

Development of a PLD heater for continuous deposition and growth of superconducting layer

Jeongtae Kim^{a, b}, Insung Park^a, Gwantae Kim^a, Taekyu Kim^{b, *}, and Hongsoo Ha^{a, *}

^a Cryogenic Apparatus Research Center, Korea Electrotechnology Research Institute, Changwon, Korea
^b Dept. of Nanomechatronics Engineering, Pusan National University, Busan, Korea

(Received 12 June 2023; revised or reviewed 28 June 2023; accepted 29 June 2023)

Abstract

Superconducting layers deposited on the metal substrate using the pulsed laser deposition process (PLD) play a crucial role in exploring new applications of superconducting wires and enhancing the performance of superconducting devices. In order to improve the superconducting property and increase the throughput of superconducting wire fabricated by pulsed laser deposition, high temperature heating device is needed that provides high temperature stability and strong durability in high oxygen partial pressure environments while minimizing performance degradation caused by surface contamination.

In this study, new heating device have been developed for PLD process that deposit and growth the superconducting material continuously on substrate using reel-to-reel transportation apparatus. New heating device is designed and fabricated using iron-chromium-aluminum wire and alumina tube as a heating element and sheath materials, respectively. Heating temperature of the heater was reached over 850 °C under 700 mTorr of oxygen partial pressure and is kept for 5 hours. The experimental results confirm the effectiveness of the developed heating device system in maintaining a stable and consistent temperature in PLD. These research findings make significant contributions to the exploration of new applications for superconducting materials and the enhancement of superconducting device performance.

Keywords: reel-to-reel PLD, 2G HTS wire, heating device, FeCrAl wire

1. 서 론

2세대 고온초전도 선재는 임계전류밀도의 향상을 위하여 2축 배향성을 가진 다층구조의 기판 위에 초전도층이 증착된 구조를 가지고 있다. [1] 이 때 초전도층을 증착하기 위해 다양한 박막증착법이 사용되고 있으며 특히 PLD 공정은 비교적 용이하게 자속고정점을 초전도층 내에 형성할 수 있어서 자기장 특성이 우수한 선재를 제조하기 위해 많이 사용되고 있다. PLD공정으로 초전도물질을 증착 하려면 700~800 °C 사이의 고온 및 높은 산소 분압 분위기를 만들어야 하므로 높은 내산화성과 내구성을 가진 가열장치가 필요하다. [1-3] 지금까지 PLD용 가열장치는 주로 할로겐 램프[4] 또는 탄화규소 히터[5]를 사용해 왔다. 하지만 할로겐 램프 방식은 가열장치에서 방사되는 빛으로 가열하는데 가열장치 표면이 비산 물질들로 인하여 오염되면 성능이 급격하게 떨어지는 단점이 존재하였고 탄화규소 방식은 단일 시편을 증착하기 위한 가열장치로 reel-to-reel 방식을 사용한 연속 증착에는 적합하지 않다.

따라서 본 연구에서는 reel-to-reel PLD공정을 이용하여 연속적으로 초전도층 증착이 가능한 새로운 가열장치를 설계 및 제작하고자 하였다. 열원 재료로 많이 사용되고 있는 철-크롬-알루미늄(일명 Kanthal A1) 선을 코일 형태로 감아서 열원으로 사용하였으며, 기판 가열 후 고온 유지 및 증착에

따른 가열장치 표면의 오염에 의한 성능 저하를 최소화하고자 하였다.

2. 본 론

2.1. PLD용 열원 적합성 평가

2세대 고온초전도 선재 제조를 위하여 PLD공정으로 고온초전도 물질을 증착 할 때 기판온도 및 산소 분압은 초전도층의 결정성장을 제어하여 높은 임계전류밀도를 가진 고온초전도 선재를 제조하는데 매우 중요한 변수이다.[6] 따라서 높은 산소 분압에서 고온을 유지할 수 있는 우수한 성능의 가열장치가 필수적으로 요구되고 있다. 기존에 사용되고 있는 할로겐램프나 탄화규소를 열원으로 사용하는 가열장치가 아닌 새로운 PLD용 가열장치를 개발하고자 하였으며 먼저 가능성 확인을 위한 기초 실험을 진행하였다.

