(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2018-0075430
(43) 공개일자 2018년07월04일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
*C04B 35/58* (2006.01) *C04B 35/632* (2006.01)
*C04B 35/645* (2006.01) *H01L 39/12* (2006.01)
*H01L 39/24* (2006.01)
(52) CPC특허분류
*C04B 35/58057* (2013.01)
*C04B 35/632* (2013.01)
(21) 출원번호 10-2017-7001070
(22) 출원일자(국제) 2016년11월29일
심사청구일자 2017년06월21일
(85) 번역문제출일자 2017년01월13일
(86) 국제출원번호 PCT/KR2016/013853
(87) 국제공개번호 WO 2018/101496
국제공개일자 2018년06월07일

(71) 출원인
**한국기계연구원**
대전광역시 유성구 가정북로 156 (장동)
(72) 발명자
**정국채**
경상남도 창원시 진해구 행암로 25 대동다숲아파트 117동 503호
**강성훈**
경상남도 창원시 성산구 창이대로881번길 8 대동디지털황토아파트 207동 1303호
*(뒷면에 계속)*
(74) 대리인
**특허법인 피씨알**

전체 청구항 수 : 총 12 항

(54) 발명의 명칭 **이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체의 제조방법 및 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체**

## (57) 요 약

본 발명의 일 실시예에 따르면, 붕소 분말 및 액상의 염화 탄화수소 화합물을 포함하는 제1 혼합물을 준비하는, 제1 혼합물 준비단계; 상기 제1 혼합물 및 마그네슘 분말을 포함하는 제2 혼합물을 준비하는, 제2 혼합물 준비단계; 상기 제2 혼합물을 가압하여 성형체를 제조하는 성형체 제조단계; 및 상기 성형체를 소결하여 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체를 제조하는, 소결단계;를 포함하는 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체의 제조방법이 제공된다.

(52) CPC특허분류
***C04B 35/645*** (2013.01)
***H01L 39/125*** (2013.01)
***H01L 39/2487*** (2013.01)
*C04B 2235/5436* (2013.01)
*C04B 2235/5454* (2013.01)
*C04B 2235/656* (2013.01)
*C04B 2235/658* (2013.01)

(72) 발명자
**오영석**
부산시 부산진구 동평로291번길 30-17 연지2차청구아파트 102동 2010호
**라놋마이팔**
대한민국 51153 경상남도 창원시 의창구 용지로281번길 9 102호
**장세훈**
대전시 유성구 테크노 4로 33, 314호
**신데키란 프라카쉬**
대한민국 51153 경상남도 창원시 의창구 용지로285번길 17

# 명 세 서

## 청구범위

### 청구항 1

붕소 분말 및 액상의 염화 탄화수소 화합물을 포함하는 제1 혼합물을 준비하는, 제1 혼합물 준비단계;

상기 제1 혼합물 및 마그네슘 분말을 포함하는 제2 혼합물을 준비하는, 제2 혼합물 준비단계;

상기 제2 혼합물을 가압하여 성형체를 제조하는, 성형체 제조단계; 및

상기 성형체를 소결하여 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체를 제조하는, 소결단계;를 포함하는 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체의 제조방법.

### 청구항 2

제1 항에 있어서,

상기 제1 혼합물은,

상기 붕소 분말 및 액상의 염화 탄화수소 화합물의 중량비가 1:0.2 내지 1:25인 것인 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체의 제조방법.

### 청구항 3

제1 항에 있어서,

상기 제2 혼합물은,

상기 제1 혼합물 및 상기 마그네슘 분말의 몰비가 2:1인 것인 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체의 제조방법.

### 청구항 4

제1 항에 있어서,

상기 붕소 분말은 입자 크기 20 ㎚ 이상 100 ㎚ 이하의 붕소 분말 입자를 전체 붕소 분말 입자에 대하여 99 % 이상 포함하는 것인 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체의 제조방법.

### 청구항 5

제1 항에 있어서,

상기 마그네슘 분말은 입자 크기 1 ㎛ 이상 5 ㎛ 이하의 마그네슘 분말 입자를 전체 마그네슘 분말 입자에 대하여 99 % 이상 포함하는 것인 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체의 제조방법.

