation, pulsed laser deposition 등의 증착방법이 사용되고 있다. 이 가운데 길이와 초전도 특성 두가지 면에서 가장 좋은 결과를 내고 있는 IBAD 공정은 본지의 다른 논문에서 상세히 다루어 질 것이다. ISD와 ITEX 공정은 texture 되는 정도가 IBAD와 RABiTS의 경우보다 좋지 않은 이유로, 주목을 받지 못하고 있다.

3. 완충층 - PVD

texture template과 초전도층 사이에 산화물 다층 박막으로 이루어진 완충층이 필요하다. 완충층은 texture template의 집합 조직을 초전도층까지 전달하는 역할, 금속기판의 금속이 초전도층으로 확산되어 초전도층의 전기적 특성을 열화시키는 것을 막아주는 확산장벽으로의 역할, 초전도층과 금속기판의 격자상수 및 열팽창정도의 차이를 완화해주는 역할 등을 수행한다. RABiTS의 경우 초기에는 고온에서 금속기판의 산화를 방지하면서 기판과 결정학적인 관계를 유지하며 산화물 박막을 증착하기 위하여 PLD가 사용되었다. PLD를 이용하여 완충층으로 적합하다는 것이 검증되면 PLD보다 경제적으로 박막을 증착할 수 있는 sputtering이나 evaporation으로 완충층 제조가 이루어진다. 그림 2는 미국 오크리지 국립연구소에서 장선의 완충층을 제조하기 위하여 사용되는 박막증착 장비들이다. RABiTS 공정에

서 가장 많이 사용되는 완충층 구조는 CeO₂/YSZ/Y₂O₃이며, 금속기판위에 직접 증착되는 Y₂O₃는 evaporation, CeO₂와 YSZ는 sputtering 공정으로 제조된다. 완충층 구조를 더 간단하게 만들기 위한 연구도 PLD를 이용하여 이루어지고 있다. IBAD의 경우, texture template 위에 증착되는 완충층은 evaporation이나 PLD 공정으로 제조된다. PVD보다 경제적으로 완충층을 증착할 수 있는 sol-gel dip coating 등의 공정으로 완충층을 제조하려는 노력이 진행 중이지만, 수 미터 이상의 장선화가 성공되었다고 보고된 적은 없다.

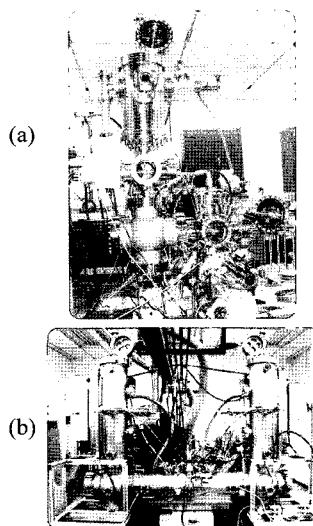


그림 2. 미국 오크리지 국립연구소에서 장선의 완충층을 제조하기 위하여 사용되는 박막 증착 장비 (a) evaporation, (b) sputtering.

4. 초전도층 - PVD

Coated conductor의 초전도층은 PLD (미국 Los Alamos 국립연구소, 미국 IGC-SuperPower, 일본 Fujikura, 독일 C&C technology), co-evaporation (미국 Stanford 대학교, 독일 THEVA), co-evaporation/post conversion 2단계 공정 (미국 Oak Ridge 국립연구소), MOD (AMSC), MOCVD (미국 IGC-SuperPower, 일본 Fujikura) 등의 공정으로 제조되고 있으며, AMSC의 MOD와 IGC-SuperPower의 MOCVD를 제외하면 모든 수 미터 이상의 성능이 우수한 CC의 제조는 PLD 공정으로 이루어졌다 (표 1).

제2세대 고온초전도 선체 특집

표 1. 수 미터 이상 길이의 coated conductor 결과.