가열장치 구성 재료들의 사용 적합성 및 발열 특성을 확인하기 위하여 시험용 가열장치를 제작하였다. PLD공정으로 고온초전도 선재 제조 시 가열장치는 일반적으로 산소 분압 500 mTorr 이하, 최대 가열 온도 800 °C에서 가동되고 본 실험에서는 보다 넓은 PLD 공정 조건 확립을 위하여 가열온도 및 산소 분압을 각각 850 °C, 700 mTorr로 높게 설정하여 실험하였다. [7-11] 상대적으로 높은 산소 분압 하에서 고온으로 가열되기 때문에 열원재료는 우수한 내산화성이 요구되어 단위면적당 높은 발열량과

* Corresponding authors: tgkim@pusan.ac.kr
hsha@keri.re.kr

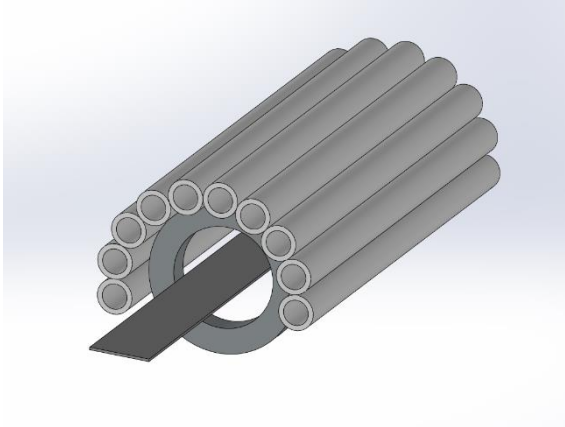


Fig. 1. Heater design for preliminary test.

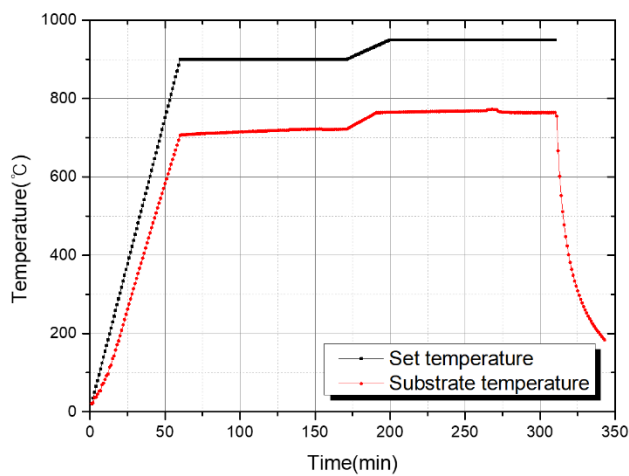


Fig. 2. The results of heating test of graph preliminary test heater in high vacuum.

비교적 저렴한 Kanthal A1 선을 채택하고, 이 선을 코일 형태로 권선하여 단위면적당 발열량을 높이고자 하였다. 촘촘히 배열되는 가열 코일 사이의 절연 및 형태유지, 비산물질에 대한 보호를 위해 알루미나(Al_2O_3) 튜브를 사용하였다. 알루미나는 전기절연 특정 및 고온 내구성이 우수하고 뛰어난 화학적 기계적 안정성을 가지고 있어 가열장치에 사용하기 적합하였다.

기초 실험을 위하여 아래 Fig. 1과 같이 설계하였으며 가열장치 제작에 사용된 알루미나 절연 튜브의 크기 및 수량은 각각 길이 100 mm, 외경 8mm, 내경 5 mm, 10 개였다. 열원으로 사용된 Kanthal A1 선의 사양은 전원장치의 성능을 고려하여 직경 1 mm, 길이 3.5 m, 최대 통전 전류 17 A, 단위길이당 저항은 상온(20 °C)에서 1.847 Ω /m이고, Kanthal A1 선을 각 알루미나 튜브에 감아서 삽입하였으며 전체 10개의 튜브에 직렬로 관통시켰으며 용이하게 금속기판을 가열하기 위해서 Fig. 1과 같이 C자형 터널 구조로 설계하였다. 이는 선재 폭방향으로의 온도 균일성 유지와 선재가 이송될 때 선재 길이방향의 가열시간을 늘려 증착 구간 전에 기판을 최적 온도에 도달시키기 위함이다.

