

MgB₂ 초전도체 임계전류 해석

오상준, 강원남
국가핵융합연구소, 성균관대학교 물리학과

1. 서 론

초전도 선재의 임계전류는 로렌츠 힘과 자속 꽂음 힘의 균형에서 정해진다. ($F_p = I_c \times B$) 흥미롭게도 자속 꽂음 힘의 자장의 존성은 최대 자속 꽂음 힘과 임계자장으로 규격화할 경우, 하나의 곡선으로 나타나고 비교적 간단한 수식으로 기술할 수 있다. ($F_p = F_{p,\max} \cdot f(b)$, $f(b) = b^p \cdot (1-b)^q$, $b = B/B_{c2}$) 이를 자속 꽂음 힘의 스케일링 법칙이라 하며, 특히 Nb₃Sn 등의 저온 초전도 선재에서는 비교적 잘 맞음이 알려져 있다 [1-3]. 스케일링 법칙을 활용하면 자장, 온도 혹은 변이에 의한 임계전류의 변화를 쉽게 계산할 수 있으며, 초전도 자석의 효율적인 설계에 널리 활용되고 있다. 또한 스케일링 함수 $f(b)$ 의 모양 그리고 최대 꽂음 힘 $F_{p,\max}$ 의 임계자장 혹은 긴즈버그-란다우 상수의 존성은 자속 꽂음의 물리적인 이유와 연관이 되어 있어 선재 성능 향상을 위한 중요한 지표로 활용될 수도 있다.

MgB₂ 초전도체는 40 K 정도의 비교적 높은 임계온도로 발견된 이래 많은 주목을 받아왔으며 선재 제조도 빠르게 이루어져 이를 시일에 널리 사용될 것으로 예상된다. MgB₂ 초전도 선재의 경우에도 Nb₃Sn 선재와 유사하게 임계 경계가 주요한 자속 꽂음 힘의 요인으로 알려져 있으나 [4], MgB₂ 초전도 선재는 내부에 공극이 많은 것으로 알려져 있고 이에 따른 임계 간의 연결 정도 등의 문제가 논의되고 있다 [5,6]. 또한 MgB₂ 초전도체는 고온 초전도체 보다는 작지만 자기이방성 특성을 보이는 것으로 알려져 있다. 선재를 제조할 경우, 결정립의 방향의 임의로 정렬된 임계 구조는 피할 수 없으며 이에 의한 자기이방성 효과를 고려하지 않을 수 없다. 최근 이를 고려한 여과 모델(percolation model)이 보고되었고 이는 비교적 MgB₂ 초전도 선재의 임계전류 특성을 잘 설명하고 있는 것으로 알려져 있다 [7]. 여기에서는 먼저 임계전

류 해석의 근간이 되는 자속 꽂음에 관한 최근 결과를 소개하고 사례 중심으로 최근의 여과 모델을 중심으로 한 임계전류 특성 분석 기법을 살펴보고자 한다. 선재의 임계전류 해석 방법을 Nb₃Sn 스케일링 법칙과 여과 모델을 비교하여 설명하고 여과 모델 적용 예로써 도핑된 선재와 도핑되지 않은 선재의 임계전류 특성 분석을 살펴보도록 한다.

2. 자속 꽂음 (Flux pinning)

다른 금속 초전도체에 비해 월등한 초전도 특성을 가지고 있는 MgB₂ 초전도체를 선재로 응용하기 위해서는 고자장에서 고전류를 수송할 수 있는 고성능 선재를 제조하는 기술 개발이 필요하다 [8]. 고자장에서 임계전류를 향상시키기 위해서는 자속 꽂음 기구에 대한 연구가 매우 중요하다. 2종 초전도체인 MgB₂ 초전도체에 하부임계자기장(H_{c1}) 보다 큰 자기장이 인가되면 자속이 초전도체 내부로 침투하게 된다. 이 때 자속은 $\Phi_0 (= h/2e)$ 의 크기로 양자화되어 침투하는데, 이를 자속(vortex) 혹은 플럭손(fluxon)이라고 한다. 원통구조인 자속 중심(core)은 상전도 상태이며 그 주변에는 초전도 전류가 회전한다. 자속이 침투된 상태인 혼합상태(mixed state)에서 전류가 인가되면 자속은 로렌츠 힘에 의해 전류와 자기장의 방향에 수직하게 움직이고 그 결과 저항이 발생하여 에너지 손실이 일어난다. 이러한 에너지 손실은 자속이 움직이는 동안 초전도 상태를 상전도 상태로 바꾸는 과정에서 발생하므로 자속을 움직이지 못하도록 고정(pinning)하면 에너지 손실을 막을 수 있다. 이와 같이 자속을 고정시키는 것을 자속 꽂음이라고 한다.

