

浸透法による MgB₂超伝導バルク体の作製と捕捉磁場特性

藤代・内藤研究室 s0416008 及川 広希

1. 序論

超伝導体は転移温度 (T_c) 以下で電気抵抗がゼロになる。そのため、超伝導バルク体内部に外部磁場によって誘導電流を誘起すれば、電流が減衰することがなく擬似永久磁石として利用可能である。特に MgB₂超伝導体は 39 K という比較的高い T_c を持ち、電磁気的異方性が小さいため、容易に作製可能な多結晶バルクでテスラ級の捕捉磁場を得ることが可能である。そのため液体水素温度(20 K)付近において、核磁気共鳴画像(MRI)法、核磁気共鳴(NMR)装置などへの応用が検討されている。しかし、従来の常圧焼結法で作製した MgB₂バルクは 50~75 %程度の低充填率であり、高い捕捉磁場特性を得るためににはバルクの緻密化が不可欠である。液体 Mg を B ペレットに含浸させる浸透法の場合、高いコストのかかる高圧装置を用いずに 90 %以上の高充填率バルクを作製することができる。しかし、浸透法の場合 B 粒子中心まで Mg を完全に拡散させることが難しく、MgB₂の中間生成物である Mg₂B₂₅とその周辺に未反応の Mg が不純物として残存する課題があり、高性能なバルクを再現性良く作製できていない。したがって、本研究では浸透法を用いて高い捕捉磁場特性を持つバルクの作製方法を確立することを目的とする。

2. 実験方法

内径 20 mm の SUS 製カプセルに入れた結晶 B 粉末(純度 99 %、粒径 45 μm 以下、3.8 g)を高さ 10 mm(前駆体密度 1.2 g/cm³)になるように一軸加圧して、前駆体 B ペレットを作製し、この上に Mg 粉末を配置した。この時の Mg と B のモル比は 1.1 : 2 とした。その後、Mg の酸化を最小限に抑えるために Ar 雰囲気のグローブボックス内において密閉し、異なる条件で熱処理を行なった。熱処理条件は 900°C で 9 h または 24 h、700°C で 9 h と 24 h と 48 h の 5 種類である。残り 3 つの前駆体は再現性の確認のために 700°C で 24 h の熱処理を行なった。

試料評価は X-ray diffraction(XRD)法による構成相の同定、SQUID 磁束計を用いた磁化測定を行った。また、臨界電流密度 J_c は磁化曲線の幅から拡張ビーンモデルを用いて算出、捕捉磁場は外部磁場 2 T 以上で磁場中冷却着磁(FCM)を行い、バルク表面にホールセンサを配置して測定を行なった。

3. 実験結果

図 1(a)に各熱処理条件で作製したバルク上面の XRD パターンを示す。全てのバルクにおいて主相 MgB₂の他に不純物相である Mg および Mg₂B₂₅が検出された。また、熱処理温度 900°C と 700°C のいずれにおいても熱処理時間の増加に伴って MgB₂のピーク強度は向上した。これは Mg と Mg₂B₂₅の化学反応が進んだためである。図 1(b)に 700°C で 24 h 热処理した No.1~No.4 のバルク上面の XRD パターンを示す。No.1~No.3においてほぼ同様の XRD パターンが得られ、主相 MgB₂と不純物相 Mg および Mg₂B₂₅

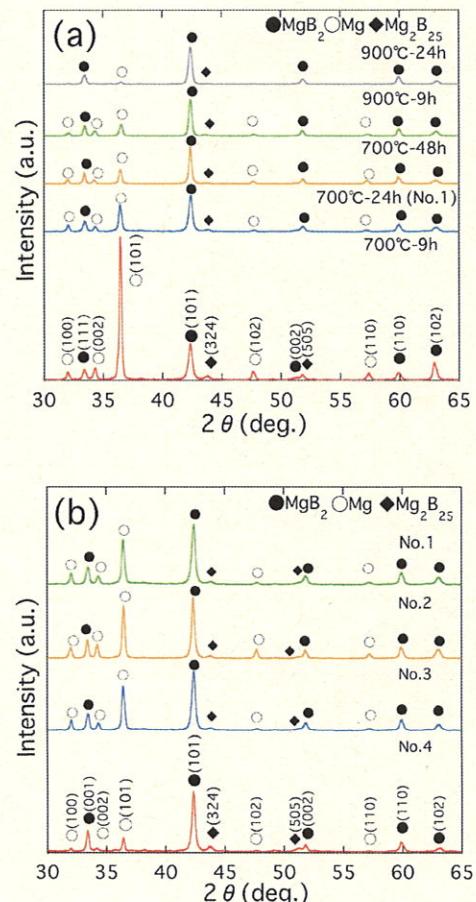


図 1 (a) 各熱処理条件で作製した
バルク上面の XRD パターン
(b) 热処理条件 700°C-24 h で作製した
バルク No.1 ~ No.4 上面の XRD パターン