Institution	length	Texture	YBCO depo	J_c (A/cm ²)	I_c
AMSC	10 m	RABITS	MOD		180A
IGC	10 m	IBAD	PLD/MOCVD		106A
Fujikura	46 m	IBAD	PLD	0.5M	74A
Fujikura	100 m	IBAD	PLD		30A
ISTEC	20m	IBAD	PLD		100A
C&C Tech	10 m	IBAD	PLD	2.2M	78A

PLD는 YBCO와 같은 복잡한 조성의 박막을 증착하는데 많은 장점을 가지는 공정으로 잘 알려져 왔고, coated conductor 개발 초기부터 초전도층 증착을 위하여 사용되어 왔다. 1997년 미국 Los Alamos 국립연구소에서 세계최초로 1 m 길이의 CC를 제조하는데에도 PLD가 사용되었으며, 2003년 Fujikura에서 발표한 100 m CC도 초전도층이 PLD로 제조되었다. 우수한 성능을 가지는 CC 제조에 PLD가 성공적으로 사용되어 왔지만, PLD공정에 소요되는 비용과 증착속도 등의 이유로, CC의 대량생산에 PLD가 사용될 것이라고 믿는 사람은 많지 않다. 미국 Los Alamos 국립연구소의 S. Foltyn 그룹에서는 산업용 엑시머 레이저(그림 3-a))를 이용하여 초전도특성을 유지하면서 초전도층을 ~5.5 um/min이라는 아주 빠른 속도로 증착하는 기술을 개발하였다. 이것은 1um 두께의 초전도층을 시간당 17m 길이로 제조할 수 있는 속도이며, 산업용 레이저 한대가 1년에 100km 이상의 초전도층을 제조할 수 있다는 것을 보여주었다. Los Alamos 의 결과를 토대로 IGC-SuperPower에서는 대형 PLD 장비(그림 3-b)를 설치하여 장선의 CC를 제조하기 위한 연구가 진행 중이다. 이러한 결과가 보고되었지만 여전히 PLD장비의 초기 투자 비용과 운영 비용 등을 고려하면 PLD는 경제적으로 CC를 제조할 수 있는 공정이 아니라는 견해가 있다. PLD 보다 더 경제적인 공정이라고 알려져 있는 MOD, MOCVD와 같은 화학적 공정이 실제로 얼마나 더 제조비용 상의 잇점이 있는지, PLD 공정은 얼마나 비경제적인지에 관한 체계적

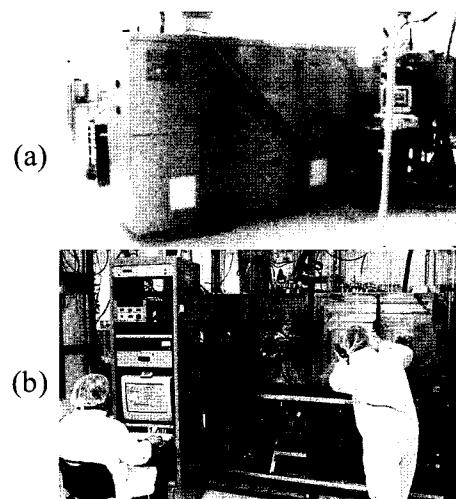


그림 3. IGC-SuperPower에서 사용되고 있는 (a) 산업용 엑시머 레이저와 (b) 대형 PLD 장비.

연구가 이루어져야만, 제조비용을 둘러싼 논란이 사라질 수 있을 것이다.

Stanford대학교와 독일 THEVA (그림 4)에서는 co-evaporation 방식으로 초전도층을 제조하는 연구가 진행 중이지만, 장선의 CC를 제조하는 데에는 성공적이지 못하다. 한국과학기술원 물리학과에서는 압력이 다른 두개의 챔버와 장선의 테입을 감은 원통형의 드럼을 사용하여 co-evaporation 방식으로 CC를 제조하는 연구가 진행중이다.

Pulsed electron beam deposition (PED)은 pulsed laser 대신 pulsed electron beam을 사용하는, PLD와 유사한 박막증착공정으로, electron beam source가 불과 수년전에 상용화되면서 PLD보다 경제적으로 초전도층을 증착할 수 있을 것이라고 기대되었지만, source의 불안정성과 사용할 수 있는 산소압력범위의 제한 등의 이유로 아직은 우수한 결과들이 나오고 있지 않지만, 계속 지켜볼 만한 공정이라고 할 수 있다.

