

## 고온초전도체 $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-y}$ 의 자기이방성\*

김문석 · 유성초

충북대학교 물리학과

임우영 · 백종성

고려대학교 물리학과

(1992년 9월 24일 받음)

고온초전도체  $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-y}$ 의 grain을 높은 자기장에서 정렬시켜 여러가지 자기적 특성들을 조사하였다. Grain이 정렬된 초전도체는 단결정과 같이 Cu-O layer에 수직, 수평 방향에 대해 자기이방성을 가진다. 2~77 K의 온도영역에서 측정된 lower critical field( $H_{c1}$ )은 온도가 증가하면서 선형적으로 감소하였는데, Cu-O layer에 대하여 외부 자기장이 수직인 경우가 더욱 급격히 감소하였다. 온도변화에 따른 자화화( $4\pi\chi$ )의 측정으로부터 극저온의 자화율이 -1에 가까운 값을 가진다는 것을 알 수 있었다. 또한 이 자화 곡선을 London의 공식과 two-fluid model을 이용해 최소자승법으로 fitting하여 절대 영도에서 침투깊이( $\lambda_0$ )를 구하였다. 또한 2 K에서 외부 자기장에 따른 자화곡선을 측정하였으며, Bean의 critical state model을 이용한 임계전류밀도( $J_c$ )의 계산으로부터 grain내부는 단결정 수준의 높은  $J_c$ 를 가지고 있음을 알 수 있었다.

### I. 서 론

고온초전도체가 공학적으로 응용되기 위해서는 높은 전이온도와 함께 일정한 수준의 임계전류밀도를 가지고 있어야 한다. 실제로 단결정이나 박막형태의  $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-y}$  초전도체의 경우, 77 K에서  $10^6$  A/cm<sup>2</sup> 정도의  $J_c$ 를 가지고 있음이 알려져 있다[1]. 그러나 초전도체를 가장 쉽게 얻는 방법인 고상 반응법으로 제작된 덩어리 초전도체의 경우는, 약  $10^2$  A/cm<sup>2</sup>의 낮은  $J_c$ 를 가지고 있다[2]. 그러나 덩어리 초전도체라 할지라도, 덩어리를 구성하는 개개의 grain들은 하나의 단결정으로  $J_c$ 가 매우 크나, 덩어리 전체가 낮은  $J_c$ 를 나타내는 것은 grain boundary, void, 비초전도상등에 의한 weak link와 결정 이방성이 존재하기 때문으로 알려져 있다[3]. 따라서 그동안 이러한 불순물을 제거하고 grain을 결정의 한방향으로 배향

시켜  $J_c$ 를 향상시키고자 하는 연구들이 활발하게 진행되어져 왔다[4].

1987년 Farrel등[5]은 분말형태의 초전도체를 높은 자기장중에서 처리하여, grain들을 결정의 c-축방향으로 정렬시키는 좋은 연구성과를 거두었다. 이는 상온에서 약한 상자성을 띤 grain들을 자기장을 이용하여 정렬시킨 후 상용 epoxy를 이용하여 그대로 굳게 만드는 방법인데, 이후로 많은 연구자들에 의하여 얻기 어려운 단결정 대신에 초전도체의 물성을 연구하는데 이용되어왔다[6].

본 연구는 Farrel등의 방법으로  $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-y}$  초전도체의 grain을 정렬시킨후 여러가지 자기적 특성들을 조사하였다. 2~77 K의 온도 영역에서 lower critical field( $H_{c1}$ )의 온도 의존성을 살펴 보았으며, 온도에 변화에 따른 susceptibility( $4\pi\chi$ )를 측정하였다. 이  $4\pi\chi$  곡선을 London의 공식[7]과 two-fluid model[7]을 이용해 fitting하여 절대 0도에서의 침투깊이( $\lambda_0$ )를 구하였다. 또한 2 K의 온도에서 외부 자기장 변화에 따른 자화를 측정하였으며, Bean의 critical state model[8]을 통하여 grain 내부의  $J_c$ 를 추정하였다.

