

# Effects of Sintering Temperature and SiC Contents on the Microstructure and Superconducting Properties of In-situ MgB<sub>2</sub> Wires

Soo Min Hwang<sup>a</sup>, Eui Cheol Park<sup>a</sup>, Si Hong Park<sup>a</sup>, Seok Hern Jang<sup>a</sup>, Kyu Tae Kim<sup>a</sup>, Jun Hyung Lim<sup>\*a</sup>, Jinho Joo<sup>a</sup>, Won-Nam Kang<sup>b</sup>, Chan-Joong Kim<sup>c</sup>

<sup>a</sup> School of Advanced Materials Science and Engineering, Sungkyunkwan University, Suwon, Korea

<sup>b</sup> Department of Physics, Sungkyunkwan University, Suwon, Korea

<sup>c</sup> Nuclear Nanomaterials Development Laboratory, Korea Atomic Energy Research Institute, Daejeon, Korea

## In-situ MgB<sub>2</sub> 선재의 소결온도와 SiC 함량에 따른 미세조직 및 초전도 특성 연구

황수민<sup>a</sup>, 박의철<sup>a</sup>, 박시홍<sup>a</sup>, 장석현<sup>a</sup>, 김규태<sup>a</sup>, 임준형<sup>\*a</sup>, 주진호<sup>a</sup>, 강원남<sup>b</sup>, 김찬중<sup>c</sup>

### Abstract

We fabricated the in-situ MgB<sub>2</sub> wires using the powder-in-tube method and investigated the effects of sintering temperature and SiC contents on the microstructure and superconducting properties. Pure MgB<sub>2</sub> wires and 5, 10, 20 wt.% SiC doped MgB<sub>2</sub> wires were sintered at 600-1000°C for 30 minutes in Ar atmosphere. We found that MgB<sub>2</sub> phase was mostly formed at the sintering temperature of 700°C and above, and the critical temperature ( $T_c$ ) increased with increasing sintering temperature. For the MgB<sub>2</sub> sintered at 850°C, the highest critical current density ( $J_c$ ) was obtained to be  $3.7 \times 10^5$  A/cm<sup>2</sup> at 5 K and 1.6 T by a magnetic properties measurement system (MPMS). The addition of SiC to the MgB<sub>2</sub> wires changed microstructure and critical properties. SEM observation showed that the MgB<sub>2</sub> core had considerable micro-cracks in undoped wire and the density of micro-cracks decreased with increasing SiC contents. The critical temperature decreased as the SiC contents increased, on the other hand, the critical current density of SiC doped MgB<sub>2</sub> wires in high magnetic field was enhanced compared to that of undoped MgB<sub>2</sub> wires.

**Keywords :** critical properties, in-situ, MgB<sub>2</sub>, SiC doping, sintering

### I. Introduction

MgB<sub>2</sub>는 2001년 Akimitsu에 의해 처음 초전

도 현상이 보고된 이래 [1], 저온 초전도체에 비해 상대적으로 높은 임계온도( $T_c \sim 39$  K), 임계전류밀도( $J_c$ ) 및 상부 임계자장( $H_{c2}$ ) 특성으로 인해 많은 연구가 진행되고 있다. 또한, 큰 결맞음길이(coherence length)로 인해 산화물 고온

\*Corresponding author. Fax : +82 31 290 7371  
e-mail : jhlim@htcs.skku.ac.kr

초전도체(HTSC)에서 나타나는 flux creep 현상이 거의 없고 상대적으로 낮은 자장 이방성, 작은 weak-link 등의 특징들로 인해 NMR, MRI, SMES 등과 같은 전력기기로의 응용을 위한 장선재 제조가 용이하다는 장점을 가진다 [2, 3].

특히, 선재 형태로 제조된 MgB<sub>2</sub> 초전도체가 고성능 magnet으로서 응용되기 위해서는 높은 상부 임계자장, irreversibility 자장( $H_{irr}$ ) 및 자장 하에서의 높은 임계전류밀도 특성들이 요구된다. 이를 위해 여러 연구그룹에서 초기 원료에 따른 열처리 공정변수 및 도핑(doping) 물질에 대한 연구가 진행되고 있다. MgB<sub>2</sub> 초전도체 제조는 초기 원료 물질에 따라 in-situ와 ex-situ 공정으로 나누게 되는데, 특히 in-situ 공정의 경우에는 상부 임계자장값의 향상을 위한 도핑물질 첨가가 용이하여 많은 연구가 진행 중이다 [2-8].