### 청구항 6

제1 항에 있어서,

상기 붕소 분말은 산소 및 염소를 포함하는 이종원소를 포함하고,

상기 산소 함량은 상기 붕소 분말에 대하여 0.3 at% 이상 0.7 at% 이하;

상기 염소 함량은 상기 붕소 분말에 대하여 0.03 at% 이상 0.1 at% 이하; 및

잔부는 붕소인 것인 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체의 제조방법.

### 청구항 7

제1 항에 있어서,

상기 액상의 염화 탄화수소 화합물은,

클로로포름 및 사염화탄소로 구성된 군으로부터 선택되는 1종, 또는 이들의 조합인 것인 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체의 제조방법.

**청구항 8**

제1 항에 있어서,

상기 소결단계는 600 ℃ 이상 1000 ℃ 이하에서 10 분 내지 10 시간 동안 수행되는 것인 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체의 제조방법.

**청구항 9**

제1 항에 있어서,

상기 소결단계는 비활성 가스 분위기에서 수행되는 것인 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체의 제조방법.

**청구항 10**

이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체로서,

상기 이붕소 마그네슘은 염소를 포함하는 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체.

**청구항 11**

제10 항에 있어서,

상기 염소 함량은 상기 이붕소 마그네슘에 대하여 0.1 at% 이상 2 at% 이하인 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체.

**청구항 12**

제10 항에 있어서,

상기 염소는 상기 이붕소 마그네슘 입자의 결정 입계 또는 내부에 포함되는 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체.

## *발명의 설명*

### *기 술 분 야*

[0001] 본 발명은 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체의 제조방법 및 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체에 관한 것이다.

### *배 경 기 술*

[0002] 이붕소 마그네슘(Magnesium diboride, $MgB_2$)은 미국의 물리학자인 존 바딘, 레온 쿠퍼, 존 로버트 슈리퍼가 주장하여 1972년 노벨 물리학상을 받은 BCS 이론의 금속성 초전도체의 한계온도인 절대온도 30K를 넘어 39K의 초전도 임계 전이온도를 갖는다는 점에서 전 세계적으로 많은 관심과 연구의 대상이 되고 있다.(J. Nagamatsu, N.Nakagawa, T. Muranaka, Y. Zenitani, and J. Akimitsu, Nature, 401, pp.63-64 (2001))

[0003] 또한, 이러한 이붕소 마그네슘은 현재 많은 연구가 이루어지고 있는 고온 산화물계 초전도체보다 구조가 매우 간단하고 화학적으로도 안정되어 있으며, 그 원료가 지구상에 풍부하게 존재하고 있어 그 공급이 원활하다는 이점을 갖고 있다.

[0004] 게다가, 이붕소 마그네슘은 초전도 전이온도가 39K라는 점에서 액체헬륨을 사용하지 않고 현존하는 전기 냉동기를 사용하여 충분히 초전도성을 발휘하는 온도까지 낮출 수 있고, 초전도 임계 전류밀도 측정값이 높아서 경제적인 이점이 크며 그 응용 범위가 매우 넓다.

[0005] 그러나, 이붕소 마그네슘의 자기장하에서의 임계 전류밀도의 값은 실질적인 응용분야에 적용되기에는 낮은 수준이다. 특히, 상용화급인 저온초전도체 NbTi 및 고온초전도체인 YBCO 등에 비하여, 자기장하에서 낮은 임계 전류밀도 특성은 오랫동안 해결해야할 숙제로 남아 있다.

[0006] 이에 따라 이붕소 마그네슘 초전도체 내부에 나노 크기의 탄화규소, 탄소, 탄소나노튜브, 탄화수소 등 탄소계 화합물 나노분말을 첨가하여 자장하에서의 임계 전류 특성을 월등히 향상시킬 수 있다는 것이 보고되었다. 이 경우 이붕소 마그네슘의 붕소 일부를 탄소가 치환하여 격자 결함을 형성하고, 그 결과 초전도체의 자장하 임계 전류 특성이 향상되는 것으로 알려져 있다.

