

## Magnetic properties of MgB<sub>2</sub> and FeTi composites

H. B. Lee, J. H. Lee, Y. C. Kim, D. Y. Jeong<sup>a</sup>

*Department of physics, Pusan National University, Busan 609-735, Korea*

*<sup>a</sup> Korea Electrotechnology Research institute, Changwon 641-120, Korea*

### MgB<sub>2</sub>와 FeTi 합성체의 자기적 성질

이헌봉, 이준호, 김영철\*, 정대영<sup>a</sup>

#### Abstract

MgB<sub>2</sub> and FeTi composites was prepared to study the effect of FeTi particles on superconductivity of MgB<sub>2</sub>. The sample, which had contained magnesium, boron and FeTi particles, was synthesized by the Commercial Stainless Steel Tube Enveloping Technique(COSSET) at 920°C for 2 hours. The structure and properties of the sample was investigated by XRD, SEM, and SQUID magnetometer. It was found that there was a little change of T<sub>c</sub> compared with pure MgB<sub>2</sub> superconductor in spite of high percentage of FeTi particles, and there was no proof of structure change of MgB<sub>2</sub> superconductor due to FeTi particles. But the high porosity which was appeared in the pure MgB<sub>2</sub> was disappeared in the composites. We conclude that FeTi particles do not influence the superconductivity of MgB<sub>2</sub> and it is expected that Fe-Ti material system will be a good material for a tube of the PIT process and for a substrate of the film.

*Keywords* : MgB<sub>2</sub> , FeTi composites, COSSET

#### I. 서론

MgB<sub>2</sub>는 Akimitsu의 발표 이후 [1] 많은 연구가 되어 왔으나 아직 실용화 단계에 접어들었다고 보기에는 다소 무리가 있다.

박막의 경우는 우선 기판 위에 boron을 증착시키고, 그것을 Ta 등으로 싸서 Mg와 함께 열처리 시키는 기법을 많이 사용하고 있는데, boron 증착 시 아직 PLD, IBAD, CVD 등의 진공기법을 크게 벗어나지 못하고 있으며 [2,3] STO나 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>등의 단결정에의 boron 증착에 대해서 부분 의존하고 있다 [4,5]. 긴 박막 제작에 필

수 요건이라고 할 수 있는 금속기판의 이용은 그 연구성과 면에서 아직 미비하다고 말할 수 있다.

Tape이나 wire를 만드는 경우는 여러 가지가 소개되고 있으나 [6,7] 잘 만들어진 박막의 경우보다 아주 낮은 임계 전류밀도(current density)를 보여 양질의 MgB<sub>2</sub>가 만들어지고 있다고 보기는 힘들다.

MgB<sub>2</sub>는 단순히 magnesium과 boron 이루어진 이원자 intermetallic compound 임에도 불구하고 대단히 잘 부수어진다. 따라서 이 상태로는 직접적인 방법, 즉 rolling이나 drawing으로, wire나 tape 등을 만드는 것이 불가능하다. 실제 사용에 있어서는 wire라든지 tape 형태로의 가공이 반드시 필요한데, 현 상태로는 산화물 초전

\*Corresponding author. Fax : 82 51 513 7664

e-mail : yckim@pusan.ac.kr

도체인 고온 초전도체보다 가공상의 잇점은 별로 없다.

MgB<sub>2</sub>가 고온 초전도체와 다른 큰 특징이 있다면, MgB<sub>2</sub>의 경우 고온 초전도체와는 달리 일부 원소에 대하여 상당한 양의 제 3의 원소를 첨가 할 경우에도, MgB<sub>2</sub> 초전도상 자체에는 큰 변화가 없다는 것이다. 오히려 적당량의 제 3의 원소가 첨가되었을 경우, 불순물효과에 의해 오히려 MgB<sub>2</sub>의 flux jump 현상을 줄여주고, flux pinning 효과를 높여 주기도 한다 [8]. 고온 초전도체의 경우에는, 4개 이상의 원소로 구성되어 각각의 원소에 전혀 영향이 없으면서, 전체적으로도 초전도상에 영향이 없는 원소를 얻기는 대단히 어렵다.

MgB<sub>2</sub>를 이용한 초전도 tape를 만드는 데는 PIT(Powder in Tube) 기법이 많이 이용이 되고 있다 [7,9]. 이중 중요한 요소중의 하나가 tube로 이용될 금속의 선택이다. 고온초전도체의 경우는 주로 Ag를 많이 이용 하였으나, MgB<sub>2</sub>의 경우 Mg와 Ag사이에 반응성이 있기 때문에 Ag를 이용하기가 곤란하다. Fe, Nb, Cu, stainless steel 등 여러 형태의 연구가 진행되어 왔으나 아직도 만족할만한 수준에 왔다고는 보기 힘들다 [10].