자속의 운동을 막기 위해서는 자속 중심과 유사한 크기의 상전도 혹은 절연체 상태의 고정점을 인위적으로 만들어서 고정시킬 필요가 있다. 자속 꽂음점은 크게 점결합, 판상

MgB₂ 신재 특집

결합, 원통형 결합으로 나눌 수가 있으며, 점결합의 원인으로 결정결합, 빈공간(voids), 뒤틀림, 불순물첨가 등을 들 수 있고, 판상결합은 결정립계면(grain boundaries)과 트윈면(twin planes) 등에 기인한다. 한편 자속 꽂음 효과는 결합의 부피에 비례한다. 가장 좋은 결합은 원통형 결합이며 점결합이 그 효과가 가장 작다. 이러한 결합이 임계전류밀도에 미치는 영향을 실험결과를 바탕으로 예를 들어 설명하고자 한다.

그림 1은 HPCVD (hybrid physical-chemical vapor deposition) 방법으로 제조한 박막에 대한 표면 SEM 사진과 자기장의 변화에 따른 임계전류밀도이다. 560 °C에서 제조한 박막은 (그림 1(a)) 기판의 표면에 원주(Column)형으로 성장하였으며, 결정립 계면이 뚜렷하고 계면은 기판의 표면에 수직하다. 따라서 결정립 계면은 판상결합형 고정점이 되며 3개의 결정립이 만나는 지점은 원통형 결합과 같은 효과를 예측할 수가 있다. 그림 1(b)는 고온(650 °C)에서 성장된 에피택시 박막으로 결정립계면과 점결합에 의한 자속 꽂음 효과가 임계전류 현상에 반영이 되겠지만, 그림 1(a)의 박막에 비해 자속을 고정시키는 힘(pinning force)이 작을 것이다. 왜냐하면 자속 꽂음 힘은 상전도 혹은 절연체 불순물의 부피에 비례하며, 그림 1(b)의 에피택시 박막인 경우가 그림 1(a)의 원주형 박막에 비해 결정립 간격이 좁고 점결합 밀도도 작기 때문이다. 이러한 결과를 바탕으로 그림 1(c)에서 보여주는 자기장 변화에 따른 임계전류밀도 변화를 쉽게 설명할 수가 있다. 예를 들어 $H = 0$ 과 $T = 30$ K에서 임계전류 밀도는 에피택시 박막이 원주형 박막에 비해 3배 정도 큰 반면, $H = 4$ T와 $T = 5$ K에서의 임계전류밀도는 에피택시 박막이 원주형 박막에 비해 10배 정도 작아지는 역전 현상이 나타난다. 즉, 자속이 없는 $H = 0$ 에서는 결정립계면 간격이 좁을수록 초전도 전류가 잘 통과하는 반면, 고자장(4 T)에서는 자속을 고정시키는 자속 꽂음 힘이 클수록 임계전류밀도가 커지기 때문에 나타나는 현상이다.

따라서 MgB₂ 초전도체의 고자장 임계전류 밀도를 향상시키기 위해서는 가능한 결정립 크기를 작게 제조하는 동시에 선재의 밀집도 크게 향상시킬 필요가 있다. PIT(Powder-

in-tube)법으로 제조한 MgB₂ 초전도 선재의 임계전류 한계를 극복하기 위해 최근에는 고온 초전도 선재 제조에 응용되고 있는 방법과 유사하게 Cu, SUS, Hastelloy 등을 기판으로 하여 MgB₂ 테이프를 제조하는 CC(coated conductor) 제조 기술에 대한 연구도 수행되고 있다 [9-11].