\* 본 연구는 1991년 과학기술처 특정연구 개발비에 의해 수행되었음.

## II. 실험

시료는 순도가 99.9 % 인  $Y_2O_3$ ,  $BaCO_3$ ,  $CuO$  분말을 적당한 물비로 혼합해 910 °C의 온도에서 두차례의 하소를 하였고, 930 °C의 온도에서 소결시킨후 500 °C의 온도에서 산소 분위기로 열처리 하였다. 이렇게 제작한 시료를 4단자법을 이용해 전기저항을 측정하여 초전도 전이온도가 94 K 임을 확인하였고 상온에서의 X-선 회절 실험에서 단일상임을 확인할 수 있었다. 한편 grain의 정렬방법은 이미 발표된 바 있다[9]. Grain의 정렬 여부를 확인하기 위해 X-선 회절 실험을 상온에서 행하였으며, 자기적 특성 조사를 위해 superconducting quantum interference device (SQUID, Quantum Design)를 이용해 2~77 K의 온도 범위와 외부 자기장 0~2 Tesla의 구간에서 자기 모우먼트를 측정하였다.

## III. 결과 및 논의

그림 1은 11 T의 자기장을 걸어서 grain을 정렬시킨 시료의 X-선 회절상으로 polycrystalline  $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-y}$  초전도체의 전형적인 (103) peak가 사라지고 (006), (005)와 (004)면의 peak들이 나타남을 볼 수 있다. 이때 X-선은 정렬시 가해진 자기장 방향에 수직인 면에 조사되었는데, 모든 peak들의 면지수  $h, k$ 가 0인것은 결정의  $c$ -축방향으로 grain들이 잘 정렬되어 있음을 말해 준다[9]. 그림 2의 내부에 그려진 그림은  $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-y}$  초전도체를 자기장을 가하지 않은 상태에서 2 K까지 냉각(zero-field-cooling)시킨 뒤 Cu-O layer에 수직으로 외부 자기장을 20 Oe 간격으로 증가시키면서 측정된 자기 모우먼트의 변화를 보여준다. Lower critical field ( $H_{c1}$ )은 자속이 처음으로 침투할 때의 외부 자기장의 세

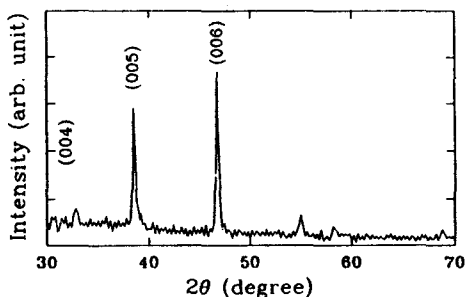


Fig. 1. Powder X-ray diffraction pattern of grain aligned  $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-y}$ .

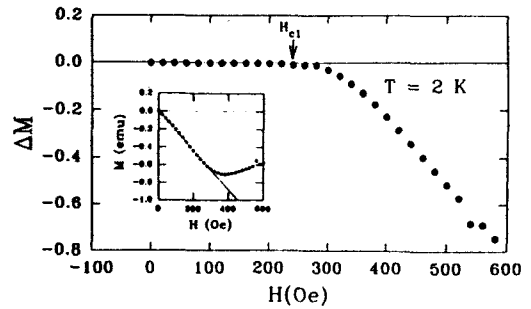


Fig. 2. The deviation of magnetic moment from the initial linear behavior for grain aligned  $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-y}$ . Inset : the straight line is a least-squares fit to the lower field for the magnetic moment data.

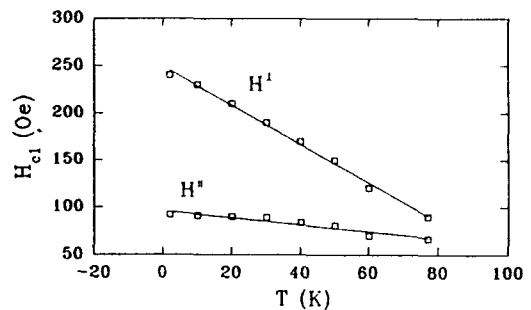


Fig. 3. The temperature dependence of lower critical field  $H_{c1}$  for  $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-y}$ .