박막의 기관용으로 사용될 수 있는 금속의 경우는 문제가 더욱 복잡하다. 현재까지의 MgB<sub>2</sub> 박막은 앞에서 언급했듯이 STO나 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 등의 단결정을 기관으로 이용한 것이 보통이고, 금속을 기관으로 이용한 MgB<sub>2</sub> 박막의 제작은 잘 알려지지 않고 있다.

따라서 본 연구에서는 기존의 단원소 금속의 연구동향과는 달리, Fe는 Mg의 고용능력이 거의 없고, Ti는 Mg의 고용능력이 조금있는 점에 착안하여, 이원소 비정질 FeTi 합금분말을 이용 PIT 기법 tube와 박막 제조의 기관에 FeTi 합금계를 이용하고자 노력하였다. 우선 기초적인 연구로서, 최근에 본 연구실에서 개발한 COSSET 기법 [11]을 이용하여, FeTi비정질 합금분말이(Fe:3, Ti:7) MgB<sub>2</sub>에 어떤 영향을 미치는지 자기적 성질을 중심으로 알아보고자 하였다.

## II. 실험방법

COSSET 기법을 이용, Mg와 B를 stoichiometry 하게 1:2로 섞어 잘 갈고 다시 wt %로 10 % FeTi 분말을 혼합하여 직경 1 cm의 pellet을 제조한 후, 과량의 Mg와 함께 stainless steel tube에 넣어 봉입한 후 열처리를 행하였다. 열처리는 920°C에서 2시간 동안 대기분위기에서 행하였다 [11].

자기적 성질을 측정하기 위하여 SQUID magnetometer(Quantum Design Inc.)를 이용하였으며, 측정온도는 5 K, 10 K, 15 K이고, 자기장은 4 T까지 가하였다. 측정시 시료에 가해지는 자기장의 균질성을 0.05 % 이내로 하기 위해 시료 봉의 scan 길이는 2 cm로 하였다. 또한 자기장을 가하기 전에 온도를 ±0.05 K 이하로 안정시켰다. 각 측정을 위해 필요한 자기장을 증가시킨 후 시료 내에 자기장을 침투시키기 위해서 약 10초 후에 자기 모멘트를 측정하였다.

## III. 결과 및 논의

Fig. 1은 920°C에서 COSSET기법을 이용하여 2시간동안 소결 처리한 MgB<sub>2</sub>와 MgB<sub>2</sub>+FeTi 10 % 시편의 XRD data이다. 다른 제조기법과는 달리 MgB<sub>2</sub> 데이터에서 MgO peak가 전혀 나타나지 않았다. 따라서 COSSET 기법을 이용하여 제조된 MgB<sub>2</sub>는 가장 문제가 되는 Mg와 O의 반응을 완벽하게 막아내었다고 볼 수 있다. 한

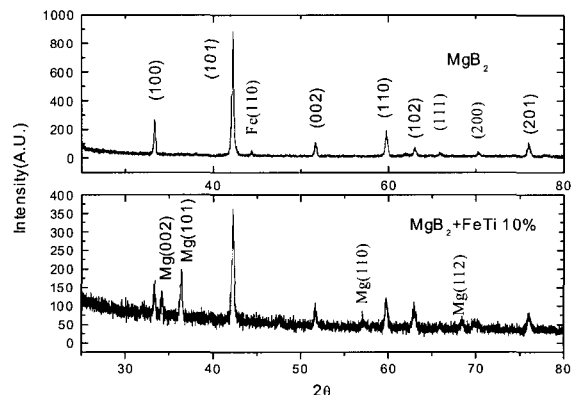


Fig. 1. XRD pattern of MgB<sub>2</sub> and MgB<sub>2</sub>+FeTi 10% Synthesized by the COSSET for 2 hrs at 920°C in air.