In-situ 공정에서 소결공정은 MgB<sub>2</sub>상 형성 및 결정립 성장, Kirkendall 효과에 의한 미세조직 변화에 상당한 영향을 미치게 된다. 특히, 낮은 온도에서의 소결공정은 피복재와의 반응 감소, 결정립 크기 감소에 따른 결정립계 면적 증가로 flux-pinning 효과 향상, Kirkendall 효과 감소에 의한 core의 밀도 증가효과를 기대할 수 있지만, 결정립계 면적 증가로 인한 weak-link 거동의 증가를 유발할 수 있다. 일반적으로 in-situ MgB<sub>2</sub>는 약 600-1000°C 범위의 소결온도에서 최적의 특성을 가지는 것으로 다양하게 보고되고 있다 [2-6]. 그러나 우수한 임계특성을 가지는 MgB<sub>2</sub> 선재를 제조하기 위한 최적의 소결온도가 명확하게 제시되어 있지 않고, MgB<sub>2</sub> 선재의 자장특성을 개선하기 위한 최적의 도핑물질로 보고되고 있는 SiC의 함량(약 0-15 wt.%) 또한 연구마다 상이하게 보고되고 있다 [2, 3, 6-9].

그러므로, 본 연구에서는 PIT(Powder-In-Tube) 법으로 제조된 in-situ MgB<sub>2</sub> 선재의 소결 온도에 따른 MgB<sub>2</sub> 선재의 조성변화 및 임계 특성 변화를 관찰하였으며, 도핑물질로 첨가되는 SiC의 함량에 따른 MgB<sub>2</sub> 선재 core의 미세조

직 및 임계특성 변화를 관찰하여 in-situ MgB<sub>2</sub> 선재 제조 시의 최적 열처리 조건과 자장 특성 향상을 위한 SiC의 최적 함량을 도출하고자 하였다.

## II. Experimental procedure

MgB<sub>2</sub> 선재는 in-situ PIT법으로 제조하였다. Mg(Tangshan사, 분말크기 45 μm) 분말과 비정질 B(Tangshan사, 분말크기 4-6 μm) 분말을 1 : 2의 몰비로 균일하게 혼합한 후, 불활성의 Ar 분위기에서 Fe튜브(외경 : 8.1 mm, 내경 : 5.4 mm)에 장입하였다. 분말이 장입된 Fe튜브를 스웨이징(swaging)과 인발(drawing) 공정을 반복하여 5%의 단면감소율로 최종 1.2 mm의 외경을 갖는 선재를 제조하였다. 소결공정의 온도변수 확립을 위해 소결공정은 5°C/min의 승온 속도로 600°C, 700°C, 800°C, 850°C, 및 1000°C의 온도에서 30분간 유지 후 노냉하였으며 Mg의 산화를 최소화하기 위해 Ar 분위기의 관상로 내에서 수행하였다.

SiC 함량에 따른 임계특성 변화를 관찰하기 위해 균일하게 혼합된 Mg + 2B 혼합분말에 5 wt.%, 10 wt.% 및 20 wt.%의 SiC(Norton-Lillesand사, 분말크기 0.02-0.2 μm)를 첨가하여 Fe튜브에 장입하였다. 선재 제조를 위해 상기와 동일하게 스웨이징과 인발 공정을 반복하여 최종 1.2 mm의 외경을 갖는 선재를 제조하였다. 제조된 선재는 Ar 분위기의 관상로 내에서 800°C, 30분 간 유지 후 노냉하였다.

MgB<sub>2</sub>상 형성과 이상의 존재여부를 확인하기 위해 X선 회절분석(BRUKER-D8)을 하였으며, core의 미세조직 관찰을 위해 주사전자현미경(HITACHI, S-3000H)을 사용하였다. 또한, Magnetic Properties Measurement System(MPMS)을 이용하여, 0~5 T의 자장 하에서 Bean model을 적용하여 5 K과 20 K의 온도에서의 임계전류 밀도를 측정하였으며, 반자성(diamagnetism) 신호의 onset으로 임계온도를 측정하였다.