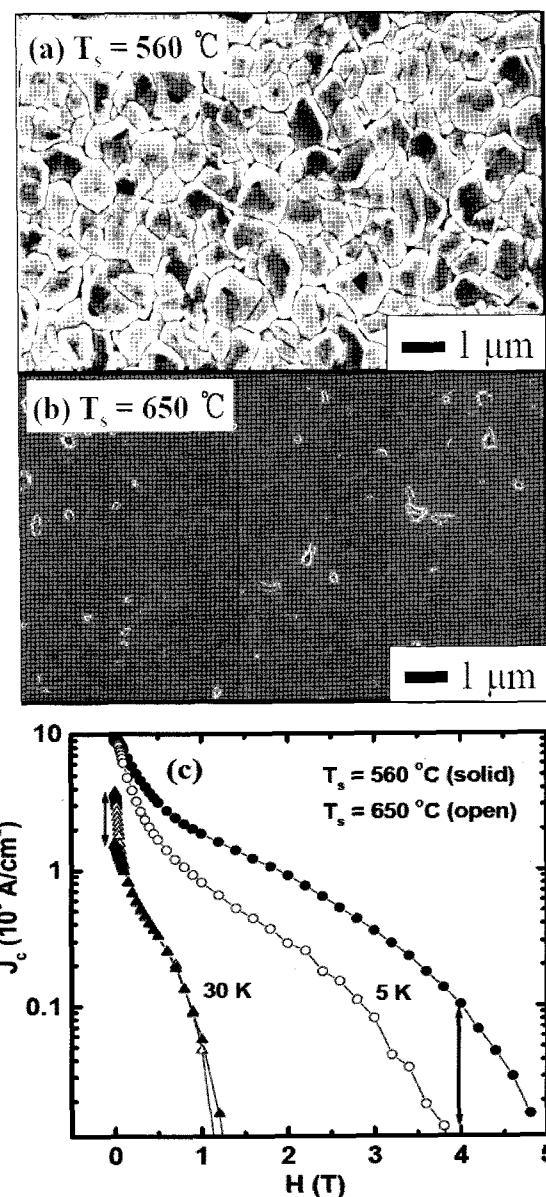


그림 1. HPCVD법으로 제조한 MgB₂ 박막의 표면 SEM 사진(a, b)과 자기장의 변화에 따른 임계전류밀도(c). (a): 저온(560 °C)에서 제조한 원주구조 박막, (b): 고온(650 °C)에서 제조한 에피택시 박막.

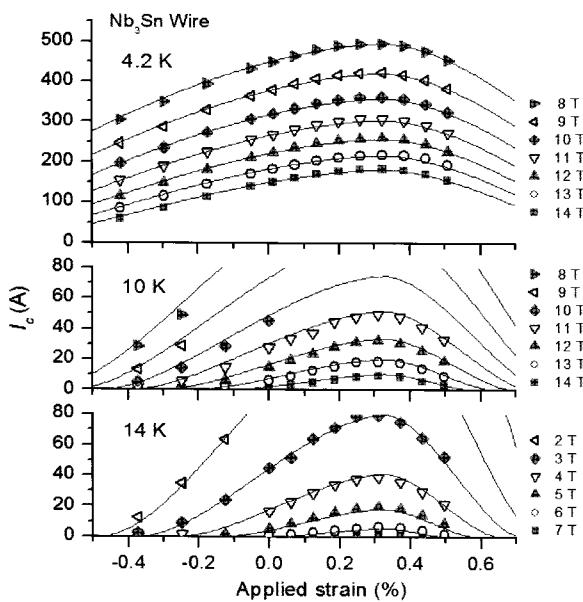


그림 2. Nb₃Sn 초전도 선재의 여러 자장, 온도 및 변이 하에서의 임계전류 변화. 실선은 식(1)로 계산한 결과임.

3. Nb₃Sn 스케일링 법칙

Nb₃Sn 초전도체는 대체로 일계 경계면이 주요 자속 꽂음 힘의 원인으로 이야기되고 있다. 일계 경계면이 주요한 자속 꽂음인 여러 모델이 있으나 최근에 여러 분석 결과는 이론적으로 논란의 여지가 있음에도 크레이머(Kramer) 모델이 실험결과와 잘 부합함을 보여 주고 있다. 크레이머 모델에 따르면 일계 전류는 다음과 같이 기술될 수 있다 [12].

$$F_p = I_c \times B = F_{p,\max} \times b^{0.5} \cdot (1-b)^2, \\ F_{p,\max} = F_m \times B_{c2}^{2.5} \cdot k^{-2} \quad (1)$$

