

AC susceptibility of the high- T_c superconductor SmBaCuO_y

H. Kim, B. Y. Lee, J. H. Lee, Y. C. Kim*
Pusan National University, Busan, Korea

고온초전도체 $\text{SmBa}_2\text{Cu}_2\text{O}_y$ 의 교류자화율

김 흥, 이부영, 이준호, 김영철*

Abstract

The polycrystalline $\text{SmBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ was synthesized by the solid state reaction method. The dependence of AC susceptibility on temperature and applied ac field was studied. The critical temperature T_c is about 92 K. As the ac field is increased, the slope and the value of real part of susceptibility become smaller and the peak position of imaginary part T_P was shifted to a lower temperature with peak broadening. Using Bean's model, we determined intergrain critical current density J_c and obtained 44 A/cm^2 at 75 K. From the relation of the $J_c(T)=(1-T/T_c)^\beta$, we obtained $\beta=0.8$ and found that the Josephson junction type of the $\text{SmBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ is SIS junction. The peak of the imaginary part shifts to higher temperature with increasing frequency, f . From Arrhenius plot, we obtained the activation energy of about 0.96 eV.

Keywords : AC susceptibility, $\text{SmBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$, activation energy

I. 서론

초전도체의 응용을 위해서는 우수한 초전도 선재를 개발하는 것이 필수적인데, 높은 임계 온도 T_c 와 큰 임계전류밀도 J_c 값을 가지는 선재가 요구된다. 현재로써는 수은계 초전도체의 T_c 가 가장 높지만 [1], 그보다 더 큰 T_c 를 얻기 위한 연구가 계속되고 있다. 그리고 J_c 를 크게 하는 것은 T_c 를 높이는 것과 또 다른 문제인데, 고온초전도체는 일반적으로 cm단위 크기의 단결정으로는 제작이 거의 힘들기 때문에 주로 입계(grain)와 입계 사이의 약결합(weak link)이 존재하는 다결정 형태로 제작되어진다. 그러므로 고온 초전도체의 J_c 는 약결합에 의해 제한

되어진다. 또한 자기장이 가해진 상태에서는 원래 약결합 영역에 들어갔던 자기장과 입계에서 밀려나온 자기장이 입계간 영역에 집중됨으로써, J_c 는 더욱 급격히 감소된다. 따라서 강한 자기장하에서 J_c 를 향상시킨다는 것은 곧 약결합을 보강해야 한다는 것을 의미한다.

현재까지 연구된 구리 산화물 고온 초전도체는 주로 선재와 같은 대규모 응용에 대해 이루어졌는데, 이러한 대규모 응용은 다결정 형태로 이루어지므로 입계간의 결합 특성에 대한 연구가 반드시 먼저 행해져야 한다.

II. 실험방법

고온 초전도체 $\text{SmBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 의 제작은 원료 분말 Sm_2O_3 , BaCO_3 , CuO 를 혼합하여 고상반응

*Corresponding author. Tel : +82 51 510 2224
e-mail : yckim@pusan.ac.kr

법(solid state reaction method)을 이용하여 만들었다. 적당한 물비로 칭량하여 마노 유발에 함께 넣고 고루 섞은 분말을 알루미나(Al_2O_3) 도가니에 담아 산소분위기에서 $950^\circ C$ 로 24시간 동안 하소하였다. 위와 같은 과정을 한 번 더 반복하여 두 번 하소한 분말을 다시 잘 갈고 약 $1 \sim 3 \text{ ton/cm}^2$ 의 압력을 가해 직경 8mm, 길이 4mm의 원통형의 pellet으로 성형하였다. 그 후 $475^\circ C$ 의 전기로에서 충분히 산소를 공급하면서 12시간 동안 소결하였다. 열처리 후 냉각 시에는 산소가 충분한 상태에서 천천히 냉각시킨다. 이렇게 하여 최종적으로 $SmBa_2Cu_3O_y$ 고온 초전도체 시료를 제작하였다.