### III. Results and Discussion

#### (1) 소결온도에 따른 조성변화 및 임계특성 변화

Fig. 1은 in-situ MgB<sub>2</sub> 선재의 소결온도에 따른 MgB<sub>2</sub> core의 X-선 회절분석 결과이다. 각 시편에 대한 X-선 회절패턴을 MgB<sub>2</sub>(101) peak을 기준으로 평준화(normalization)시켰다. 소결온도 600°C 시편의 경우 부분적으로 MgB<sub>2</sub>상이 형성되었으나 대부분 Mg가 잔존하는 것으로 확인되어 MgB<sub>2</sub>상 형성이 원활하게 이루어지지 않았음을 알 수 있었다. 이는 낮은 소결온도로 인하여 Mg의 용융이 부분적으로 일어나 B층 내부로의 Mg 확산이 완전히 이루어지지 않은 것으로 판단된다. 그러나 700-1000°C 범위에서는 MgB<sub>2</sub>상이 주상(major phase)으로 관찰되었으며, 소량의 MgO가 형성된 것을 확인할 수 있었다. 모든 온도 조건에서 소량의 MgO가 관찰되는 데 이는 소결공정 또는 이전의 가공공정 중 산화력이 큰 Mg 분말이 대기 중의 산소와 반응하여 형성된 것으로 판단된다. 700°C, 800°C 및 1000°C의 온도에서 Fe가 소량 검출된 것을 확인할 수 있는데, 이는 X-선 회절분석을 위한 시편 준비 시 Fe 피복재가 완전히 제거되지 못했거나 피복재로부터 MgB<sub>2</sub> core 내로의 Fe 확산에 의한 것으로 판단된다.

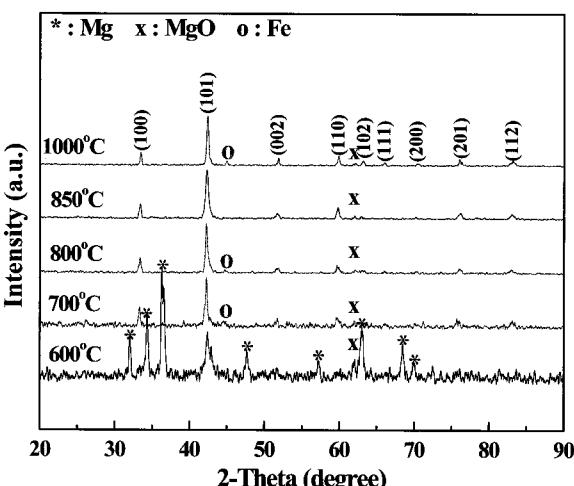


Fig. 1. XRD patterns of in-situ MgB<sub>2</sub> wires sintered at various temperatures.

미세조직을 관찰한 결과, 소결온도 증가에 따라 MgB<sub>2</sub> core의 밀도(densification) 변화가 뚜렷하게 관찰되지 않았다. 또한 MgB<sub>2</sub>의 결정립 크기가 미세하여 주사전자현미경으로 미세조직 관찰이 용이하지 않아 투과전자현미경(TEM)을 이용하여 MgB<sub>2</sub> 결정립의 크기나 형상의 변화 관찰 및 제 2상(secondary phase) 형성에 의한 효과 분석을 추후 진행할 예정이다.

소결온도에 따른 임계온도 변화를 MPMS를 이용하여 측정하였다. 600°C, 700°C, 800°C, 850°C 및 1000°C로 소결된 선재의 임계온도는 각각 31.1 K, 36.4 K, 36.7 K, 37.0 K, 38.4 K으로 측정되었으며(Fig. 2의 좌측하단 그림), 소결온도 증가에 따라 임계온도가 증가하는 것을 알 수 있었다. 600°C 시편의 경우, XRD(X-Ray Diffraction) 분석결과에서 보여지듯이 완전하게 MgB<sub>2</sub>가 형성되지 못하였기 때문에 상대적으로 가장 낮은 임계온도를 가지는 것으로 판단된다. 소결온도가 증가 할수록 임계온도가 증가하는 경향은 다른 연구 그룹의 결과와 일치하였다 [9].