편 MgB<sub>2</sub>+FeTi 10% 시편의 경우에도 MgB<sub>2</sub> 이외의 이차상(MgO 등)이 전혀 없다. 단지 과량의 Mg를 넣어 합성을 하였기 때문에 Mg peak가 다소 나타남을 볼 수 있다. FeTi 입자는 비정질상태로 된 것을 합성에 이용하였던 관계로 전부 noise로 나타났다. 따라서 MgB<sub>2</sub>에 FeTi가 첨가 되었다고 하여 MgB<sub>2</sub> 결정격자상수에 변화는 없었다. Luo는 MgB<sub>2</sub>에 Al을 첨가함으로써 MgB<sub>2</sub>의 결정격자상수에 변화가 생겼고 또 이로 인하여 T<sub>c</sub>도 감소 하였다고 보고 하였으며 [12], Yan는 MgB<sub>2</sub>의 B자리에 carbon으로 치환을 하니 T<sub>c</sub>가 떨어 졌다고 보고하였다 [13]. 하지만 본 실험에서는 MgB<sub>2</sub>에 FeTi를 첨가하여도 MgB<sub>2</sub>의 결정격자상수에는 변화가 없었다.

Fig. 2는 5 Oe의 자기장을 가했을 때 온도에 따른 자기감수율을 보여 주고 있다. 그림에서 보는 바와 같이 초전도 전이폭이 약 1 K 이내로서 대단히 급격하였고, 이것으로 부터 MgB<sub>2</sub>+FeTi 10% 시편에서 얻은 MgB<sub>2</sub>는 양질의 것이 합성된 것으로 사료된다. 전이온도 T<sub>c</sub>는 36.7 K로 나타났으며, 이는 동일한 COSSET기법으로 제조한 FeTi가 들어있지 않은 MgB<sub>2</sub>의 37.5 K에 비해 약간 낮은 정도이고 큰 변화는 없었다.

Fig. 3은 20 K에서 MgB<sub>2</sub>+FeTi 10%시편의 자기이력곡선이다. 최대 ΔM이 600emu/cm<sup>3</sup> 이상 되고, 20 K에서 약 2 T 까지 비가역적인 것을

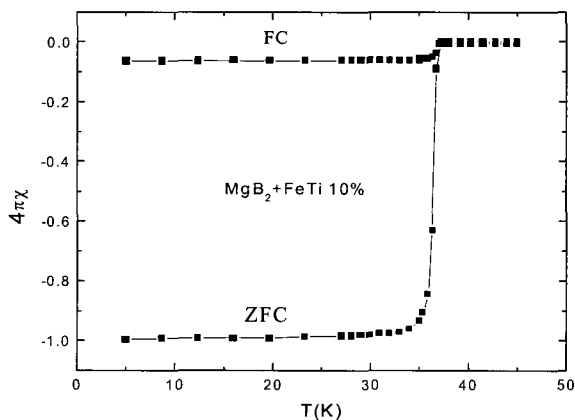


Fig. 2. Temperature dependence of the susceptibility for MgB<sub>2</sub>+FeTi 10% sample synthesized by the COSSET for 2 hrs at 920°C in air.

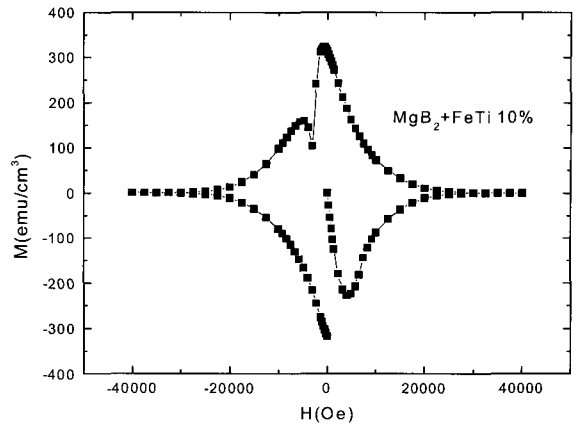


Fig. 3. Magnetic hysteresis loop for MgB<sub>2</sub>+FeTi 10% sample at 20K synthesized by the COSSET for 2 hr at 920°C in air.

볼 수 있다. 이는 동일한 COSSET 기법으로 제조한 순수한 MgB<sub>2</sub> 혹은 다른 방법으로 제조된 순수한 MgB<sub>2</sub> bulk 시편과 비교하여 볼 때 FeTi가 10% 포함되었음에도 불구하고 ΔM이 크게 나타난 것을 알 수 있다. 또한 곡선이 좌우 상하 대칭형으로 surface pinning에 비해 bulk pinning이 크다는 것을 알 수 있으며, 이는 동일한 COSSET 제법으로 제조한 MgB<sub>2</sub>단일상에서도 비슷한 경향을 보이나 [11], FeTi를 첨가함으로써 더욱 bulk pinning이 크게 되었다는 것을 알 수 있다.