기를 의미하는데 non-ideal 초전도체에서는 flux의 pinning이 존재하기 때문에 곡선의 임계점이 확실히 구분되지 않고 만곡(curvature)이 나타나게 된다. 따라서 이러한 초전도체의 lower critical field는 자화곡선의 선형적인 구간, 즉 가역적인 구간의 최종점에 해당하는 외부 자기장의 세기로 정의된다[10].  $H_{c1}$ 을 구하기 위해 초기 자화값을 이용해 최소자승법을 써서 선형적인 fitting을 하고, 이 fitting line과 측정된 자화값의 차이( $\Delta M$ )를 외부 자기장의 함수로 그림 2에 나타내었다. 따라서  $H_{c1}$ 은  $\Delta M$ 이 0 근처값에서 벗어나는 지점의 외부 자기장의 세기인 240 Oe가 된다. 이러한 방법으로 구한 77 K까지의 Cu-O layer의 수직, 수평 방향에 대한  $H_{c1}$ 의 온도의존성을 그림 3에 나타내었다. 온도가 증가함에 따라서  $H_{c1}$ 은 선형적으로 감소하고 있음을 알 수 있다. Cu-O layer의 수직인 경우의 외부 자기장에 대한  $H_{c1}$ 변화율은

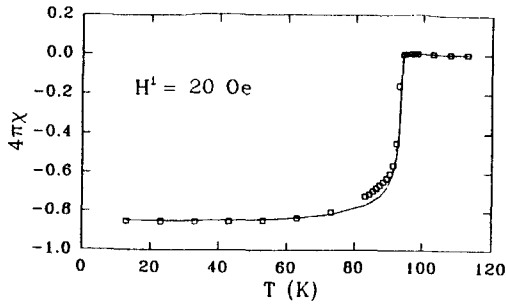


Fig. 4. The temperature dependence of magnetic susceptibility  $4\pi\chi$  for  $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-y}$ .

-2.016 Oe/K이었으며, 수평인 경우는 -0.360 Oe/K으로 수직인 경우가 더욱 급격하게 감소함을 알 수 있었다.

그림 4는 Cu-O layer의 수직 방향에 대한 자화율  $4\pi\chi$ 의 온도변화를 보여준다. 극저온에서는  $4\pi\chi$ 가 -1에 가까운 값을 가지고 있음을 알 수 있다. London[7]에 의해 계산된 자화율의 온도 변화는 다음 식으로 잘 표현된다.

$$\frac{\chi(T)}{\chi(T_0)} = \frac{1 - (3/u)\coth(u) + (3/u^2)}{1 - (3/u_0)\coth(u_0) + (3/u_0^2)} \quad (1)$$

여기서  $u(T) = R/\lambda(T)$ 이고, R은 구형인 grain의 반경,  $\lambda(T)$ 는 London 침투깊이를 각각 나타낸다.  $\lambda(T)$ 의 온도의존성은 two-fluid model[7]로부터 다음과 같다.