2.2. PLD용 열원 적합성 평가 결과

가열장치의 성능 평가를 위해서 Fig. 2와 같이 3×10^{-5}

Torr의 고진공 분위기에서 가열장치를 900 °C로 가열한 후 2시간 유지하였다. 이때 금속기판 위치에 장착한 열전대를 통하여 온도를 확인하였고 최대 가열온도 확인을 위하여 950 °C까지 추가 가열 후 2시간을 유지하였다. 가열장치가 설정온도 900 °C에 도달하였을 때 금속기판 위치에서의 온도는 716 °C였으며, 2시간 유지 시 온도 편차는 ± 5.7 °C였다. 그리고 설정온도 950 °C에서 금속기판 위치 온도는 766 °C였으며 2시간 유지 시 ± 4 °C의 편차가 존재하였다. 이에 따라 온도가 안정적으로 유지되는 것으로 판단하였다. 가열장치의 온도제어를 위한 열전대와 실제 가열되는 금속기판 위치의 열전대에서 측정된 온도는 서로 약 200 °C의 차이가 발생하였다. 이는 가열장치의 알루미나 튜브와 직접 접촉하고 있는 제어용 열전대의 온도보다 금속기판 위치에서 측정되는 온도가 낮음을 알 수 있으며 PLD용 히터 설계 시 온도 제어용 열전대의 위치에 따라 기판 온도와의 차이가 클 수 있음을 확인했고, 본 가열장치의 핵심 구성요소인 Kanthal

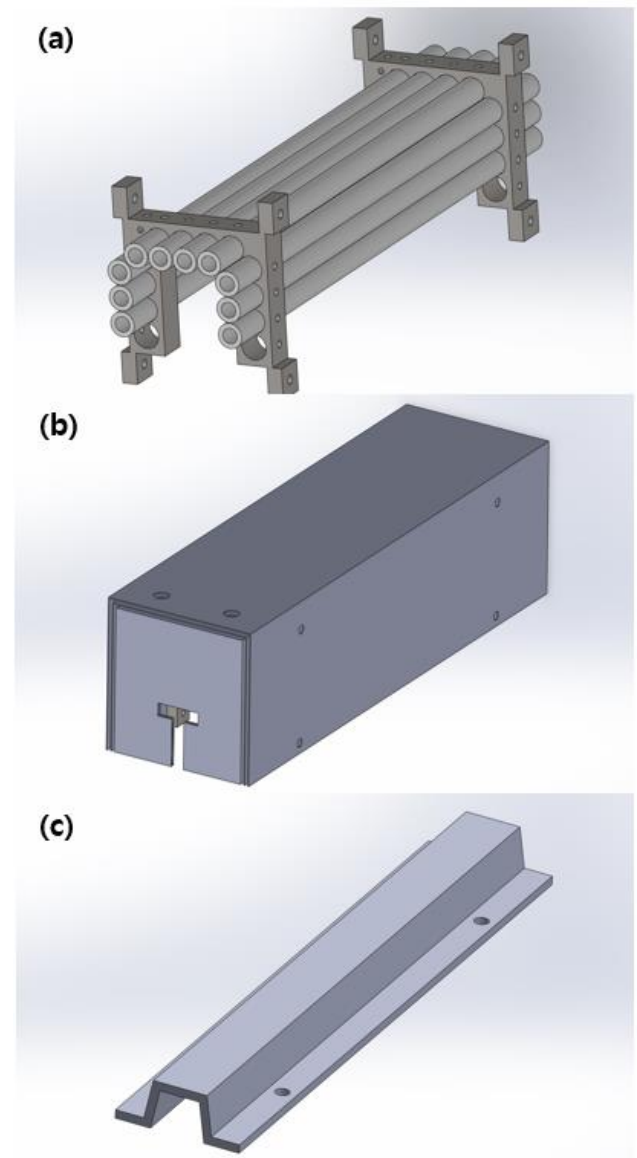


Fig. 3. Design of heating device for reel-to-reel PLD (a) heating elements and alumina tube assembly, (b) multi-thermal shield, (c) quartz deposition shield.