자기적 성질을 조사하기 위해 AC 교류 자화율 측정 장치를 이용하여 교류 자화율을 측정하였다. 교류 자화율의 허수부가 최대가 되는 온도에 Bean 모델 [2,3]을 적용하여 입계간 임계 전류밀도를 구하고, 외부 자기장에 대한 의존성 등을 측정하고, 입계간의 결합상태를 알아보았다. 또한 주파수에 따른 교류 자화율의 허수부 피크의 변화로부터 활성화 에너지를 구하였다. 그리고 AC 교류 자화율의 측정시 나타나는 자기 소거효과를 최소로 하기 위해 교류 자화율 측정 장치에 사용된 것은 긴 막대형의 시료($1.7\text{mm} \times 0.9\text{mm} \times 3\text{mm}$)로 잘라서 사용하였다 [4].

III. 결과 및 논의

제작된 시료의 상을 알아보기 위해 X-ray diffractometer (Philips, Model APD1700, U.S.A)를 사용하여 회절 실험을 하였다. X-Ray source는 Cu K선($=1.542 \text{ \AA}$)을 사용하였다. 조사 속도는 $4^\circ/\text{min}$, 가속전압과 전류는 각각 30kV, 10mA로 하였으면 산란 각(2θ)은 20° 에서 90° 까지로 하여 X-선 회절무늬를 얻었으며 그 측정 결과는 Fig. 1에 나타내었다. 그 결과로부터 구한 격자 상수 a는 3.9018 \AA , b는 3.8440 \AA , c는 11.7248 \AA 이었다

Fig. 2는 본 시료의 SEM 사진을 나타내고 있다. SEM 사진으로부터 초전도 입자는 대략 $6 \mu\text{m} \times 6 \mu\text{m} \times 3 \mu\text{m}$ 정도의 크기에 직육면체 모양을 하고 있음을 알 수 있고, 입자들의 방향이

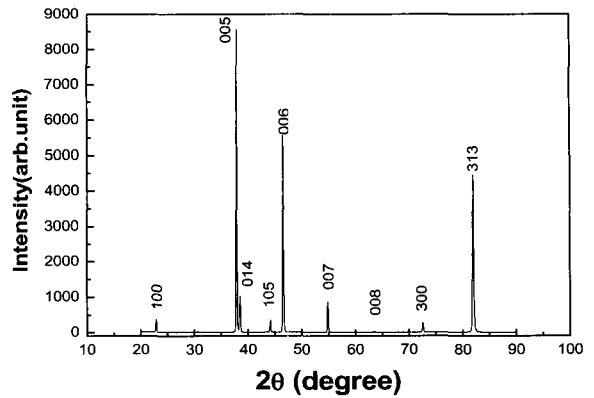


Fig. 1. $SmBa_2Cu_3O_y$ 의 X-선 회절무늬.



Fig. 2. $SmBa_2Cu_3O_y$ 의 SEM 사진.

무질서하게 되어 있다. 이러한 무질서한 배열 때문에 입자 사이에 빈 공간이 형성되고, 이것이 낮은 J_c 의 원인이 된다. Fig. 2의 왼쪽부분을 보면 초전도 입자들이 뭉쳐져 있는 부분들이 보이는데 J_c 의 향상에 도움이 될 것으로 예상된다.

Fig. 2의 오른쪽 입자들의 표면이 층을 이루고 있는 것처럼 보이는데, 이것은 열처리시 초전도 입자가 형성될 때, 얇은 층들이 먼저 생겨나고, 그들이 쌓여서 형성된 것임을 짐작하게 해 준다.

$SmBa_2Cu_3O_y$ 의 시료에 교류 자기장 H_{AC} 를 0.1 Oe에서 15 Oe 까지 가해 온도에 대한 교류 자화율을 측정하였으며 그 결과는 Fig. 3과 같다. 자기적인 방법으로 임계온도를 구할 경우 교류 자화율의 실수부에서 반자성을 보이기 시