$$\lambda(T) = \lambda_0[1 - (T/T_c)^4]^{-1/2} \quad (2)$$

여기서,  $\lambda_0$ 는 절대 0도에서의 침투깊이,  $T_c$ 는 초전도 전이온도를 나타낸다. (1)식과 (2)으로부터 최소자승법을 이용한 fitting을 통해 구한  $u(0)$ , 즉  $R/\lambda_0$ 은 Cu-O layer의 수직에 인경우 18, 수평인 경우 7이었다. SEM으로 측정된 grain의 반경이 약  $2.5 \mu m$  이므로 절대 0도에서의 침투깊이는 수직, 수평에 대해  $1388 \text{ \AA}$ 으로, 현상학적 Ginzburg-Landau이론으로부터 구해진 값[9]  $1516 \text{ \AA}$   $3392 \text{ \AA}$ 과 거의 일치하고 있음을 알 수 있다. 그림에서 실선은 fitting의 결과이다. 실험치가 거의 모든 온도영역에서 fitting값과 잘 일치하고 있으나 80~90 K의 온도영역에서 얼마간 벗어나 있음을 알 수 있다. 이는 시료내에 있는 grain들이 전이온도가 모두 같지않고 일정한 폭을 가지고 분포하고 있기 때문으로 생각된다.

2 K의 온도에서 Cu-O layer에 대하여 외부 자기장을 수직, 수평 방향으로 걸었을 때 측정된 자기 이력곡선을 그림 5에 나타내었다. 외부 자기장이 Cu-O면에 수직으로 걸릴 때의 자기 모우먼트는 수평일 때 보다 약 10 정도 크게 나타났다. 이러한 사실은 시료가 결정의 c-축 방향으로 나란하게 정렬됨으로 인해 단결정의 YBCO 초전도체와 같이 고유한 자기이방성을 갖게 되었다는 것을 말해 준다. 이 자기력 곡선으로부터 다음 식[5]을 이용해 grain 내부의 임계전류밀도(intra granular  $J_c$ )를 추정하였다.

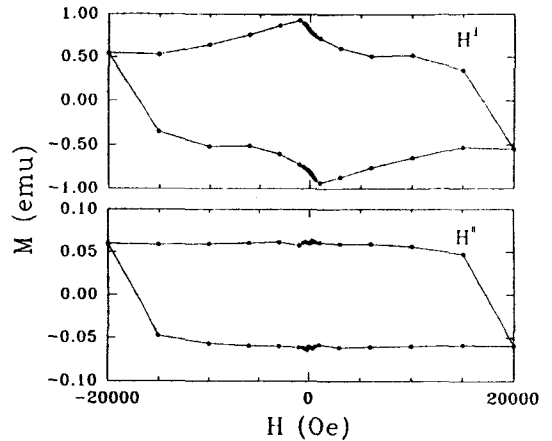


Fig. 5. Magnetization curves of grain aligned  $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-y}$  at 2 K.

$$J_c = 17 \Delta M / R \quad (3)$$

여기서 R은 grain의 반경이며  $\Delta M$ 은  $M^+ - M^-$ 을 의미하는데  $M^+$ ,  $M^-$ 은 각각 외부 자기장을 증가시킬 때와 감소시킬 때의 체적 자화이다. 이러한 관계를 이용해 계산한 외부 자기장에 따른  $J_c$ 를 그림 6에 나타내었다. 그림에서 알 수 있듯이 polycrystalline이라 할지라도 grain이 가지고 있는  $J_c$ 는 단결정의  $J_c$ 와 같은 크기임을 알 수 있으며, 또한 전류전도가 주로 이루어지는 Cu-O layer의  $J_c$ 는 c-축을 따르는  $J_c$ 보다 10배 이상의 큰 값을 가지고 있음을 알 수 있다.

#### IV. 결 론

이상의 실험결과로부터 다음의 사실들을 알 수 있었다.

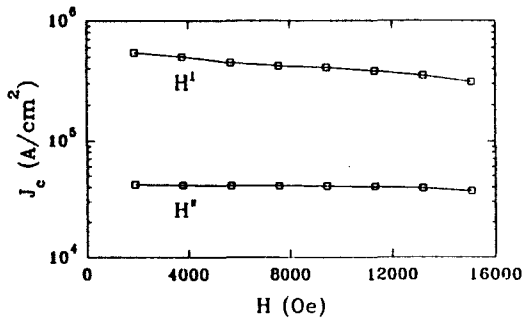


Fig. 6. Critical current density  $J_c$  of grain aligned  $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-y}$  at 2 K.

