

Infiltration Growth 法による MgB₂ バルクの作製と浸透現象

平成 27 年度入学 22215005 荻野 新

Introduction

MgB₂ は金属間化合物の中で最高の超電導転移温度 $T_c = 39\text{ K}$ を示す。また、RE-Ba-Cu-O 系超電導体 (RE : 希土類元素) に比べてコヒーレンス長が長く弱結合がないため、多結晶体でのバルク作製が可能である。高い捕捉磁場を示す MgB₂ バルクの作製には、充填率を向上させピン止め点である粒界の面積や臨界電流密度を向上させることが重要である。現在、高い充填率を得るための方法としては高圧下で合成を行う HIP(Hot Isostatic Pressing) 法や HP(Hot Press) 法等が主流となっている。しかし、これらの方法は大型の装置が必要であることや、高コストであるといった欠点がある。一方、G. Giunchi らが考案した IG(Infiltration Growth) 法は前駆体 B に Mg 融液を浸透させることで MgB₂ バルクを作製する方法であり、常圧下で高い充填率を得られる^[1]。我々は IG 法を用いてバルクを作製し、HIP 法バルクと同等の捕捉磁場である 2.4 T@15.9K を達成した^[2]。しかし、最適な熱処理条件や Mg の浸透に関しては明らかになっていない。そこで、本研究では、更なる捕捉磁場の向上のための最適な熱処理条件と Mg の浸透現象を明らかにすることを目的とした。

Experiments

B 粉末には結晶性の粉末と非晶質性の粉末があるが、本研究では結晶性粉末を用いた。結晶 B 粉末を SUS 管(外径 10 mm、内径 8 mm)に詰め、5 MPa で加圧した。加圧後の B の高さは 15 mm である。前駆体 B の上に Mg を詰め 5 MPa で再び加圧した後に、Ar 雰囲気中でフィッティングキャップを用いて密封し熱処理した。Mg と B のモル比は 1.1 : 2.0 とした。また、熱処理温度 T_{ht} は 700~900°C、保持時間 t_h は 0~9 h とした。熱処理後、機械加工により試料を切り出した。X 線回折を用いて各試料の組成とピーク強度を調べた。臨界電流密度 J_c は SQUID 磁束計で測定した磁気ヒステリシス曲線から拡張型ビンモデルを用いて算出した。微細組織観察は走査電子顕微鏡(SEM)を用いた。結晶方位と粒径の解析は電子後方散乱解析(EBSD)を用いた。

Results and Discussion

図 1 に各熱処理条件で作製した試料の断面を示す。図 1(a, b)から、700°C-0~4 h 試料には空間があることが分かる。これは、未反応の B が試料の切り出しの際の流水で流され、反応した硬い MgB₂ の部分が残されたためだと考えられる。700°C-0~9 h の試料から、保持時間 t_h を長くするほど MgB₂ の生成が進んでいることが分かる。また、700°C 試料では Mg が SUS 管の底まで浸透するためには 9 h が必要であった。しかし、800°C と 900°C 試料では 1 h で SUS 管の底まで浸透している。これらのことから、高い熱処理温度 T_{ht} 、長い t_h により MgB₂ の生成が促

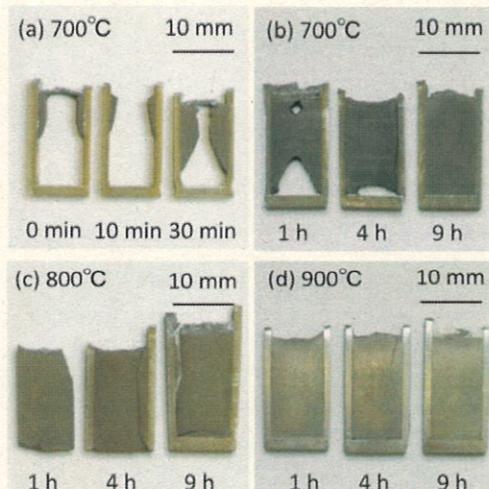


図 1 作製した試料の断面

- (a) $T_{ht}=700\text{ }^\circ\text{C}$, $t_h=0\sim30\text{ min}$ 、(b) $T_{ht}=700\text{ }^\circ\text{C}$, $t_h=1\sim9\text{ h}$ 、
(c) $T_{ht}=800\text{ }^\circ\text{C}$, $t_h=1\sim9\text{ h}$ 、(d) $T_{ht}=900\text{ }^\circ\text{C}$, $t_h=1\sim9\text{ h}$