[0007] 다만, 이러한 첨가제의 경우 보통 수십㎚ 크기의 분말 상태로 첨가되기 때문에 자체 응집이 쉽게 발생하여 균일하게 첨가되기 어렵고, 따라서 붕소분말과의 균일한 반응이 힘들고 첨가량 중 일부만이 이붕소 마그네슘의 결정 격자에 치환되므로 초전도 특성 향상에 기여하지 못하는 등 효율성이 낮은 문제점이 있다.

## *발명의 내용*

### *해결하려는 과제*

[0008] 본 발명이 해결하고자 하는 기술적 과제는 상기 문제를 해결하기 위해 안출된 것으로, 초전도 특성이 향상된 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체를 용이하게 제조할 수 있는 방법을 제공하는 것이다.

### *과제의 해결 수단*

[0009] 본 발명의 일 실시예에 따르면, 붕소 분말 및 액상의 염화 탄화수소 화합물을 포함하는 제1 혼합물을 준비하는, 제1 혼합물 준비단계; 상기 제1 혼합물 및 마그네슘 분말을 포함하는 제2 혼합물을 준비하는, 제2 혼합물 준비단계; 상기 제2 혼합물을 가압하여 성형체를 제조하는, 성형체 제조단계; 및 상기 성형체를 소결하여 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체를 제조하는, 소결단계;를 포함하는 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체의 제조방법이 제공된다.

[0010] 본 발명의 다른 실시예에 따르면, 본 발명의 일 실시예에 따른 제조방법으로 제조되는 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체가 제공된다.

[0011] 본 발명의 또 다른 실시예에 따르면, 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체로서, 상기 이붕소 마그네슘은 염소를 포함하는 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체가 제공된다.

### *발명의 효과*

[0012] 본 발명의 일 실시예에 따른 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체의 제조방법은 초전도 특성이 향상된 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체를 간단하고 용이하게 제조할 수 있다.

[0013] 본 발명의 일 실시예에 따른 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체의 제조방법은 붕소 분말, 액상의 염화 탄화수소 화합물 및 마그네슘 분말을 혼합하는 순서를 미리 정함으로써, 제조되는 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체의 초전도 특성을 보다 효과적으로 향상시킬 수 있다.

[0014] 본 발명의 다른 실시예에 따르면, 초전도 임계 전류밀도 값이 향상된 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체를 제공할 수 있다.

### *도면의 간단한 설명*

[0015] 도 1은 본 발명의 일 실시예에 따른 염소 함유 이붕소 마그네슘 초전도체의 제조방법을 나타낸 순서도이다.

도 2는 본 발명의 실시예 1 및 2에서 제조된 제1 혼합물의 TEM 분석 결과를 나타낸 도면이다.

도 3a는 본 발명의 실시예 2에서 제조된 초전도체 시편의 EDS 분석 결과를 나타낸 도면이고, 도 3b 비교예 2에서 제조된 초전도체 시편의 EDS 분석 결과를 나타낸 도면이다.

도 4a는 본 발명의 실시예 1 내지 2 및 비교예 3에서 제조된 초전도체 시편의 초전도 임계 온도 값을 나타낸 도면이고, 도 4b는 비교예 1 내지 3에서 제조된 초전도체 시편의 초전도 임계 온도 값을 나타낸 도면이다.

도 5a는 본 발명의 실시예 1 내지 2 및 비교예 3에서 제조된 초전도체 시편의 초전도 임계 전류밀도 값을 나타낸 도면이고, 도 5b는 비교예 1 내지 3에서 제조된 초전도체 시편의 초전도 임계 전류밀도 값을 나타낸 도면이다.

### *발명을 실시하기 위한 구체적인 내용*

[0016] **발명의 실시를 위한 최선의 형태**

[0017] 아래에서는 첨부한 도면을 참조하여 본 발명이 속하는 기술 분야에서 통상의 지식을 가진 자가 용이하게 실시할 수 있도록 본 발명의 실시예를 상세히 설명한다. 그러나 본 발명은 여러 가지 상이한 형태로 구현될 수 있으며 여기에서 설명하는 실시예에 한정되지 않는다.