소결온도에 따른 임계전류밀도 변화를 Fig. 2에 나타내었다. 600°C에서 소결처리된 시편은 다른 온도에서 소결처리된 시편들의 임계전류밀도 값에 비해 크게 낮은 값을 보이는데, 이는 임계온도 측정 결과와 마찬가지로, 완전한

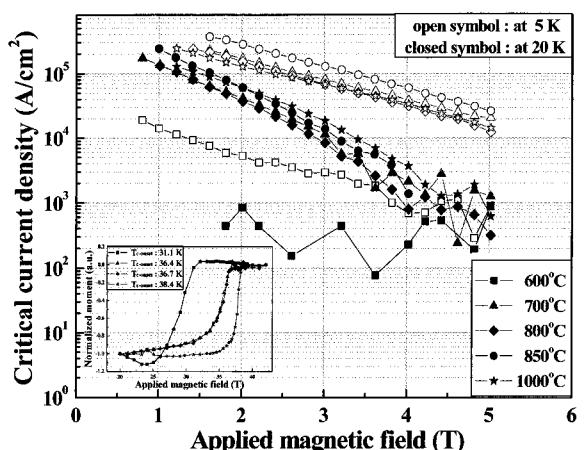


Fig. 2. The magnetic  $J_c(\mu_0H)$  curves at 5 K and 20 K for MgB<sub>2</sub> wires sintered at various temperatures.

$\text{MgB}_2$ 상 형성이 유도되지 못하였기 때문인 것으로 판단된다. 700°C에서 소결처리된 시편은 다른 온도에서 소결처리된 시편에 비해 자장 증가에 따른 임계전류밀도 감소율이 상대적으로 작은 것으로 측정되었다. 이를 통해 6 T 이상의 외부자장 하에서 임계전류밀도값의 감소가 다른 온도에서 소결처리된 시편들의 임계전류밀도값의 감소에 비해 작아서 상대적으로 우수한 임계전류밀도 특성을 가질 것으로 사료된다. 850°C에서 소결처리된 시편의 경우, 2 T 이하의 낮은 자장 하에서는 다른 시편들에 비해 가장 높은 임계전류밀도값을 나타내었으며, 1.6 T의 자장 하에서 5 K과 20 K에서의 임계전류밀도값이 각각  $3.7 \times 10^5 \text{ A/cm}^2$ 와  $1.0 \times 10^5 \text{ A/cm}^2$ 으로 측정되었다. 특히, 5 K, 1.6 ~ 5 T 자장 하에서는 다른 온도에서 소결처리된 시편들의 임계전류밀도값 보다 약 2배 정도 높았다. 이는 Mg와 B의 조성비 변화 없이 순수한  $\text{MgB}_2$ 가 형성되었기 때문으로 판단된다. 소결온도를 1000°C로 증가시킨 선재의 경우에는  $\text{MgB}_2$ 의 결정립 내부에서의 조성 불균일을 초래하게 되어[11] 임계온도의 편차가 발생하는 변화가 수반되고, 이로 인해 임계 전류 밀도가 저하되는 것으로 사료된다.

## (2) SiC 함량에 따른 미세조직 및 임계특성 변화

In-situ  $\text{MgB}_2$  선재에서 SiC 함량에 따른 상형성 및 이상의 존재여부를 알아보기 위해 X-선 회절분석을 실시하였고 그 결과를 Fig. 3에 나타내었다. 각 시편에 대한 X-선 회절 패턴을 상대강도비가 가장 높은  $\text{MgB}_2$  (101) peak을 기준으로 평준화시켰다. 모든 시편에서  $\text{MgB}_2$ 가 주상으로 형성되었고, SiC의 첨가량에 따라  $\text{SiC}$ ,  $\text{Mg}_2\text{Si}$ ,  $\text{MgB}_6$ ,  $\text{MgB}_{12}$ ,  $\text{MgO}$ 와 같은 제 2상들이 다량 형성되었음을 알 수 있다. 그림에서 보듯이, SiC 함량이 증가함에 따라  $\text{MgB}_2$  core 내에 존재하는  $\text{SiC}$ 상이나  $\text{Mg}_2\text{Si}$ 상과 같은 제 2상에 대한 상대 강도비가 증가하였으며, 20 wt.%의 SiC가 첨가된 시편의 경우에는 SiC가  $\text{MgB}_2$ 상 형성 시 완전히 도핑되지 못하고 선재의 core 내부에 잔존하는 것으로 판단된다. 더욱이 800