進すると考えられる。

図2に700°C・1 h 試料のXRDパターンを示す。主相としてMgB₂、不純物相としてMg₂B₂₅とMgのピークが見られた。Mg₂B₂₅はMgB₂が生成される際の中間生成物である。これらのピークは他の試料でも同様に見られた。また、Mg₂B₂₅とMgのピーク強度は t_{ht} を延ばすと減少しMgB₂のピーク強度は増加したことから、長い t_{ht} では不純物が反応しMgB₂の生成が進んだと考える。

図3に20 Kにおける各試料の臨界電流密度 J_c の磁場依存性を示す。 $J_c = 100 \text{ A/cm}^2$ の時の磁場の値を不可逆磁場 B_{irr} とすると、700°C・1 h 試料の B_{irr} は4.1 T、700°C・9 hは4.3 T、800°C、900°Cの試料は3.8 Tとなり、700°C試料が高い値を示す傾向があった。また、ゼロ磁場では熱処理条件による J_c の違いは見られなかった。これらのことから、IG法では低い温度による合成をすることで高磁場下において高い J_c を得ることができると考える。

図4にEBSDによる各試料の結晶相マップを示す。赤がMgB₂相、青がMg相である。図4(a)より、700°C・1 hではナノサイズのMgB₂粒と多くの未反応のMgが存在していることが分かる。図4(b)では(a)よりも粒が大きくなっているが、 t_{ht} が伸びたためだと考える。図4(c, d)より、 T_{ht} を上げるとMgB₂量の増加と残留Mgの減少が起こることが分かる。また、同時にMgB₂粒の増大も起こっており、800°C・9 h 試料と900°C・9 h 試料ではミクロンサイズのMgB₂粒が多く存在している。本研究では $T_{ht} = 700^\circ\text{C}$ において高い B_{irr} を得られているため、MgB₂の体積分率が低かったとしても、微細なMgB₂粒を得ることが重要だと考える。

Conclusion

本研究では様々な熱処理条件でMgB₂バルクを作製し、臨界電流特性や微細組織を評価した。XRDより、MgB₂の他にMg₂B₂₅とMgのピークが見られた。また、700°Cで熱処理した試料において高い B_{irr} を得られた。これは、低い T_{ht} によりMgB₂の粒成長が抑制され、微細なMgB₂粒を得られたためだと考える。

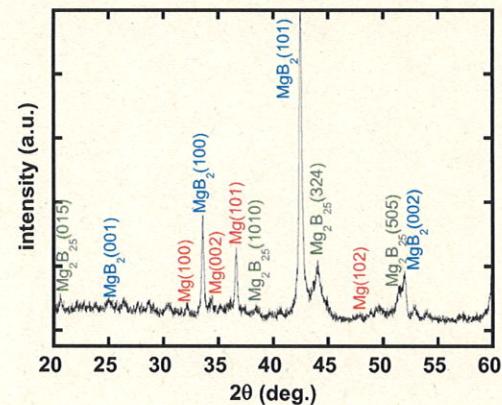


図2 700°C・1 h 試料のXRDパターン

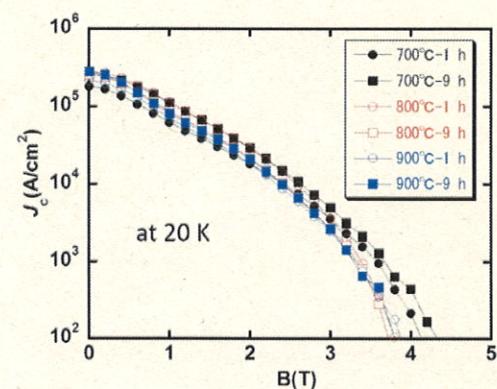


図3 臨界電流密度の磁場依存性(at 20 K)

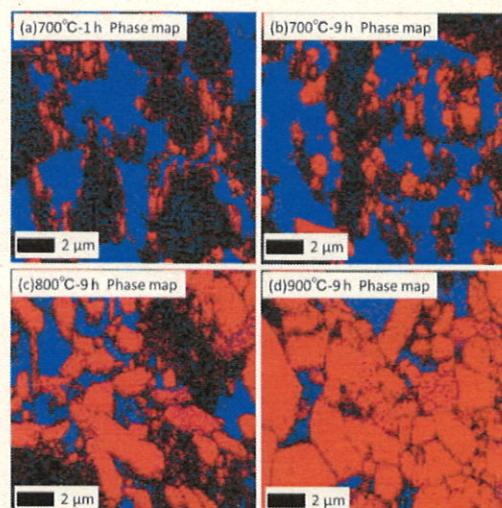


図4 各試料の結晶相マップ

(赤 : MgB₂、青 : Mg)

- [1] G. Giunchi : Int. J. Mod. Phys. B **17** 453 (2003)
- [2] T. Naito *et al.*: Supercond. Sci. Technol. **29** 115003 (2016)