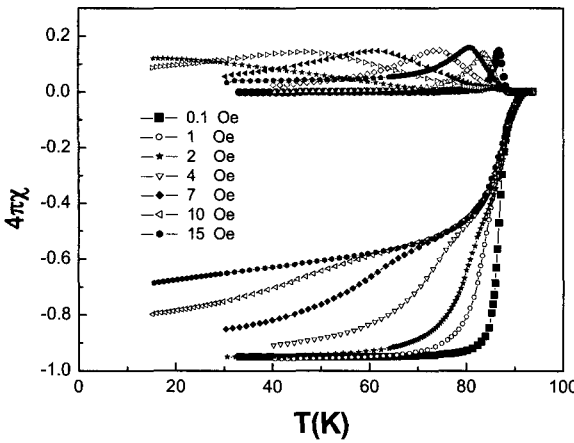


Fig. 3. 교류 자기장 H_{AC} 에 따른 교류 자화율의 온도의존성 ($H_{AC}=0.1$ Oe 일때 $T_c=92$ K).

작하는 온도를 임계온도 T_c 로 정의하며, 또한 교류 자화율의 허수부에서 최대가 되는 온도, 즉 손실이 최대가 되는 온도를 T_p 로 정의한다.

Fig. 3에서 알 수 있는 바와 같이 $H_{AC}=0.1$ Oe의 결과를 보면 반자성이 나타나는 임계온도는 약 92 K이다. 이는 SQUID magnetometer로 측정된 임계온도 값과 같았다. 그리고 교류 자화율의 실수부는 저온에서 일정한 값을 가지다가 온도가 올라감에 따라 급격히 그 절대값이 감소하는 것으로 보아 $\text{SmBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 시료가 양질의 단일상임을 알 수 있다.

교류 자화율의 실수부와 허수부 모두 교류 자기장에 의존함을 알 수 있고, 허수부의 피크 온도 T_p 는 가해진 교류 자기장의 세기가 증가함에 따라 감소하였다. 교류 자화율의 실수부를 보면 자기장이 증가함에 따라 자화율의 낮은 온도에서 step을 보이는데, 이는 입계간의 약결합이 자기장이 증가함에 따라 깨어지기 때문에 나타난다. 보통 다결정의 bulk 시료는 약결합, 즉 Josephson 결합 [5]을 통해 입계들이 결합하고 있다. 약결합은 소결체 시료의 특징으로 입계와 입계가 Josephson 결합을 이루고 있어 시료 전체적으로 초전도성을 띄게 한다. 이 약결합을 통해 흐르는 전류를 입자간 전류라고 하는데, 이것이 입자 간의 입계전류보다 높게 되면 입자 사이의 결합이 깨어지게 된다.

Fig. 4는 교류 자기장 7 Oe에서의 자화율의 실수부에 나타나는 step으로부터 입계 내의 침

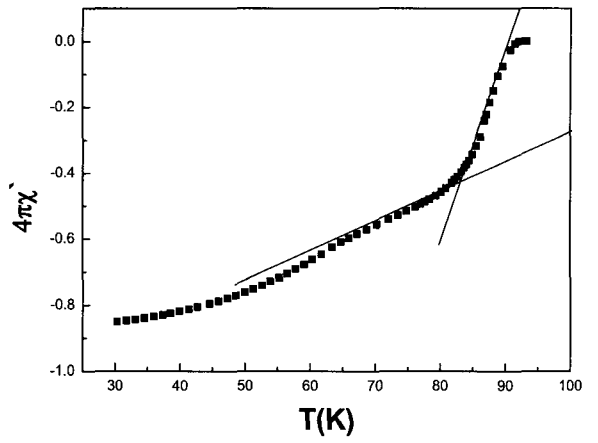


Fig. 4. 교류 자기장 7 Oe 일 때 입계 내 침투 온도 T_{c_j} 를 구하는 법.

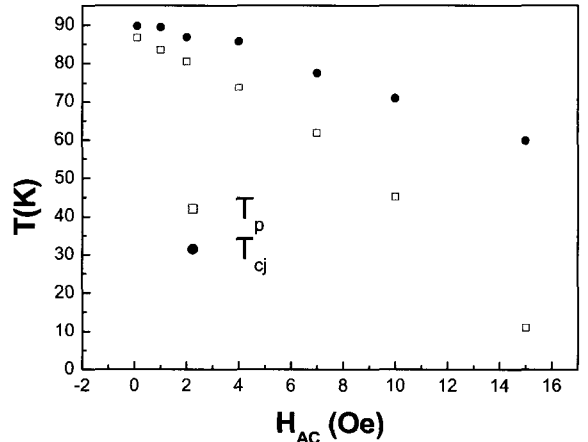


Fig. 5. 교류 자기장에 대한 입계 내 침투 온도 T_{c_j} 와 피크 온도 T_p .