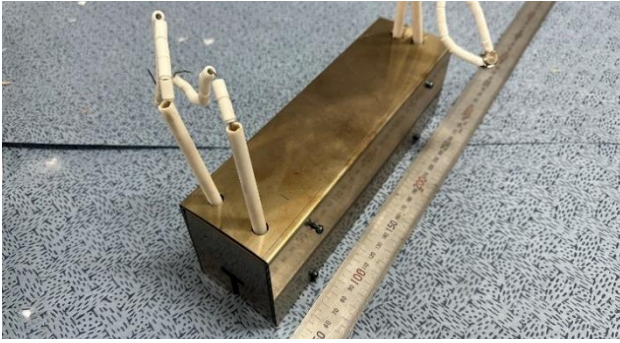


Fig. 4. Heater assembly with multi-thermal shield.

A1열원과 알루미나 튜브가 우수한 고온 내구성을 가짐을 확인하였으며 따라서 reel-to-reel PLD공정에 적용 가능함을 알 수 있었다.

2.3. PLD용 가열장치 설계 및 제작

Reel-to-reel PLD공정을 위한 가열장치의 설계 조건은 예비실험에서 적용된 가열 조건과 동일하게 적용하여 설계하였다. 전체 가열장치의 길이는 200mm로 하였으며 Fig. 3(a)와 같이 히터를 구성하였다. 예비실험에서 사용한 알루미나 튜브와 길이만 달리 하였으며(길이 180 mm, 외경 8 mm, 내경 5 mm) Kanthal A1 선을 전극 리드 1m씩을 양쪽에 남기고 코일형태로 감아 알루미나 튜브 내부로 연속적으로 관통시켜 가열장치를 제작하였다. 이 가열체들을 고정하는 치구는 높은 내열성을 가진 Ni 합금을 사용하였다.

가열장치에서 금속기판 가열 이외의 방향으로 방출되는 열은 진공 챔버 및 각종 부품에 악영향을 미치므로 열 영향을 최소화하기 위해 열 차폐구조를 설계하였다. 열 차폐막은 내식성이 우수한 스테인리스 스틸로 제작되었으며 Fig. 3(b)와 같이 다중구조로 설계 및 제작되었다. 열 차폐 구조를 포함한 가열장치의 총 크기는 PLD 챔버 내에서 운용하기 알맞은 크기로 폭 71 mm, 길이 243 mm, 높이 71 mm으로 제작하였다.

증착 시 가열장치를 오염시키는 증착 물질을 막기 위하여 Fig. 3(c)와 같은 형태로 퀴츠(SiO₂) 재질의 증착 차폐판을 설계 및

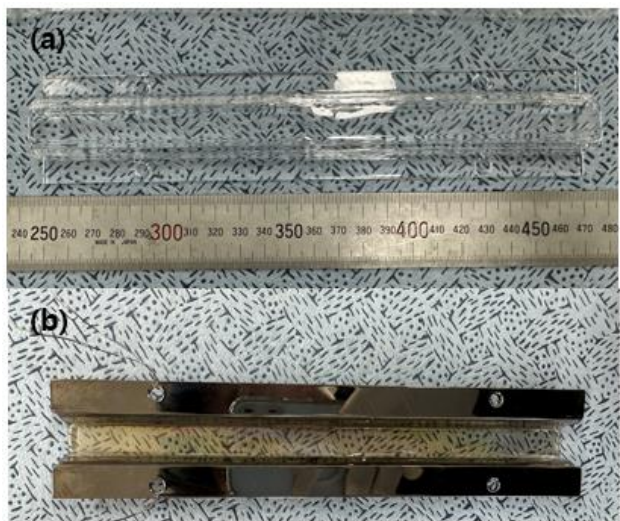


Fig. 5. Quartz deposition shield (a) before deposition (b) after deposition.