4. 결 론

PLD, sputtering, evaporation, PED 등의 PVD 공정은 CC의 완충층 및 초전도

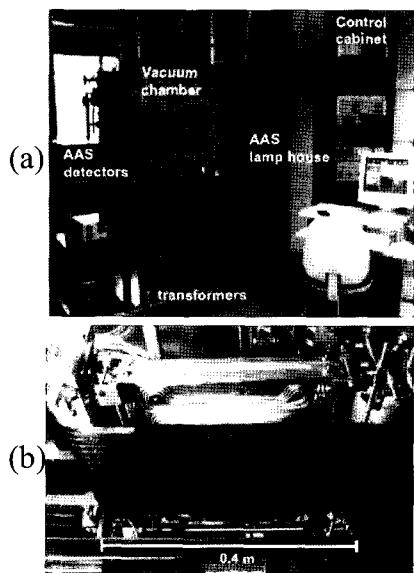


그림 4. 독일 THEVA에서 사용되고 있는 대형 co-evaporation 장비 (a)외관, (b) 금속 테입 이동장치.

층의 증착에 성공적으로 사용되고 있다. 원 층 층 증착에 사용되는 evaporation, sputtering 등의 공정은 박막의 특성과 제조비용 면에서 받아들여지고 있지만, 초전도 층의 증착을 위한 PVD의 이용은 아직도 논의가 진행 중이라고 할 수 있다. 어느 공정이 초전도층 증착공정으로 CC community에서 받아들여질지는 지금까지의 결과가 아니라 앞으로 나올 성과들이 결정하게 될 것이다. CC제조에 사용되고 있는 모든 공정들은 장점과 단점을 동시에 가지는데, 그 단점들이 어떻게 극복되어 가느냐가 최종 승자를 결정하게 될 것이다.

참고문헌

- [1] D. P. Norton, A. Goyal, J. D. Budai, D. K. Christen, D. M. Kroeger, E. D. Specht, Q. He, B. Saffian, M. Paranthaman, C. E. Klabunde, D. F. Lee, B. C. Sales, and F. A. List, Science 274, p755, 1996; A. Goyal, D. P. Norton, J. D. Budai, M. Paranthaman, E. D. Specht, D. M. Kroeger, D. K. Christen, Q. He, B. Saffian, F. A. List, D. F. Lee, P. M. Martin, C. E. Klabunde, E. Hartfield, and

V. K. Sikka, Appl. Phys. Lett. 69, p1795, 1996.

- [2] Y. Iijima, N. Tanabe, O. Kohno, and Y. Ikeno, Appl. Phys. Lett. 60, p769, 1992; R. P. Reade, P. Berdahl, S. M. Garrison, and R. E. Russo, Appl. Phys. Lett., 61, p2231 1992.
- [3] K. Fujino, N. Yoshida, S. Okuda, T. Hara, T. Ohkuma, and H. Ishii, Advances in Superconductivity VII, p.629, Springer, Tokyo, 1995; K. Hasegawa, K. Fujino, H. Mukai, M. Konishi, K. Hayashi, K. Sato, S. Honjo, Y. Sato, H. Ishii, and Y. Iwata, Applied Superconductivity, 4, p487, 1996.
- [4] R. P. Reade, P. Berdahl, and R. E. Russo, Appl. Phys. Lett. 80, p1352, 2002; Paul Berdahl, Ronald P. Reade, Jinping Liu, Richard E. Russo, Les Fritzemeier, David Buczek, and Urs Schoop, Appl. Phys. Lett. 82, p343, 2003.

저자이력



박 찬(朴 燉)

1964년 4월 30일생 1986년 서울대학교 무기재료 공학과 졸업, 1988년 동 대학원 졸업 (공학 석사), 1996년 New York State College of Ceramics at Alfred University 졸업 (공학박사), 1996~2000년, 미국 Oak Ridge 국립연구소 Research Associate, 2000~2001 미국 IGC-SuperPower senior materials scientist, 2001 ~ 현재 한국전기연구원 선임 연구원