투 온도 T_{c_j} 를 구하는 방법이다. 이런 방법으로 구한 T_{c_j} 와 허수부의 피크 온도 T_p 를 비교해 Fig. 5에 나타내었다. 그림에서 보듯이 T_{c_j} 와 T_p 모두 외부 자기장의 증가에 따라 감소하는 경향을 보이고 있다.

보통 decoupling이 시작되는 온도는 허수부의 이력 손실이 사라지기 시작하는 온도이다. 그래서 T_{c_j} 는 허수부의 피크 온도 T_p 보다 높게 나타난다. T_{c_j} 이하의 온도에서는 덩어리의 성질을 가지고 T_{c_j} 이상의 온도에서는 입계 간 약결합이 완전히 제거되어 입계 자체만의 성질을 가지게 된다.

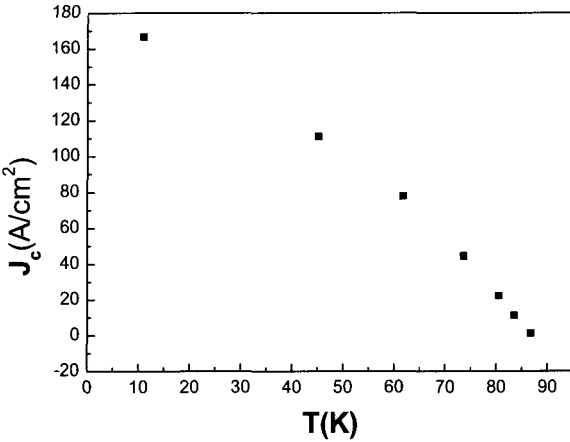


Fig. 6. Bean 모델에 의해 계산된 온도에 따른 임계 전류밀도.

Fig. 6은 Bean 모델 [2,3]을 이용하여 허수부의 피크 온도 T_p 와 가해진 교류 자기장의 세기의 변화로부터 임계 전류밀도를 구한 것이다. 이것은 교류 자화율의 허수부인 χ'' 이 이력손실에 비례한다는 사실로부터 χ'' 을 해석하여 J_c 를 계산하였다. 평판면에 나란하게 교류 자기장이 가해진 두께 $2a$ 의 평판을 가정하며 임계전류 밀도 J_c 는 다음과 같이 나타낸다.

$$J_c = H_p / a \tag{1}$$

시료의 모양이 실린더일 경우 H_p 가 χ'' 의 피크가 나타나는 온도에서 측정 자기장의 진폭 H_m 과 같다. 이를 적용하면

$$J_c = H_m / a \tag{2}$$

이다. 그래서 가해진 교류 자기장의 세기 H_m 에 대한 $\chi''_{max}(T)$ 를 측정함으로써 $J_c(T)$ 를 대략적으로 계산할 수 있다. 위 식으로부터 계산한 임계 전류밀도 값은 Fig. 6에 나타난 것처럼 75 K 근처에서 44 A/cm²이었으며 온도가 증가함에 따라 감소하였다. 그 이유는 온도가 증가함에 따라 초전도체 내부의 에너지가 높아져 더 작은 전류에서 초전도성을 보이기 때문이다. 이것은 임계 사이의 약 결합을 통한 임계 전류이므로 값이 매우 작게 나타난다. 또한 임계온도 근처의 온도 영역에서는 임계 전류밀도 J_c 는

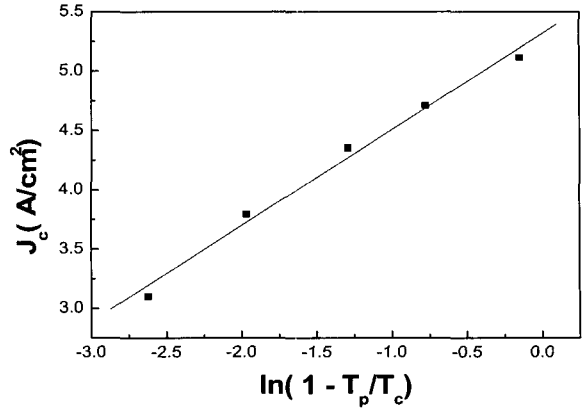


Fig. 7. Bean 모델에 의한 ln(1-T_p/T_c)에 대한 J_c.