[0018] 본 명세서에서 사용되는 용어에 대해 간략히 설명하고, 본 발명에 대해 구체적으로 설명하기로 한다.

[0019] 본 발명에서 사용되는 용어는 본 발명에서의 기능을 고려하면서 가능한 현재 널리 사용되는 일반적인 용어들을 선택하였으나, 이는 당 분야에 종사하는 기술자의 의도 또는 판례, 새로운 기술의 출현 등에 따라 달라질 수 있다. 또한, 특정한 경우는 출원인이 임의로 선정한 용어도 있으며, 이 경우 해당되는 발명의 설명 부분에서 상세히 그 의미를 기재할 것이다. 따라서 본 발명에서 사용되는 용어는 단순한 용어의 명칭이 아닌, 그 용어가 가지는 의미와 본 발명의 전반에 걸친 내용을 토대로 정의되어야 한다.

[0020] 명세서 전체에서 어떤 부분이 어떤 구성요소를 "포함"한다고 할 때, 이는 특별히 반대되는 기재가 없는 한 다른 구성요소를 제외하는 것이 아니라 다른 구성요소를 더 포함할 수 있음을 의미한다.

[0021] 이하 첨부된 도면을 참고하여 본 발명을 상세히 설명하기로 한다.

[0022] 도 1은 본 발명의 일 실시예에 따른 염소 함유 이붕소 마그네슘 초전도체의 제조방법을 나타낸 순서도이다.

[0023] 본 발명의 일 실시예에 따르면, 붕소 분말 및 액상의 염화 탄화수소 화합물을 포함하는 제1 혼합물을 준비하는, 제1 혼합물 준비단계(S100); 상기 제1 혼합물 및 마그네슘 분말을 포함하는 제2 혼합물을 준비하는, 제2 혼합물 준비단계(S200); 상기 제2 혼합물을 가압하여 성형체를 제조하는, 성형체 제조단계(S300); 및 상기 성형체를 소결하여 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체를 제조하는, 소결단계(S400);를 포함하는 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체의 제조방법이 제공된다.

[0024] 본 발명의 일 실시예에 따른 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체의 제조방법은 초전도 특성이 향상된 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체를 간단하고 용이하게 제조할 수 있다.

[0025] 본 발명의 일 실시예에 따른 제1 혼합물 준비단계(S100)에서는 붕소 분말과 액상의 염화 탄화수소 화합물을 혼합하여 제1 혼합물을 준비한다. 액상의 염화 탄화수소 화합물을 사용함으로써, 상기 붕소 분말과 상기 액상의 염화 탄화수소 화합물을 보다 균일하게 혼합할 수 있으며, 붕소 분말에 포함된 붕소와 염화 탄화수소 화합물의 반응을 효과적으로 유도할 수 있다. 또한, 본 발명의 일 실시예에 따르면, 첨가제로 액상의 염화 탄화수소 화합물을 사용함으로써, 첨가제로 나노 크기의 분말을 사용할 경우에 발생될 수 있는 응집현상으로 인한 이붕소 마그네슘의 불균일성을 극복할 수 있다.

[0026] 본 발명의 일 실시예에 따른 제1 혼합물은, 상기 붕소 분말 및 상기 액상의 염화 탄화수소 화합물의 중량비가 1:0.2 내지 1:25일 수 있다.

[0027] 상기 제1 혼합물에 포함되는 상기 액상의 염화 탄화수소 화합물의 중량이 상기 범위 미만인 경우, 액상의 염화 탄화수소 화합물과 붕소 분말이 고르게 혼합되지 못하여, 상기 제1 혼합물에는 미반응 붕소가 포함될 수 있다. 이에 의해, 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체의 초전도 임계 전류밀도를 효과적으로 향상시키기 어려울 수 있다. 또한, 상기 제1 혼합물에 포함되는 상기 액상의 염화 탄화수소 화합물의 중량이 상기 범위 내인 경우, 염화 탄화수소 화합물과 붕소가 균일하게 반응될 수 있다.