- (1) Grain이 정렬된 고온초전도체  $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-y}$ 는 단결정과 유사한 물성을 나타며, Cu-O layer의 수직, 수평 방향에 대하여 약 10배의 자기이방성을 가진다.
- (2) 온도가 증가함에 따라  $H_{c1}$ 은 선형적으로 감소하며, 이 때의 감소율은 수직, 수평에 대하여 각각  $-2.016$  Oe/K,  $-0.360$  Oe/K 이다.
- (3) 자화율  $4\pi\chi$ 의 온도의존성은 London공식과 two-fluid model로 잘 표현되며, 최소 자승법에 의한 fitting으로 얻어진 절대 0도에서의 침투깊이는 이전에 다른 방법으로 얻어진 실험결과와 거의 일치함을 보인다.
- (4) Bean의 model을 이용해 구한 임계전류밀도 역시 큰 이방성을 가지는데 전류전도가 주로 이루어지는 Cu-O layer에서의  $J_c$ 는  $10^6$  A/cm<sup>2</sup>에 가까운 값을 가진다. 따라서 덩어리 초전도체라 할지라도 grain의  $J_c$ 는 단결정의 수준임을 알 수 있다.

## 참 고 문 헌

- [1] T. K. Worthington, W. J. Gallagher, and T. R. Dinger, Phys. Rev. Lett. **58**, 1160 (1987).
- [2] S. Jin, R. C. Sherwood, R. B. van Dover, T. H. Tiefel, and D. W. Johnson, Jr., Appl. Phys. Lett. **51**, 203 (1987).
- [3] R. H. Koch, C. P. Umbach, G. J. Clark, P. Chaudhari, and R. B. Laibowitz, Appl. Phys. Lett. **51**, 200 (1987).
- [4] Q. Roison, P. Georgopoulos, D. L. Johnson, H. O. Marcy, C. R. Kannewurf, S. J. Hwu, T. J. Marks, K. R. Poeppelmeir, S. N. Song, and J. B. Ketterson, Adv. Ceram. Mat. **2**, 3b 380 (1987).
- [5] D. E. Farrell, B. S. Chandrasekhar, M. R. Degurie, M. M. Fang, V. G. Kogan, J. R. Clem, and D. K. Finnemore, Phys. Rev. **B36**, (1987).
- [6] Youwen Xu, M. Suenaga, A. R. Moodenbaugh, and D. O. Welch, Phys. Rev. **B40**, 16 (1989).
- [7] F. London, Superfluids, vol. 1 (Dover, New York, 1961).
- [8] C. P. Bean, Mod. Phys. **36**, 31 (1964).
- [9] 김문석, 이주일, 유성초, 김영철, 임우영, 새물리 **31**, 211 (1991).
- [10] Michio Naito, Azusa Matsuda, Koichi Kitazawa, Shinsaku Kambe, Isao Tanaka, and Hironao Kojima, Phys. Rev. **B41**, 4823 (1990).

## Magnetic Anisotropy in High $T_c$ $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-y}$ Superconductor

M. S. Kim and S. C. Yu

*Department of Physics, Chungbuk National University,  
Cheongju 360-763*

W. Y. Lim and J. S. Baek

*Department of Physics, Korea University, Seoul 136-701*

(Received 24 September 1992)

Magnetic properties of grain aligned high  $T_c$   $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-y}$  superconductor are investigated. Grain-aligned superconductors have magnetic anisotropy in the Cu-O layer like single crystals. The lower critical field  $H_{c1}$ , measured at the temperature range of 2 K up to 77 K, is found to be decreasing linearly as temperature goes up. Moreover, it decreases more rapidly when the Cu-O layer is perpendicular to the external magnetic field. The temperature dependence of the magnetic susceptibility shows that the value of magnetic susceptibility,  $4\pi\chi$ , is close to  $-1$  at low temperature. The intra grain critical current density  $J_c$ , obtained from the Bean's critical state model, is found to be comparable to that of single crystal superconductors.