Nb₃Sn 초전도체의 일계자장 등은 미시적 이론인 BCS 이론에 근거한 강상관관계 이론(strong coupling theory)에 의해 계산할 수 있으며 예를 들어 긴즈버그-란다우 상수의 온도, 변이 의존성은 아래와 같이 기술될 수 있다.

$$\kappa(T, \varepsilon) = \kappa(0, 0) \cdot (1 - \gamma |\varepsilon|^{1.7}) \cdot k(T, \varepsilon), \\ k(T, \varepsilon) = [1 + u \cdot g(\varepsilon) \cdot (1 - t^v)] / [1 + u \cdot g(\varepsilon) \cdot (1 - t^v)], \\ g(\varepsilon) = (1 - \gamma |\varepsilon|^{1.7}) / (1 - a |\varepsilon|^{1.7}), \quad t = T/T_c \quad (2)$$

여기서 a , γ 등은 변이 의존성과 관계된 상수

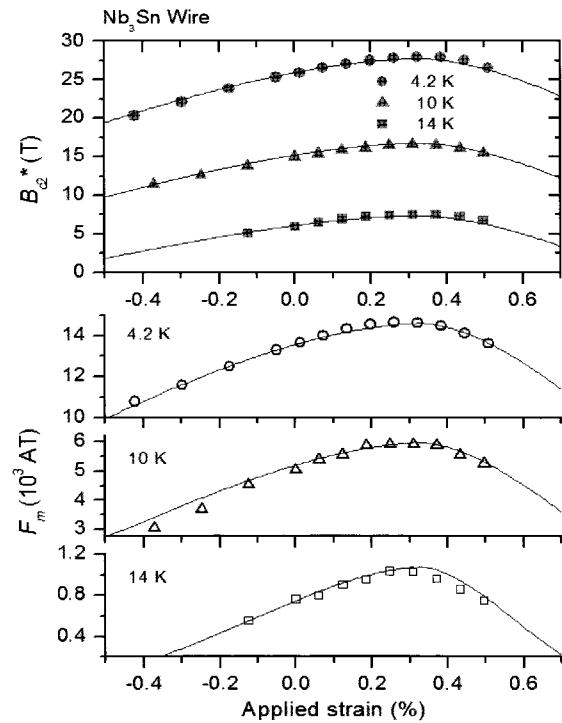


그림 3. 그림 2의 측정결과를 이용한 크레이머 plot으로 구한 일계자장 및 최대 꽂음 힘. 실선은 식(2)로 계산한 결과임.

로 물질의 전자-포논 결합상수에 의해 영향을 받는 값이며, u 및 v 는 일계전류의 온도의 존성에 영향을 주는 변수로 물질의 불순물 농도에 의해 변화하는 값이다.

그림 2는 KAT에서 제작된 내부확산법으로 제조된 Nb₃Sn 초전도 선재의 여러 자장, 온도 및 변이에서의 일계전류 변화로 상기 스케일링 법칙으로 잘 설명됨을 알 수 있다. 또한 이러한 방법은 일계자장 등의 분석에도 유용함을 그림 3에서 알 수 있다. 그림 3는 그림 2에 나타난 결과는 소위 크레이머 도식(Kramer plot)이라는 방법을 이용하여 구한 일계자장 및 최대 꽂음 힘의 온도, 변이 의존성으로 이 역시 식(1)에 사용된 변수와 동일한 변수를 이용하여 식(2)로 계산할 수 있음을 알 수 있다. 이러한 방법은 선재의 일계전류를 수식으로 표현할 수 있게 하여 초전도 자석 설계에 활용될 수 있을 뿐 아니라 Nb₃Sn 초전도 선재에 미치는 여러 요인에 의한 효과를 정량화하여 예를 들어 불순물 농도 혹은 열처리 조건 등의 개선에 활용되고 있다.

4. 여과 모델 (percolation model)

서론에 언급한 것처럼 MgB₂ 초전도 선재의 경우에도 위와 같은 입계 경계가 주요한 자속 꽂음 힘의 요인으로 알려져 있으나 [4], 또한 공극에 의한 입계 사이의 연결성도 중요한 문제로 대두되고 있다. 초창기의 리뷰 논문에서 Rowell은 여러 시료의 저항 값 비교 분석을 통해 비교적 불순물이 적은 시료에 대해 비저항 값으로 입계의 연결성 정도를 표현하는 간단한 수식을 제안하였고 현재도 널리 사용되는 지표의 하나로 이용되기도 한다 [5]. 최근에 Yamamoto 등은 이를 좀 더 발전시켜 공극율과 산화층을 고려한 저항 값의 변화를 모델링하기도 하였다 [6]. 하지만 앞서 언급한 것처럼 선재의 다입계 구조에 의한 자기 이방성 효과는 선재의 임계전류 특성에 고려해야 할 매우 중요한 변수의 하나이다.