[0028] 따라서, 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체의 초전도성을 효과적으로 향상시키고, 초전도체의 제조비용을 감소시키기 위하여, 상기 붕소 분말 및 액상의 염화 탄화수소 화합물의 중량비는 1:0.2 내지 1:25 것이 바람직할 수 있다.

[0029] 본 발명의 일 실시예에 따른 제2 혼합물 준비단계(S200)에서는 상기 제1 혼합물과 마그네슘 분말을 혼합한다. 상기 붕소 분말, 액상의 염화 탄화수소 화합물 및 마그네슘 분말을 혼합하는 순서에 따라, 제조되는 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체의 초전도 특성이 상이해질 수 있다.

[0030] 구체적으로, 붕소 분말과 마그네슘 분말을 혼합하여 제1 혼합물을 제조하고, 제1 혼합물과 액상의 염화 탄화수소 화합물을 혼합하여 제2 혼합물을 제조하는 경우, 제조되는 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체의 초전도 임계 전류밀도의 값이 감소되는 문제가 발생될 수 있다. 염화 탄화수소 화합물 및 마그네슘은 반응성이 높아, 염화 탄화수소 화합물 및 마그네슘이 반응하여 이염화 마그네슘 등이 형성될 수 있다. 이에 따라, 붕소와 반응할 수 있는 마그네슘의 양이 감소하게 되고, 상기 형성된 이염화 마그네슘 등은 잔존하고 있는 마그네슘과 붕소

의 반응성에 영향을 미칠 수 있다.

[0031] 반면, 본 발명의 일 실시예에 따르면, 상기 붕소 분말과 상기 액상의 염화 탄화수소 화합물을 먼저 혼합하여 균일도핑을 유도할 수 있어, 도핑 효과를 향상시킬 수 있다. 상기 붕소 분말과 상기 액상의 염화 탄화수소 화합물을 혼합함에 따라, 염화 탄화수소 화합물을 포함하는 비정질 층이 붕소 입자의 표면에 형성될 수 있다. 염화 탄화수소 화합물을 포함하는 비정질 층은 3 ㎚ 이상 4 ㎚ 이하의 두께를 가질 수 있다.

[0032] 또한, 대기 중의 수분 또는 산소 등과 반응성이 좋은 마그네슘 분말을 나중에 반응시킴으로써, 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체를 제조하는 과정에서의 부차적인 반응을 억제할 수 있다.

[0033] 따라서, 본 발명의 일 실시예에 따르면, 상기 붕소 분말, 액상의 염화 탄화수소 화합물 및 마그네슘 분말을 혼합하는 순서를 미리 정함으로써, 제조되는 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체의 초전도 특성을 보다 효과적으로 향상시킬 수 있다.

[0034] 본 발명의 일 실시예에 따른 제1 혼합물과 제2 혼합물은 고상일 수 있다. 상기 붕소 분말과 상기 액상의 염화 탄화수소 화합물을 혼합하여 고상의 제1 혼합물을 제조할 수 있고, 상기 제1 혼합물과 상기 마그네슘 분말을 혼합하여 고상의 제2 혼합물을 제조할 수 있다. 상기 고상의 제1 혼합물 및 제2 혼합물은, 예를 들면, 클레이 형태 또는 반죽 형태일 수 있다. 고상의 제2 혼합물은 원하는 형태로 성형하기에 용이할 수 있다.

[0035] 본 발명의 일 실시예에 따른 제2 혼합물은, 상기 제1 혼합물 및 상기 마그네슘 분말의 몰비가 2:1일 수 있다. 상기 몰비는 반응비와 동일할 수 있다. 예를 들면, 제1 혼합물 및 상기 마그네슘 분말의 몰비가 2:1인 경우, 상기 제1 혼합물에 포함되는 붕소와 상기 마그네슘 분말에 포함되는 마그네슘은 2:1의 반응비로 반응할 수 있다.