특이한 것은 20 K에서도 강한 flux jump 현상을 볼 수 있다는 것이다. 본 시편의 경우 MgB<sub>2</sub>에 FeTi 10%가 포함되어 있음에도 불구하고 20 K에서 flux jump현상을 보였다는 것은 이 시편이 순수하다는 것을 보여주고 있다. 일반적으로 높은 순도의 Mg와 B를 사용하여도 시편이 잘 제조 되지 않으면 20 K 부근에서는 flux jump가 잘 나타나지 않는다.

Fig. 4는 30 K에서 COSSET로 제조한 MgB<sub>2</sub>+FeTi 10 % 시편의 자기이력곡선이다. 이 온도에서는 flux jump 현상을 볼 수 없었다. 이는 온도가 증가함에 따라 시편의 비열이 같이 증가하였기 때문이라고 사료된다. 30 K에서도 최대 ΔM이 200 emu/cm<sup>3</sup> 정도로 이는 여러 기법을 이용한 순수 MgB<sub>2</sub>에서 나타난 최대 ΔM보다 오히려 높은 수치이다. 곡선이 좌우 상하 대칭형으로 bulk pinning이 대단히 크다는 것은 20

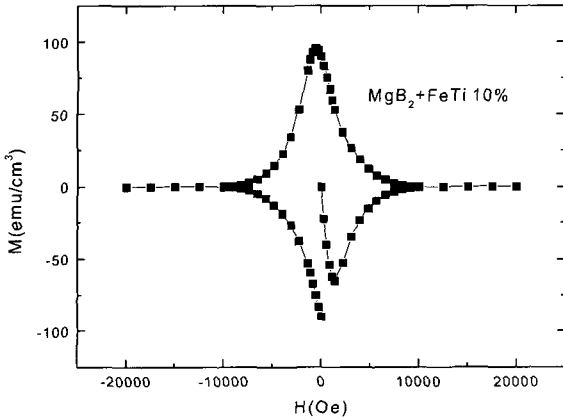


Fig. 4. Magnetic hysteresis loop for  $\text{MgB}_2+\text{FeTi}$  10% sample at 30 K.

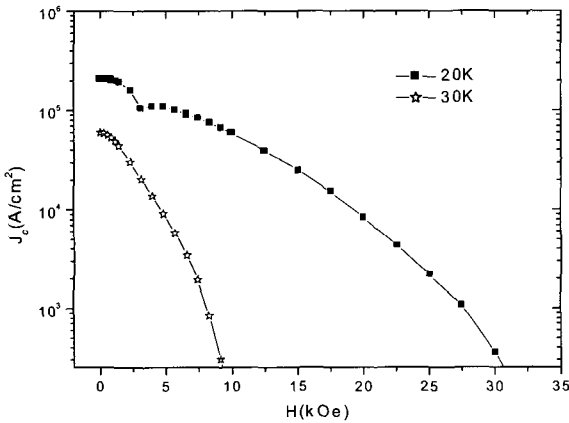


Fig. 5. Critical Current density versus magnetic field for  $\text{MgB}_2+\text{FeTi}$  10% sample.

K에서의 결과와 같다. 또한 각 온도에 따른 곡선 모양이 비슷한 것으로 보아 온도에 따라 pinning mechanism이 변하지 않는다는 것을 말해주고 있다.

Fig. 5는 20 K 및 30 K에서 자기장에 따른 임계전류밀도를 나타내고 있다. Bean Model 사용하였으며, 식은  $J_c = 30\Delta M/[a(1-a/3b)]$ ,  $a < b$ 를 사용하였다.

#### IV. 결론

Mg와 B 그리고 FeTi 비정질 분말입자(Fe:3, Ti:7)를 혼합하여 COSSET 기법을 이용,  $\text{MgB}_2+$

FeTi 10% 합성체를 제작하였다. XRD peak를 통하여 살펴본 결과 과량으로 첨가하여준 Mg와  $\text{MgB}_2$  이외에는 어떤 상도 나타나지 않았으며 FeTi는 비정질 상태가 그대로 유지되었다. 자기감수율의 측정결과  $T_c$ 는 36.7 K였고 초전도 전이폭이 1 K 이내로서 양질의  $\text{MgB}_2$ 가 합성된 것을 알 수 있었다. 20 K 및 30 K에서 측정된 자기이력곡선에서는 최대  $\Delta M$  값이 각각 600  $\text{emu/cm}^3$ 과 200  $\text{emu/cm}^3$ 으로 FeTi가 10%  $\text{MgB}_2$ 에 합성체를 형성하고 있음에도 불구하고 다른 방법으로 제조된 순수한  $\text{MgB}_2$ 보다 오히려 큰 자기적 이력을 보였다.