그림 4는 보론 면에 평행한 방향으로의 임계자장이 14 T이고 자기이방성 변수가 4.5 일 경우에 선재 내 각 입계의 자장에 따른 임계자장 별 확률분포이다. 전체 입계의 방향 분포는 등방적인 것으로 가정하였다. 그림 4에서 보듯 외부 인가자장이 보론 면에 수직한 방향의 임계자장보다도 작은 경우에는 전체 입계가 임계전류에 기여할 수 있지만 그 이상의 자장이 가해지는 경우에는 임계전류는 급격히 감소할 것임을 쉽게 예측할 수 있다.

Eisterer 등은 이러한 자기이방성 효과를 고려한 여과 모델을 제안하였다. 여과 모델에서는 다음의 세 가지 이론을 적용하고 있다 [7].

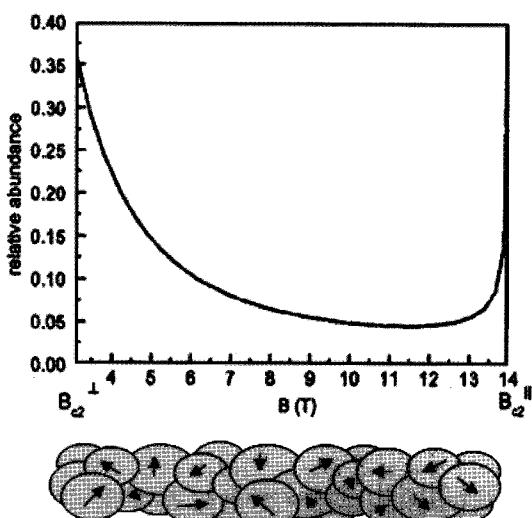


그림 4. (위) 선재 내 입계의 임계자장 분포도. (아래) 선재 내 입계의 방향 분포 예.

(1) 긴즈버그-란다우 관계식

MgB₂ 초전도체는 두 개의 캡을 가지고 있는 초전도체로 통상의 초전도체와 자기이방성 특성이 조금은 다르지만 임계자장의 보론 면과의 방향에 대한 의존성은 대강 아래와 같은 기존의 긴즈버그-란다우 관계식을 만족함이 알려져 있다.

$$B_{c2}(\theta) = B_{c2,para} / \sqrt{\gamma^2 \cos^2(\theta) + \sin^2(\theta)}$$

(2) 크레이머 자속 꽂음 모델

입계 경계가 주요 자속 꽂음의 원인인 크레이머의 자속 꽂음 모델은 앞 절에서 간단히 소개한 바 있으며 이 때 임계전류는 아래와 같이 간단히 정리할 수 있다.

$$J_c = F_m \cdot (1 - B / B_{c2}(\theta))^2 / \sqrt{B_{c2}(\theta)B}$$

(3) 여과 이론 (percolation theory)

여과 이론은 1970년대에 입계가 많은 금속의 전도도를 설명하기 위해 제안되었다. 이는 입계 간의 초전도 전류 흐름으로 계산하는 방식으로 발전되었으며 아래와 같은 적분방정식의 형태로 기술된다.

$$J_c(B) = \int_0^{J_c^{\text{max}}(B)} \left(\frac{p(J) - p_c}{1 - p_c} \right)^t dJ,$$

이상의 세 가지 이론을 적용하면, 임계자장, 최대 꽂음 힘, 자기이방성 상수 그리고 여과 상수(percolation threshold), 4개의 변수로 임계전류의 변화를 기술할 수 있게 된다. 임계전류 분석법으로 구한 변수의 값과 실제 측정값과의 연관성은 이미 보고된 바 있다. 다음 절에서는 여과 모델의 실제 적용 예로써 탄소 도핑된 MgB₂ 초전도 선재와 도핑되지 않은 선재의 분석 결과를 소개하고자 한다.