[0036] 상기 마그네슘이 상기 몰비 미만으로 상기 제2 혼합물에 포함되는 경우, 제2 혼합물에는 미반응 붕소가 존재할 수 있다. 또한, 상기 마그네슘이 상기 몰비를 초과하여 상기 제2 혼합물에 포함되는 경우, 제2 혼합물에는 미반응 마그네슘이 존재할 수 있다. 미반응된 붕소 및 마그네슘은 제조되는 초전도체 내부에서 불순물로 존재하게 되어, 초전도체의 초전도성을 감소시키는 문제가 발생될 수 있다.

[0037] 본 발명의 일 실시예에 따른 상기 붕소 분말은 입자 크기 20 ㎚ 이상 100 ㎚ 이하의 붕소 분말 입자를 전체 붕소 분말 입자에 대하여 99 % 이상 포함할 수 있다. 또한, 본 발명의 일 실시예에 따른 상기 마그네슘 분말은 입자 크기 1 ㎛ 이상 5 ㎛ 이하의 마그네슘 분말 입자를 전체 마그네슘 분말 입자에 대하여 99 % 이상 포함할 수 있다.

[0038] 입자 크기가 20 ㎚ 미만인 붕소 분말을 사용하는 경우, 입자 크기가 작아 입자들 간의 뭉침 현상이 발생되어 혼합물이 균일하게 혼합되지 못하고, 붕소 분말의 표면 산화로 인한 표면 산소량이 증가하게 되는 문제가 발생될 수 있다. 또한, 입자 크기가 1 ㎛ 이하인 마그네슘 분말을 사용하는 경우, 마그네슘의 높은 반응성으로 인하여 마그네슘 분말의 취급이 용이하지 않으며, 입자 크기가 작아 입자들 간의 뭉침 현상이 발생되어 혼합물이 균일하게 혼합되지 못하고, 마그네슘 분말의 표면 산화로 인한 표면 산소량이 증가하게 되는 문제가 발생될 수 있다.

[0039] 본 발명의 일 실시예에 따르면, 입자 크기가 100 ㎚ 이하인 붕소 분말 및 입자 크기가 5 ㎛ 이하인 마그네슘 분말을 사용함으로써, 제조되는 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체의 임계 전류밀도 특성을 향상시킬 수 있다. 상기 붕소 분말 및 마그네슘 분말의 입자 크기가 상기 수치보다 작은 경우, 결정립 크기가 작아져서 입계가 증가되어, 입계피닝 효과로 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체의 임계 전류밀도의 값을 향상시킬 수 있다.

[0040] 상기 붕소 분말에는 입자 크기가 20 ㎚ 미만, 20 ㎚ 이상 100 ㎚ 이하 및 100 ㎚를 초과하는 붕소 분말 입자가 포함될 수 있다. 다만, 붕소 분말의 입자 크기가 20 ㎚ 미만 또는 100 ㎚를 초과하는 경우에 발생될 수 있는 문제를 방지하기 위하여, 상기 붕소 분말에 포함되는 전체 붕소 분말 입자에 대하여 입자 크기가 20 ㎚ 이상 100 ㎚ 이하인 붕소 분말 입자는 99 % 이상인 것이 바람직할 수 있다. 상기와 동일하게, 상기 마그네슘 분말에 포함되는 전체 마그네슘 분말 입자에 대하여 입자 크기가 1 ㎛ 이상 5 ㎛ 이하인 마그네슘 분말 입자는 99 % 이상인 것이 바람직할 수 있다.

[0041] 또한, 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체의 초전도성은 붕소 분말의 입자 크기에 영향을 많이 받을 수 있다. 따라서, 초전도체의 초전도성을 향상시키기 위하여, 붕소 분말의 입자크기는 20 ㎚ 이상 70 ㎚ 이하가 바람직할 수 있고, 20 ㎚ 이상 50 ㎚ 이하가 보다 바람직할 수 있다.