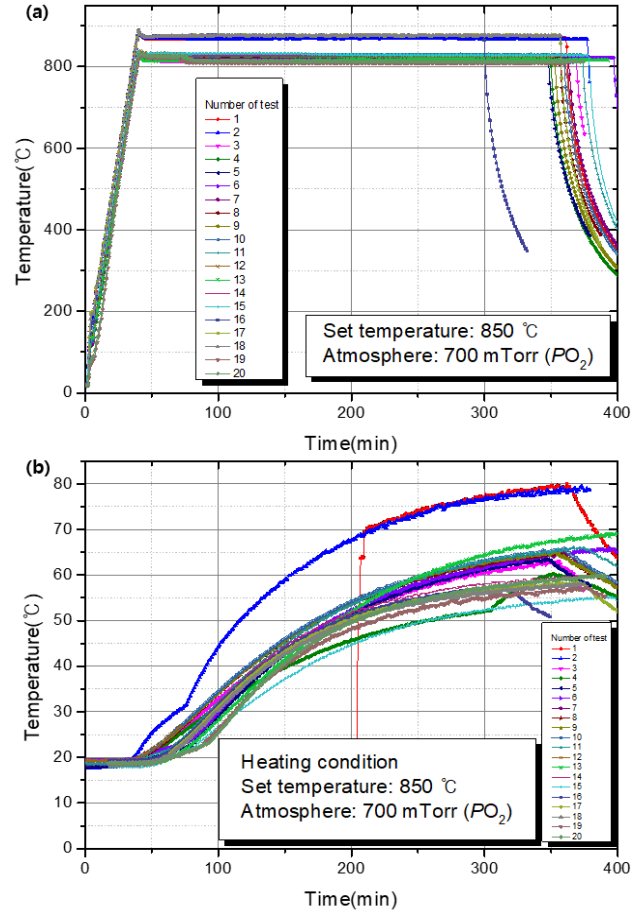


Fig. 6. (a) The result of heating test of heater for reel-to-reel PLD, (b) Heat affection of PLD chamber by heat dissipation of the heater.

제작하였다. 증착 차폐판은 금속기판으로 열을 용이하게 전달하고 증착 물질로부터 히터의 오염을 방지하도록 설계되었으며, 최대한 증착에 방해가 되지 않기 위해 선재 위치에서 하부로 갈수록 넓어지는 사다리꼴 형상으로 설계 및 제작하였다.

2.4. 가열장치 성능 평가

Fig. 4와 같이 reel-to-reel PLD공정에 사용될 가열장치의 성능 평가를 위해 3×10^{-5} Torr의 고진공 분위기에서 850 °C까지 가열장치를 가열한 다음 산소 분압 700 mTorr의 분위기에서 5시간 동안 유지하였고 가열장치의 내구성 평가를 위하여 총 20회 시험을 실시하였다. 동시에 열 차폐막의 성능을 평가하기 위하여 PLD 챔버를 열 화상 카메라로 챔버 외부 고온부를 확인하고, 열전대를 부착하여 가열장치가 챔버에 미치는 온도 영향을 확인하였다.