5. MgB₂ 임계전류 분석

그림 5는 여러 자장 및 온도 하에서의 Hyper Tech 초전도 선재의 임계전류 변화 측정결과이다. 채워진 도형으로 나타낸 결과는 도핑된 시료이고 그렇지 않은 것은 도핑되지 않은 선재의 임계전류 측정값이다. 그

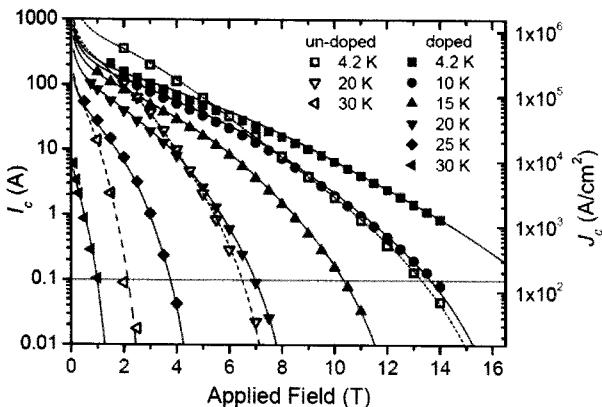


그림 5. MgB₂ 초전도 선재의 여러 자장, 온도에서의 임계전류 밀도 변화. 실선은 여과 모델로 계산한 결과임.

동안 많이 보고되어 진 것처럼 탄소 도핑은 고자장에서의 임계전류를 크게 향상시키고 있으나 낮은 자장에서는 임계전류가 감소한 결과를 보여주고 있다. 그림 5의 실선 및 점선은 여과 모델을 통해 계산된 결과이다. 실험결과와 잘 일치하는 것을 알 수 있다.

분석에 사용된 변수의 값은 그림 6에 나타내었다. 일반적으로 탄소 도핑은 자속 꽂음 힘을 증가시키는 것으로 알려져 있으나 임계 전류 분석을 통한 결과는 이와 반대로 오히려 자속 꽂음 힘이 감소됨을 알 수 있다. 이는 도핑에 의해 보다 더 임계전류를 향상시킬 수 있다는 것을 의미하는 것으로 최근 말릭(Malic) 산을 도핑한 경우에 자속 꽂음 힘도 같이 증가시켜 낮은 자장에서의 임계전류 특성도 같이 향상시킬 수 있다는 보고가 있다. 또한 고자장에서 임계전류 특성이 향상되는 것은 그동안 임계자장의 증가로 많이 해석되어 왔지만 자기이방성의 감소 또한 중요한 원인임을 알 수 있다.

Nb₃Sn 초전도체의 임계자장은 강상관관계 이론(strong coupling theory)에 의해 계산할 수 있으나, 두 개의 캡을 가지고 있는 MgB₂ 초전도체의 임계자장을 미시적으로 완벽하게 계산할 수 있는 이론은 아직은 없는 상태이다. 하지만 최근 불순물이 많은 상황에서의 임계자장 이론은 개발된 상태이고 이는 아래와 같은 수식으로 정리된다 [13].

$$2w[\ln t + u(b/t)][\ln t + u(\eta b/t)] + \lambda_2[\ln t + u(\eta b/t)] + \lambda_2[\ln t + u(\eta b/t)] = 0 \quad (3)$$