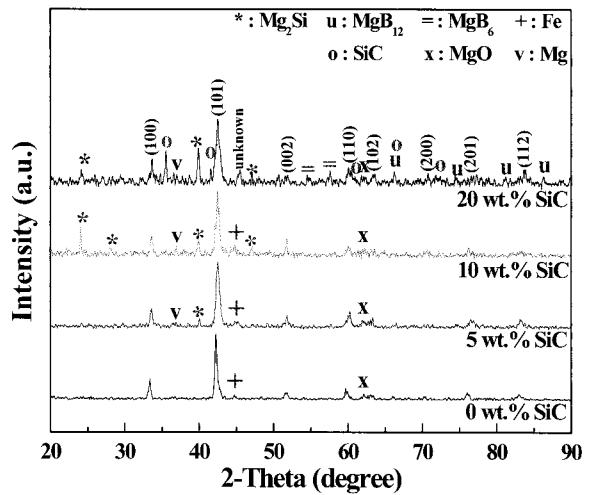


Fig. 3. XRD patterns for SiC-doped  $\text{MgB}_2$  wires.

°C에서 용융된 Mg와 SiC와의 반응으로  $\text{Mg}_2\text{Si}$ 상이 형성되었으며, 이러한  $\text{Mg}_2\text{Si}$ 상 형성으로 인해 1 : 2의 화학조성이 맞지 않은  $\text{MgB}_6$ 나  $\text{MgB}_{12}$ 와 같은 비초 전도상이 형성된 것으로 사료된다. 모든 시편에서 관찰되는  $\text{MgO}$ 상은 앞서 소결온도 변수 실험에서와 마찬가지로 소결공정 이전의 가공공정에서 산소와 Mg와의 반응으로 형성되었거나, 고온의 소결공정에서 산화력이 높은 Mg가 보다 쉽게 산화되어 형성된 것으로 추측되며, 향후 산화를 방지할 수 있는 소결공정의 도입이 필요할 것으로 판단된다.

Fig. 4는 SiC 함량에 따른  $\text{MgB}_2$  선재 core의 주사전자현미경 사진(배율 : 300)이다. 소결공정 시 Kirkendall 효과에 의해 발생된 공동(void)이 관찰되었고, SiC의 함량 증가에 따른 core의 밀도 변화와 X-선 회절분석에서 확인된 제 2상은 관찰되지 않았다. 특히, SiC의 함량이 0 wt.%와 5 wt.%인 경우 core 내부에 다수의 미세균열(micro-crack)이 관찰되었으며 SiC 함량 증가에 따라 미세균열의 정도가 감소하는 경향을 나타냈다. 이는 소결공정 동안에  $\text{MgB}_2$ 의 합성과 소결 효과에 의해 발생되는 부피수축(volume shrinkage)으로 미세균열이 형성되고 전파되는 현상이 SiC의 첨가로 인해 완화된 것으로 판단된다. 그러나  $\text{MgB}_2$ 의 결정립 크기 및

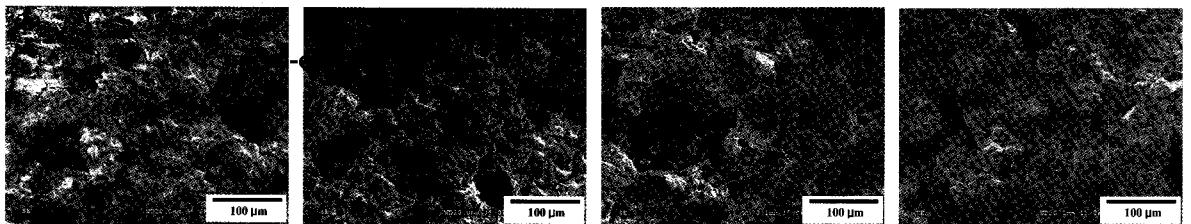


Fig. 4. SEM images of the cores of the (a) undoped, (b) 5 wt.% SiC-doped, (c) 10 wt.% SiC-doped, (d) 20 wt.% SiC-doped  $\text{MgB}_2$  wires.

형상의 변화는  $\text{MgB}_2$ 의 결정립 크기가 미세하여 주사전자현미경을 통한 분석으로는 관찰할 수 없었으며, SiC 함량에 따른  $\text{MgB}_2$ 의 결정립 형태를 관찰하기 위해 향후 투과전자현미경을 통한 분석이 요구된다.