또한 장시간 증착에 의한 증착 차폐판의 오염에 따른 가열성능 저하를 확인하기 위해 증착 차폐판을 Fig. 5(a), (b)와 같이 증착 전후의 상태에 따른 가열 특성을 평가하였다. Fig. 6(a)과 같이 가열 설정온도 850 °C, 700 mTorr O₂ 분위기에서 5시간씩 총 20회에 걸친 가열장치의 고온, 고 산소 분압에서의 장시간 내구성 시험 결과, 가열 후 온도유지구간의 온도 편차는 평균 ± 2.16 °C로 안정적인 온도 유지 능력을 보였으며 가열 횟수를 반복함에 따라 온도유지구간 내 온도변화의 편차가

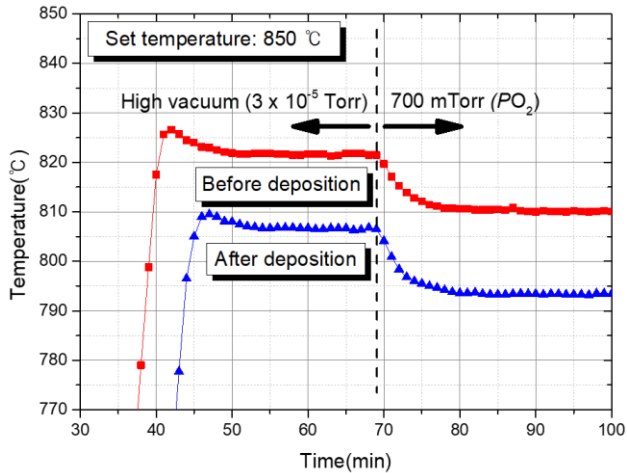


Fig. 7. Temperature dependency of the metal.

크게 차이 나지 않는 것을 보아 열화특성이 나타나지 않았다고 판단된다. 따라서 가열장치는 우수한 내구성을 입증하였으며 향후 reel-to-reel PLD공정에 사용될 경우 우수한 성능의 고온초전도 선재 제조가 가능할 것으로 판단된다. 20회에 걸친 반복 가열실험에서 가열온도 설정 값이 850 °C로 일정함에도 불구하고 금속기판 위치에서 측정된 온도는 820 °C에서 870 °C 사이를 나타내었다. 이것은 온도 설정 및 금속기판 온도 측정을 위한 두개의 열전대의 위치가 조금씩 달라짐으로 인해 기인한 것으로 판단된다. 따라서 향후 금속기판의 정밀한 온도 제어를 위해서는 열전대의 정확한 위치 고정이가 매우 중요하다고 할 수 있다. 그리고 장시간 가열에 따른 각종 진공 부품 및 PLD 챔버의 온도변화를 Fig. 6(b)에 나타내었다. 진공 챔버 외부 최고온부는 5시간동안 열 영향을 받아 최대 80 °C까지 가열되는 것을 확인하였고, 따라서 기존 PLD 챔버에서 주로 사용되던 복잡한 수랭 챔버를 사용하지 않아도 될 것으로 판단된다.

Fig. 7은 오염 전과 후의 증착 차폐판을 장착하고 산소 분위기하에서 가열시험한 결과를 나타내었다. 증착 차폐판을 삽입함에 의해 금속기판의 온도가 약 10 °C가량 하강하였다. 이는 고진공 분위기에서 가열장치로부터 방사되는 열 에너지는 대부분 복사 에너지이며, 산소 가스가 주입되면 열 방사는 기존 복사에너지와 함께 산소가스의 대류에 의해서도 이루어진다. 그리고 증착 차폐판이 없을 때는 가열장치와 금속기판 사이에서 가스의 대류가 자유롭게 이루어져 Fig.6(a)에서와 같이 온도변화는 거의 없다. 하지만 증착 차폐판이 장착되는 경우 산소가스 대류에 의한 열 전달이 차단되어 가열장치로부터 대류 열전달이 방해받고, 챔버 전체에 대류 열전달이 되어 챔버가 heat sink 역할을 하게 된다. 결국 Fig. 7에서와 같이 산소 가스 주입 후 금속기판의 온도가 낮아지게 된다. 아울러 증착 물질이 코팅된 증착 차폐판을 장착한 경우 오염되지 않은 증착 차폐판보다 20 °C가량 더 낮아진 것을 볼 수 있다. 이는 오염된 증착 차폐판이 복사에너지를 차단하기 때문으로 판단된다.