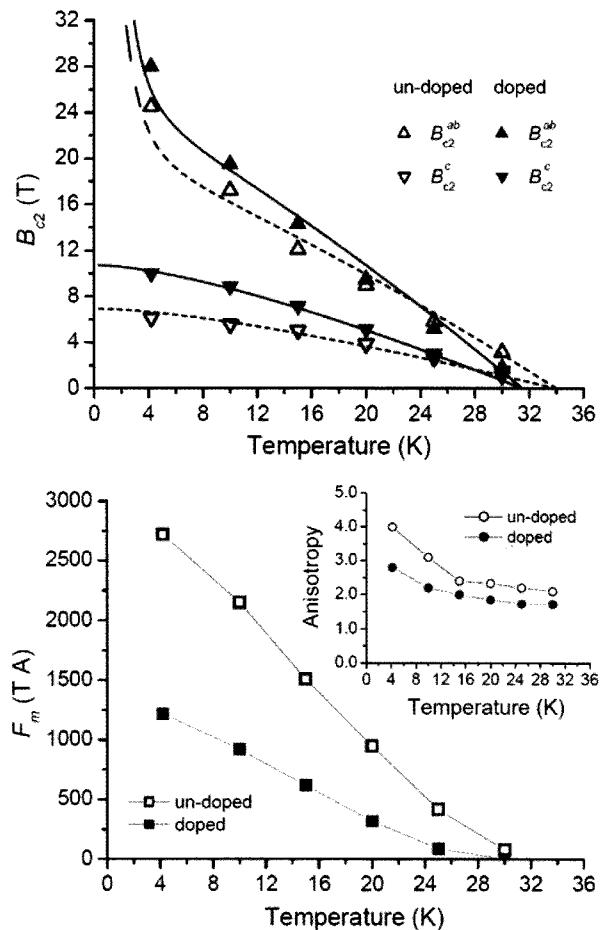


그림 6. (위) MgB₂ 초전도 선재 임계자장의 온도 의존성. (아래) MgB₂ 초전도 선재 최대 꽂음 힘 및 자기이방성의 온도 의존성.

표 1. 식(3)을 이용한 임계자장 온도 의존성 계산에 사용된 변수 값.

	D_{σ}^{ab} (m ² /s)	D_{π}^{ab} (m ² /s)	D_{σ}^c (m ² /s)	D_{π}^c (m ² /s)
Undoped	1.5×10^{-4}	4.3×10^{-6}	4.0×10^{-4}	1.2×10^{-4}
Doped	1.15×10^{-4}	2.8×10^{-6}	2.4×10^{-4}	0.7×10^{-4}

$t = T/T_c$ 그리고 $b = \hbar B_{c2} D_0 / 2\phi_0 k_B T_c$ 로 정의되며 D_0 는 밴드의 확산정도(diffusivity), ϕ_0 는 양자자속이다. 함수 $u(x)$ 는 디감마(digamma) 함수로 정의되는 함수이다. 그림 6의 실선 및 점선은 식(3)으로 계산한 결과이며 분석결과와 조금 불일치하는 것은 이 이론 자체가 불순물이 많은 상태만은 고려한 것으로 실제와는 조금 다르기 때문인 것으로 생각할 수 있다. 이때 사용된 변수 값은 표 1에 정리되어 있으며 도핑에 의해 밴드의 확산정도(diffusivity)가 감

소하고 이것이 임계자장 증가 및 자기이방성 감소의 원인임을 알 수 있다.

더욱 흥미로운 것은 여과 모델에 이용된 변수로 저항의 자장 의존성에 관한 결과를 계산할 수 있다는 것이다. 그림 7은 임계전류 측정에 사용된 선재의 자장-저항 곡선으로 실선은 여과 모델을 활용하여 계산된 결과이다. 보통 자장-저항 곡선에서 정의되는 임계자장 값이 실제 임계자장 값보다 현저히 작을 수 있음을 확인할 수 있다.

여과 모델은 변이 의존성 분석에도 활용될 수 있다. 그림 8은 외부 변이에 따른 임계전류의 변화를 측정한 결과로 Nb₃Sn 초전도체와는 다르게 선형적인 변이 의존성을 보임을 알 수 있다 [14].

$$I_c(\varepsilon) = I_c(0) \cdot (1 + K\varepsilon)$$

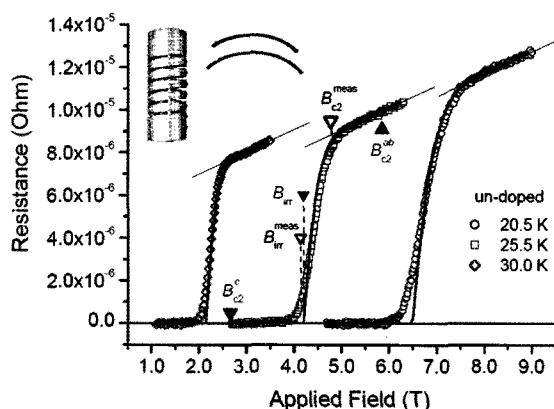


그림 7. 자장에 따른 저항 변화 곡선. 실선은 여과 모델 변수를 사용하여 얻은 결과임.