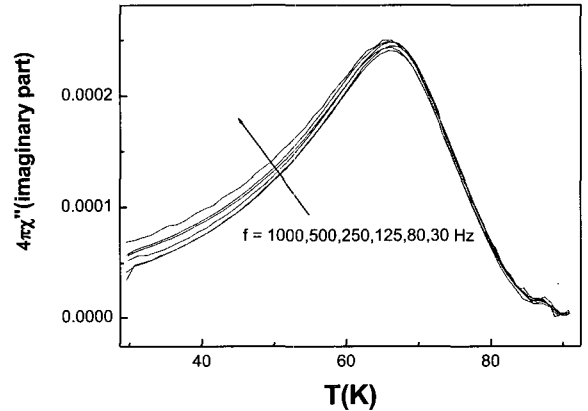


Fig. 8. 교류 자기장의 주파수에 따른 교류 자화율 허수부의 온도 의존성.

$J_c(T)=(1-T/T_c)^\beta$ 의 온도의존성을 갖는 함수로 주어지며 Fig. 7에 나타내었다. 여기서 β 값은 시료 내의 임계 간의 접합 상태에 따라 다르게 주어진다. $\beta = 2$ 일 때는 SNS접합 형태를 나타내며 이러한 경우는 혼합물 속에 금속이 있거나 tape의 경우는 피복을 하게 되면 영향을 미치게 된다. $\beta = 1$ 일 때는 혼합물 속에 들어가는 것이 금속 대신 절연체가 있는 SIS접합을 나타낸다. Fitting한 결과 $\beta = 0.8$ 이므로 SIS접합의 형태를 이루고 있다는 것을 알 수 있다.

활성화 에너지를 구하기 위해 교류 자기장 0.1 Oe 하에 주파수를 30 Hz에서 1000 Hz 까지 변화시켜 주면서 온도에 대한 교류 자화율의 허수부를 측정하여 Fig. 8에 나타내었다. 주파수가 증가함에 따라 미세하지만 피크 온도가

T_c 쪽으로 이동한다는 것을 알 수 있었다. 이러한 주파수 변화에 따른 교류 자화율 허수부의 피크 이동은 Kim-Anderson의 flux creep 효과로 설명할 수 있는데 [6], 진동수가 높을수록 입자간 침투자기장 H_j 가 이완하는데 걸리는 시간이 짧아진다. 따라서 진동수가 증가하면 유효 고정력 밀도가 증가하여 T_p 가 고온으로 증가하게 되는 것이다 [7]. 이를 수식으로 표현하면 단위 면적당 고정력 $\alpha = \alpha_c - \alpha_1 \ln(t)$ 인데 t 가 작을수록 α 는 증가하게 된다. 주파수가 30 Hz에서 1000 Hz까지 변화하는 동안 이동한 T_p 는 65.4K에서 66.9K까지 1.5K 정도였다. Fig. 9는 허수부 피크 온도의 주파수 의존성으로부터 $1/T_p$ 에 대한 $\log f$ 의 관계를 나타낸 것이다. Fig. 9로부터 $1/T_p$ 는 $\log f$ 에 대하여 선형적으로 감소한다는 것을 알 수 있다.