が検出された。一方で No.4において不純物相のピーク強度が No.1~No.3 と比較して減少した。これは No.1~No.3 と比べ Mg の浸透経路である空隙が比較的均一であったこと、用いた B 粉末の粒径が微細かつ均一なものであった可能性が考えられる。図 2 (a) に 700°C で 9 h、700°C で 24 h、900°C で 24 h の各熱処理条件で作製した試料の磁化の温度依存性を示す。700°C で 9 h および 700°C で 24 h 热処理した試料の T_c はそれぞれ 35.8 K、36.0 K であった。一方で XRD パターンより不純物相の最も少なかった 900°C で 24 h 热処理した試料は他の 2 つの試料の T_c よりも高い 36.9 K を示した。図 2 (b) に 10 K および 20 K における J_c の磁場依存性を示す。 T_c が最も高かった 900°C で 24 h 热処理した試料は J_c の磁場依存性が大きく全ての磁場領域において低い J_c を示した。これは粒成長によって磁束のビン止め中心である粒界が減少してしまったためだと考えられる。また、ゼロ磁場下では 700°C-24 h の試料が最も高い J_c を示し、高磁場領域においても比較的高い J_c を示したため、浸透法では低温長時間の焼成が高い J_c を得るために有効だと考えられる。

図 3 (a) に異なる熱処理条件で作製した各バルクの捕捉磁場の温度依存性を示す。700°C で 24 h 热処理したバルクが最も高い捕捉磁場値を示したのに対し、700°C で 24 h 热処理したバルクとほぼ同等の J_c を示した 700°C で 9 h 热処理したバルクは最も低い捕捉磁場値を示していることがわかる。これは XRD パターンより過剰に検出された Mg によってマクロな J_c が制限されたためだと考えられる。一方で、不純物相の比較的少なかった 700°C で 48 h 热処理したバルクの捕捉磁場値が 700°C で 24 h 热処理したバルクよりもむしろ減少しているため、低温下においても過剰な熱処理は粒成長を促進させると考えられる。図 3 (b) に 700°C で 24 h 热処理した No.1~No.4 のバルクの捕捉磁場の温度依存性を示す。同程度の不純物相が検出された No.1~No.3 の捕捉磁場値にはばらつきがあり、No.1 より捕捉磁場値の低い No.2、No.3 では Mg の筋がバルク上面で確認されたため、内部まで残留 Mg が広く分布している可能性がある。また、不純物相の最も少なかった No.4 では 20 K において今回作製した全てのバルクの中で最も高い捕捉磁場値 1.62 T を示した。また、20 K において No.2 と No.4 では 0.3 T 程度捕捉磁場値に差が生じたため、高い再現性を得られたとは言い難い。浸透法でより高い再現性を得るために B 粉末を均一化し、Mg を均等に浸透させる必要があると考えられる。

4. 結論

本研究では浸透法において高性能 MgB₂ バルクの作製に最適な熱処理条件を模索した。熱処理条件 700°C で 24 h 热処理したバルクで最も高い捕捉磁場値が得られた。そのため高性能化には粒成長を抑え、比較的高い超伝導分率を得られる低温で長時間の焼成方法が有効であることがわかった。しかしながら、捕捉磁場の大幅な向上には至らなかった。これは用いた B の粒径が 45 μm 以下と大きく、全てのバルクにおいて B 粒子中心まで Mg が完全に拡散せずに Mg₂B₂₅ と共にバルク内部に不純物として残留したためだと考えられる。したがって、更なる捕捉磁場特性の向上には、高い粒界密度を保ちつつ Mg および Mg₂B₂₅ などの不純物相の少ないバルクの作製を行う必要がある。

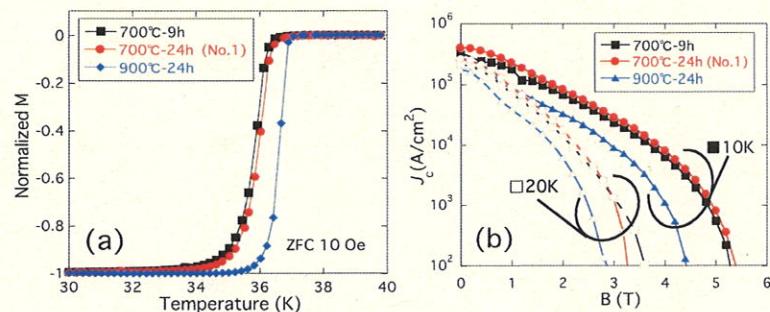


図 2 (a) 各試料における磁化の温度依存性
(b) 各試料の 10K および 20K における臨界電流密度の磁場依存性

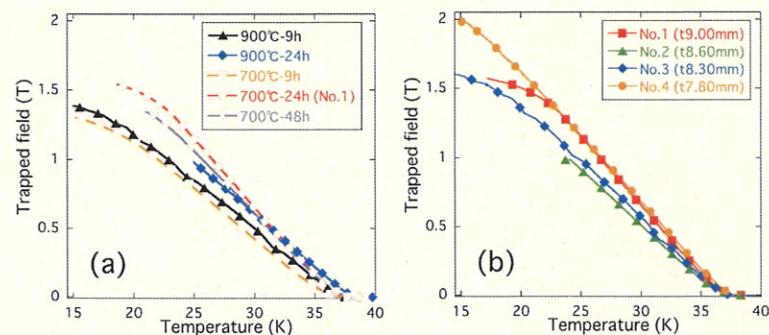


図 3 (a) 各熱処理条件で作製したバルクの捕捉磁場の温度依存性
(b) 热処理条件 700°C-24 h で作製した各バルク (No.1~No.4) における捕捉磁場の温度依存性