향후 실제 증착 공정을 수행하면서 장시간 증착에 따른 금속기판의 온도변화를 보다 실시간 관찰할 필요가 있음을 확인하였다.

3. 결론

본 연구에서 2세대 고온초전도 선재 제조 장치인 reel-to-reel PLD system에 적용하기위한 고온 안정성 및 우수한 내구성을 가진 새로운 가열장치를 성공적으로 설계 및 제작하였으며 그 특성을 평가하였다.

Kanthal A1 선과 알루미늄 튜브 등으로 이루어진 가열장치는 850 °C, 700 mTorr 산소 분압에서 우수한 열적 안정성 및 내구성을 가짐을 확인하였으며 또한, 다중 구조의 열 차폐판은 진공 부품 및 챔버의 열 영향을 효과적으로 차단할 수 있음을 확인하였다.

장시간 증착에 따른 가열장치의 증착 차폐판이 오염됨에 따라 연속적으로 이송되는 금속기판의 온도는 약 20 °C가량 낮아짐을 확인하였다

ACKNOWLEDGMENT

This research was supported by National R&D Program through the National Research Foundation of Korea (NRF) funded by Ministry of Science and ICT (2022M3I9A1076881)

REFERENCES

- [1] Campion, R., et al. "Design and performance of a reliable and low cost substrate heater for superconducting thin film deposition." *Vacuum* 46.2, p.195-197, 1995.
- [2] Park, C., et al. "Manufacturing of YBCO coated conductor using RABiTS as the texture template and pulsed laser for the multi-layer oxide film deposition." *Proceedings of the Korean Institute of Electrical and Electronic Material Engineers Conference. The Korean Institute of Electrical and Electronic Material Engineers*, 2003.
- [3] Soo-Jung Choi, et al. "Study on deposition conditions of YBCO films grown by pulsed laser deposition." *Proceedings of the Korean Society for Superconductivity and Low Temperature Engineering*, p.109-112, 2003
- [4] Muhsin, Ali Eltayeb, and Mohamed Elhadi Elsari. "Design of Reliable and Low Cost Substrate Heater for Thin Film Deposition." *International Journal of Mechanical and Mechatronics Engineering* 6.8, p.1503-1508, 2012.
- [5] Cillessen, J. F. M., M. J. M. De Jong, and X. Croize. "Improved uniformity of multielement thin films prepared by off-axis pulsed laser deposition using a new heater design." *Review of scientific instruments* 67.9, p. 3229-3237, 1996.
- [6] Farhad, Syed Farid Uddin. "The effect of substrate temperature and oxygen partial pressure on the properties of nanocrystalline copper oxide thin films grown by pulsed laser deposition." *Data in Brief* 34, p.106644, 2021.
- [7] Oh Won-Jae, Jae-Eun Kim, and Sang-Im Yoo. "Enhanced Pinning Properties of GdBa₂Cu₃O_{7-δ} Films With the Gd₂O₃ Nanoparticles." *IEEE Transactions on Applied Superconductivity* 27.4, p. 1-5, 2016.
- [8] Sueyoshi, Tetsuro, et al. "Flux pinning properties in YBa₂Cu₃O_y films with BaSnO₃ nano-rods and spatially-controlled Y₂O₃ nanodots." *Physics Procedia* 65, p. 137-140, 2015
- [9] Jiang, Guangyu, et al. "High-speed deposition of high-performance REBCO films by using a radiation assisted conductive heating PLD system." *Ieee Transactions on Applied Superconductivity* 29.5. p. 1-4, 2019.
- [10] Ozaki, T., et al. "Flux pinning properties of Sm_{1+x}Ba_{2-x}Cu₃O_y films with BaZrO₃ nanorods fabricated by low-temperature growth technique." *Physica C: Superconductivity* 468.15-20, p.1615-1618, 2008.

- [11] Sueyoshi, Tetsuro, et al. "Flux pinning properties in YBa₂Cu₃O_y films with BaSnO₃ nano-rods and spatially-controlled Y₂O₃ nano-dots." *Physics Procedia* 65, p. 137-140, 2015.