Kim-Anderson에 따르면 자속의 점프율은 Arrhenius식에 의해 주어진다. Arrhenius 식은 다음과 같이 주어진다.

$$f = f_0 \exp(-E_a / k_B T_p) \quad (3)$$

여기서, f_0 는 특성상수, E_a 는 활성화 에너지, k_B 는 Boltzmann 상수, 그리고 T_p 는 허수부의 피크 온도이다. 식 (3)을 이용하여 $1/T_p$ 의 $\log f$ 의존성으로부터 기울기를 구하면, 활성화 에너지 E_a 를 구할 수 있다. $\text{SmBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 시료의 활성화 에너지는 교류 자기장 0.1 Oe에서 약 0.96

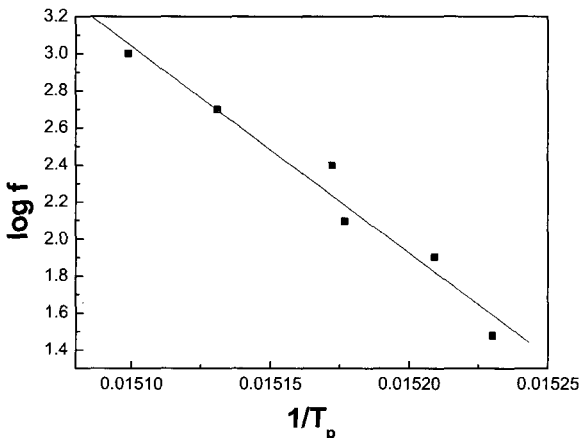


Fig. 9. 교류 자기장의 주파수에 따른 자화율의 허수부 피크.

eV 이다. 이 활성화 에너지의 의미는 Kim-Anderson vortex creep model에서의 고정에너지의 의미이다. 즉, potential에 고정되어 있는 vortex가 빠져 나오는데 필요한 에너지이다. 그런데 본 연구에서 구한 T_p 는 입계영역에 대한 값이므로 여기서 구한 고정에너지는 입계간 영역에 대한 값이다.

IV. 결론

고온 초전도체 $\text{SmBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 시료의 교류 자화율을 측정하여 92K의 입계 온도를 구하였고 교류 자화율의 허수부의 피크 온도 T_p 와 교류 자화율의 실수부로부터 구한 입계와 입계의 약결합이 깨어지는 온도 T_{cj} 를 구하였는데 외부자기장이 증가할수록 선형적으로 감소하였다. 이것으로 $\text{SmBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 시료는 외부 교류 자기장의 세기에 강하게 의존함을 볼 수 있었다. Bean모형을 이용하여 허수부의 T_p 로부터 입계 전류밀도 J_c 를 구해 본 결과 75 K에서 약 44 A/cm²의 값을 얻었다. 이 전류는 입계 간의 약결합을 통해서 흐르는 것으로 보인다. J_c 와 $J_c(T) = (1 - T/T_c)^\beta$ 의 관계로부터 $\beta = 0.8$ 을 얻었으며 이것으로부터 시료의 결합 상태가 SIS결합을 이루고 있다는 것을 알 수 있었다. 이는 초전도 입자의 표면이 산소결핍으로 인해 절연체가 되고 전류밀도가 낮은 값을 가지는 원인으로 보인다. 일정 교류 자기장하에서 T_p 는 주파수가 증가함에 따라 고온으로 이동하였고, Arrhenius의 식에 따라 구한 활성화 에너지는 약 0.96 eV 이었다.

V. 감사의 글

본 연구는 부산대학교 연구비에 의한 연구임.

참고문헌

- [1] A. Schilling, M. Cantoni, J. D. Guo, and H. R. Ott, Nature 363, 56(1993).
- [2] C. P. Bean, Rev. Mod. Phys. 36, 31(1964).
- [3] T. P. Orlando/ K. A. Delin, Foundations of Applied

- Superconductivity(Addison-Wesley, U.S.A., 1991).
- [4] 강석동, 부산대학교, 이학석사학위논문 (1997).
- [5] B. D. Josephson, *Phys. Lett.* **1**, 251(1962).
- [6] P. W. Anderson and Y. B. Kim, *Rev. Mod. Phys.* **36**, 39(1964).
- [7] K. H. Muller, M. Nicolo, N. Savvides, and Driver, *Advances in Superconductivity III*. 583 (Proceedings of the 3rd Int. Symposium on Superconductivity, November 6-9, 1990, Sendai).