Fig. 5는 in-situ  $\text{MgB}_2$  선재에 도핑물질로 첨가된 SiC의 함량에 따른 임계온도와 임계전류밀도 변화를 나타내었다. 좌측 하단에 삽입된 그림은 각 시편들의 임계온도를 나타내었다. 첨가된 SiC의 함량이 0 wt.%, 5 wt.%, 10 wt.%, 20 wt.%로 증가함에 따라 임계온도가 각각 36.6 K, 34.6 K, 33.6 K, 32.1 K으로 감소하는 경향을 관찰할 수 있었다. 이는 SiC의 도핑 함량에 따라 임계온도가 감소된 기존 연구 결과와 유사한 경향을 보인다[10]. 0~3 T의 자장 영역에서 5 K과 20 K의 온도에 대한 임계전류밀도값은 SiC

가 첨가되지 않은 시편이 가장 높았으며, SiC의 함량 증가에 따라 감소하는 경향이 관찰되었다. 5 wt.%의 경우, 5 K, 0~3 T의 낮은 자장 하에서는 SiC를 첨가하지 않은 시편에 비해 상대적으로 낮은 임계전류밀도값을 가지나 자장 증가에 따른 임계전류밀도의 감소율을 비교해 보았을 때는 약 3.6 T를 교차점으로 시작하여 상대적으로 더 높은 값을 가지며 5 T 이상의 높은 자장영역에서도 상대적으로 높은 임계전류밀도값이 예상된다. 10 wt.%와 20 wt.%의 SiC가 첨가된 시편들은 서로 유사한 겨울을 보였으며, 5 K의 온도에서 각각 약 4.8 T, 5.0 T를 교차점으로 시작하여 5 T 이상의 높은 자장 영역에서 상대적으로 높은 임계전류밀도값을 가질 것으로 예상된다. 이러한 SiC 함량에 따른 자장 하에서의 임계특성 변화는 낮은 자장 하에서는 SiC나  $\text{Mg}_2\text{Si}$ 와 같은 제 2상들이  $\text{MgB}_2$  내에서 불순물로 작용하여  $\text{MgB}_2$  초전도체가 차지하는 체적분율을 감소시키거나 결정립계에서 weak-link로 작용하게 되지만 상대적으로 높은 자장 하에서는 이러한 제 2상들이 pinning center로 작용하여 임계전류밀도값의 향상에 기여하기 때문인 것으로 사료된다. 특히 본 연구에서는 5 wt.%의 SiC를 첨가한 시편의 경우, 다른 시편에 비해 넓은 자장영역에서 상대적으로 높은 임계전류밀도 값을 가지는 것으로 판단된다.

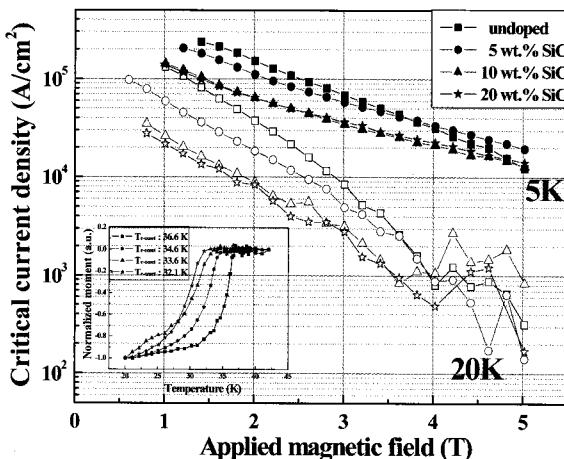


Fig. 5. The magnetic  $J_c(\mu_0\text{H})$  curves at 5K and 20K for the undoped and 5 wt%, 10 wt%, 20 wt% SiC-doped  $\text{MgB}_2$  wires.