따라서 FeTi 합금계중 일부를 박막의 기관으로, PIT 기법의 tube로서 활용 할 수 있을 것으로 기대된다.

#### 감사의 말씀

이 논문은 한국학술진흥재단의 지원에 의하여 연구되었다.

#### 참고문헌

- [1] Jun Nagamatsu, Norimasa Nakagawa, Takahiro Muranaka, Yuji Zenitani & Jun Akimitsu, "Superconductivity at 39 K in magnesium diboride", *Nature* **410**, 63 (2001).
- [2] M. Paranthaman, C. Cantoni, H. Y. Zhai, H.M.Christen, T. Aytug, S. Sathyamurthy, E.D. Specht, J.R.Thompson, D. H. Lowndes, H. R. Kerchner, and D. K. Christen, "Superconducting  $\text{MgB}_2$  films via precursor postprocessing approach", *Appl. Phys. Lett.* **78**, 3669 (2001).
- [3] X. H. Zeng, A. Sukiasyan, X. X. Xi, Y. F. Hu, E. Wertz, W. Tian, H. P. Sun, and X. Q. Pan, J. Lettieri, D. G. Schlom, C. O. Brubaker, and Zi-Kui Liu, Qiang Li, "Superconducting properties of nanocrystalline  $\text{MgB}_2$  thin film made by an in situ annealing process", *Appl. Phys. Lett.* **79**, 1840 (2001).
- [4] W. N. Kang, Hyeong-Jin Kim, Eun-Mi Choi, C. U. Jung, Sung-Ik Lee, "MgB<sub>2</sub> Superconducting Thin Films with a Transition Temperature of 39 Kelvin", *Science* **292**, 1521(2001).
- [5] X. H. Fu, D. S. Wang, Z. P. Zhang, J. Yang,

- “Superconducting  $MgB_2$  thin films prepared by chemical vapor deposition from diborane”, *Physica C* **377**, 407 (2002).
- [6] P. C. Canfield, D. K. Finnemore, S. L. Bud’ko, J. E. Ostenson, G. Lapertot, C. E. Cunningham, and C. Petrovie, “Superconductivity in Dense  $MgB_2$  Wires”, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 2423 (2001).
- [7] S. Soltanian, X. L. Wang, I. Kusevic, E. Babic, A. H. Li, M. J. Horvat, H. K. Liu, E. W. Collings, E. Lee, M. D. Sumption, S. X. Dou, “High-transport critical current density above 30K in pure Fe-clad  $MgB_2$  tape”, *Physica C* **361**, 84 (2001).
- [8] Z. W. Zhao, S. L. Li, Y. M. Ni, H. P. Yang, Z. Y. Liu, and H. H. Wen, “Suppression of superconducting critical current density by small flux jumps in  $MgB_2$  films”, *Phys. Rev. B* **65**, 4512 (2002).
- [9] S. Jin, H. Mavoori, C. Bower & R. B. van Dover, “High critical currents in iron-clad superconducting  $MgB_2$  wires”, *Nature* **411**, 563 (2001).
- [10] C. B. Eom, M. K. Lee, J. H. Choi, L. J. Belenky, X. Song, L. D. Cooley, M. T. Naus, S. Patnalk, J. Jlang, M. Rikel, A. Polyanskii, A. Gurevich, X. Y. Cal, S. D. Bu, S. E. Babcock, E. E. Hellstrom, D. C. Larbalestler, N. Ragado, K. A. Regan, M. A. Hayward, T. He, J. S. Slusky, K. Inumaru, M, K. Hass & R. J. Cava, “High critical current density and enhanced irreversibility field in superconducting  $MgB_2$  thin films”, *Nature* **411**, 558 (2001).
- [11] H. B. Lee, B. J. Kim, Y. C. Kim, D. Y. Jeong, “The commercial Stainless Steel Tube Enveloping Technique For  $MgB_2$ ”, to be published.
- [12] H. Luo, C. M. Li, H. M. Luo, and S. Y. Ding, “Study of Al doping effect on superconductivity of  $Mg_{1-x}Al_xB_2$ ”, *J. of Appl. Phys.* **91**, 7122 (2002).
- [13] Yanfa Yan and M. M. Al-Jassim, “Carbon impurities in  $MgB_2$ ”, *J. of Appl. Phys.* **92**, 7687 (2002).