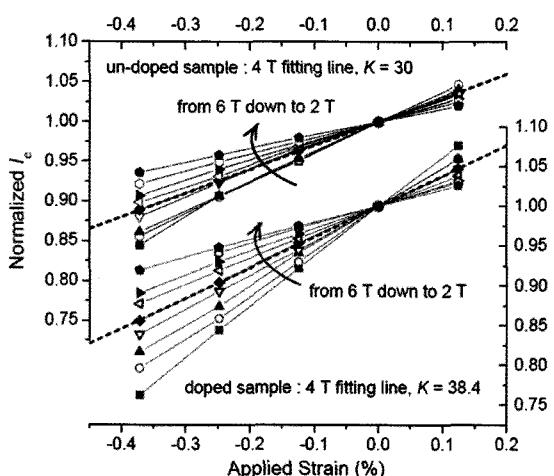


그림 8. 변이에 의한 임계전류의 상대적인 변화. 도핑에 의해 변이 의존성이 증가하고 있음.

또한 도핑에 의해 외부 변이에 의해 임계전류의 변화 폭이 더 큰 것도 확인할 수 있다. 이 결과에 대해 여과 모델을 적용하여 보면 변이에 의한 효과는 주로 자기이방성의 변화에 기인함을 알 수 있고 도핑된 시료의 경우에는 이외에 최대 꽂음 힘의 변화도 있어 변이 의존성이 증가한다고 볼 수 있다.

6. 맷 음 말

이상 간단히 MgB₂ 초전도체의 자속 꽂음 및 선재의 임계전류 특성 분석 시의 이슈들과 최근에 보고된 여과 모델 그리고 이를 적용한 분석 결과를 살펴보았다. 특기할 만한 것은 이러한 분석 결과는 기존에 널리 보고된 바와는 다르게 도핑에 의해 최대 꽂음 힘이 감소하고 있으며 이를 개선하면 낮은 자장에서도 획기적으로 임계전류 특성을 향상 시킬 수 있으리라는 점이다. 이미 말리산을 도핑한 선재에서 저자장 특성이 개선될 수 있음이 보고된 바 있으며 또한 자기이방성 특성의 향상은 고자장에서도 더 좋은 특성 개선이 가능함이 예상된다. MgB₂ 초전도 선재의 응용이 가시화되고 있으나 정량화된 임계전류 분석을 통한 임계전류의 획기적인 개선은 응용범위를 더 크게 할 수 있으리라 기대된다.

참고문헌

- [1] S. Oh and K. Kim, J. Appl. Phys. 99, 033909 (2006).
- [2] D. Taylor and D. Hampshire, Supercond. Sci. Technol. 18, S241 (2005).
- [3] A. Godeke, B. ten Haken, H. ten Kate and D. Larbalestier, Supercond. Sci. Technol. 19, R100 (2005).
- [4] E. Martinez, P. Mikheenko, M. Martinez-Lopez, A. Millian, A. Bevan, J. S. Abell, Phys. Rev. B 75, 134515 (2007).
- [5] J. M. Rowell, Supercond. Sci. Technol. 16, R17 (2003).
- [6] A. Yamamoto, J. Shimoyama, K. Kishio and T. Matsushita, Supercond. Sci. Technol. 20, 658 (2007).

- [7] M. Eisterer, M. Zehetmayer and H. W. Weber, Phys. Rev. Lett. 90, 247002 (2003).
- [8] W. N. Kang et al., Science 292, 1521 (2001).
- [9] T. G. Lee et al., Supercond. Sci. Technol. 16, 045006 (2009).
- [10] H. Abe et al., Appl. Phys. Lett. 85, 6197 (2004).
- [11] K. Komori et al., Appl. Phys. Lett. 81, 1047 (2002).
- [12] E. Kramer, J. Appl. Phy. 44, 1360 (1973).
- [13] A. Gurevich, Phys. Rev. B 67, 184515 (2007).
- [14] S. Oh, J. H. Kim, K. Cho, C. Lee, C.-J. Kim, S. X. Dou, M. Rindfleisch, M. Tomsic and J.-H Ahn, J. Appl. Phy. 106, 063912 (2009).

저자이력



오상준(吳尙峻)

1987-1991년 한국과학기술원 (KAIST) 물리학과 (이학학사), 1991-1998년 한국과학기술원 물리학과 (이학박사), 현재 국가핵융합연구소 (NFRI) 책임연구원.



강원남(康元南)

1990-1994년 성균관대학교 물리학과 박사, 1995-1998년 미국 Houston 대학 연구조교수, 1998-2003년 포스텍 물리학과 연구교수, 2003-2005년 부경대 물리학과 조교수 2005-현재 성균관대학교 물리학과 부교수.