#### IV. Conclusions

본 연구에서는 PIT법을 이용하여 제조한 in-situ  $\text{MgB}_2$  선재의 소결온도(600 °C, 700 °C, 800 °C,

850°C, 1000°C)와 SiC의 함량(5 wt.%, 10 wt.%, 20 wt.%)에 따른 미세조직 및 임계특성 변화를 관찰하였다. 소결온도 600°C인 시편의 경우, Mg과 B의 원활한 확산이 발생하지 못하여 MgB<sub>2</sub>상 이외에 제 2상 및 Mg가 관찰되었다. 반면에 700-1000°C 범위에서 소결한 선재는 MgB<sub>2</sub>상과 소량의 MgO가 형성되었다. 소결온도 증가에 따라 임계온도가 증가하는 경향을 보였으며 특히 소결온도 850°C의 선재에서 가장 높은 임계전류밀도 ( $3.7 \times 10^5$  A/cm<sup>2</sup> at 1.6 T, 5 K)값을 나타내었다. 또한 자장 하에서의 임계전류밀도 특성 향상을 위하여 도핑물질로 SiC를 선정하여 그 함량에 따른 미세조직 및 임계특성 변화를 연구하였다. SiC 함량에 따른 core의 밀도 변화는 관찰되지 않았으며, SiC 함량 증가에 따라 미세균열이 감소하는 경향을 나타내었다. 또한 SiC 첨가량의 증가에 따라 임계온도는 감소하였으나 외부 자장증가에 따른 임계전류밀도값은 pure MgB<sub>2</sub>에 비해 향상되었으며, 특히 5 wt.% SiC가 첨가된 선재에서 가장 우수한 특성을 나타내었다.

## Acknowledgments

This research was supported by a grant (R-2006-1-248) from Electric Power Industry Technology Evaluation & Planning (ETEP), Republic of Korea

## References

- [1] J. Nagamatsu, N. Nakagawa, T. Muranaka, Y. Zenitani, J. Akimitsu, "Superconductivity at 39 K in magnesium diaboride," *Nature*, 410, 63-64 (2001).
- [2] Cristina Buzea and Tsutomu Yamashita, "Review of the superconducting properties of MgB<sub>2</sub>," *Supercond. Sci. Technol.*, 14, 115-146 (2001).
- [3] K Vinod, R G Abhilash Kumar and U Syamaprasad, "Prospects for MgB<sub>2</sub> superconductors for magnet application," *Supercond. Sci. Technol.*, 20, 1-13 (2007).
- [4] G. Yan, Y. Feng, Y.F. Lu, L. Zhou, W.X. Jing, H.H. Wen, "Influence of heat treatment and doping on microstructure and superconducting properties of MgB<sub>2</sub> superconductor," *Physica C*, 445, 466-470 (2006).
- [5] J H Kim, S X Dou, J L Wang, D Q Shi, X Xu, M S A Hossain, W K Yeoh, S Choi and T Kiyoshi, "The effects of sintering temperature on superconductivity in MgB<sub>2</sub>/Fe wires," *Supercond. Sci. Technol.*, 20, 448-451 (2007).
- [6] O. Shcherbakova, S. X. Dou, S. Soltanian, D. Wexler, M. Bhatia, M. Sumption and E. W. Collings, "The effect of doping level and sintering temperature on J<sub>c</sub>(H) performance in nano-SiC doped and pure MgB<sub>2</sub> wires," *J. Appl. Phys.*, 99, 08M510 (2006).
- [7] A Matsumoto, H Kumakura, H Kitaguchi and H Hatakeyama, "Effect of impurity additions on the microstructures and superconducting properties of *in situ*-processed MgB<sub>2</sub> tapes," *Supercond. Sci. Technol.*, 17, 319-323 (2004).
- [8] G Liang, H Fang, Z P Luo, C Hoyt, F Yen, S Guchhait, B Lv and J T Markert, "Negative effects of crystalline-SiC doping on the critical current density in Ti-sheathed MgB<sub>2</sub>(SiC)<sub>y</sub> superconducting wires," *Supercond. Sci. Technol.*, 20, 697-703 (2007).
- [9] M Eisterer, R Müller, R Schöppl, H W Weber, S Soltanian and S X Dou, "Universal influence of disorder on MgB<sub>2</sub> wires," *Supercond. Sci. Technol.*, 20, 117-122 (2007).
- [10] S. X. Dou, A. V. Pan, S. Zhou, M. Ionescu, X. L. Wang, J. Horvat, H. K. Liu and P. R. Munroe, "Superconductivity, critical current density, and flux pinning in MgB<sub>2-x</sub>(SiC)<sub>x/2</sub> superconductor after SiC nanoparticle doping," *J. Appl. Phys.*, 94, 1850-1856 (2003).
- [11] S.C. Yan, G. Yan, C.F. Liu, Y.F. Lu, L. Zhou, "Experimental study on the phase formation for the Mg-B system in Ar atmosphere," *J. Alloy Comp.*, 437, 298-301 (2007).