[0042] 붕소 분말에는 붕소 분말 입자 이외에 다른 원소의 분말 입자가 포함될 수 있다. 다만, 본 발명의 일 실시예에 따른 붕소 분말은, 붕소 분말 입자 및 다른 원소의 분말 입자를 포함하는 전체 붕소 분말에 대하여 붕소 분말

입자를 99 % 이상 포함할 수 있다. 이는 붕소 분말의 순도가 99 % 이상인 것을 의미할 수 있다. 상기와 동일하게, 마그네슘 분말은 전체 마그네슘 분말에 대하여 마그네슘 분말 입자를 99 % 이상 포함할 수 있으며, 이는 마그네슘 분말의 순도가 99 % 이상인 것을 의미할 수 있다. 상기 수치 범위 내의 분말 입자를 포함하는 붕소 분말 및 마그네슘 분말을 사용함으로써, 제조되는 이붕소 마그네슘의 내부 코어 밀도 및 연결성을 향상시킬 수 있다.

[0043] 또한, 순도 높은 붕소 분말 및 마그네슘 분말을 사용함으로써, 초전도체 내에서 초전도 물질인 이붕소 마그네슘 이외의 불순물을 감소시킬 수 있어, 초전도체의 초전도 전류가 흐를 수 있는 면적이 감소되는 것을 억제할 수 있다.

[0044] 따라서, 본 발명의 일 실시예에 따른 붕소 분말 및 마그네슘 분말의 순도는 99 % 이상인 것이 바람직할 수 있다.

[0045] 본 발명의 일 실시예에 따른 액상의 염화 탄화수소 화합물은, 클로로포름 및 사염화탄소로 구성된 군으로부터 선택되는 1종, 또는 이들의 조합일 수 있다. 액상의 염화 탄화수소 화합물로 클로로포름 또는 사염화탄소를 사용할 수 있고, 클로로포름 및 사염화탄소를 조합하여 사용할 수 있다.

[0046] 본 발명의 일 실시예에 따른 액상의 염화 탄화수소 화합물로 산소를 포함하지 않거나 또는 산소를 미량 포함하고 있는 것을 사용하는 것이 바람직할 수 있고, 상온에서 액상으로 존재하는 염화 탄화수소 화합물을 사용하는 것이 바람직할 수 있다. 또한, 본 발명의 일 실시예에 따르면, 염화 탄화수소 화합물 이외에 브롬화 탄화수소 화합물 또는 요오드화 탄화수소 화합물을 사용할 수 있다. 다만, 브롬화 탄화수소 화합물 및 요오드화 탄화수소 화합물로 액상의 화합물을 사용하는 것이 바람직할 수 있다.

[0047] 본 발명의 일 실시예에 따른 상기 붕소 분말은 산소 및 염소를 포함하는 이종원소를 포함하고, 상기 산소 함량은 상기 붕소 분말에 대하여 0.3 at% 이상 0.7 at% 이하, 상기 염소 함량은 상기 붕소 분말에 대하여 0.03 at% 이상 0.1 at% 이하, 및 잔부는 붕소일 수 있다. 붕소 분말은 산소 및 염소를 포함하는 이종원소를 포함할 수 있으며, 이종원소는 산소 및 염소 이외에 다른 원소를 포함할 수 있다.

[0048] 본 발명의 일 실시예에 따른 붕소 분말은, 구체적으로, 상기 붕소 분말에 포함되는 상기 산소 함량은 상기 붕소 분말에 대하여 0.3 at% 이상 0.64 at% 이하, 상기 염소 함량은 상기 붕소 분말에 대하여 0.04 at% 이상 0.07 at% 이하, 상기 붕소 함량은 상기 붕소 분말에 대하여 99.32 at% 이상 99.63 at% 이하일 수 있다.

[0049] 제조되는 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체의 초전도 특성을 향상시키기 위하여, 상기 붕소 분말은 염소를 포함하는 것이 바람직할 수 있다.

[0050] 본 발명의 일 실시예에 따른 성형체 제조단계(S300)는 1000 MPa 이하의 압력으로 상기 제2 혼합물을 가압할 수 있다. 상기 제1 혼합물과 상기 마그네슘 분말을 30 분 내지 2 시간 혼합하여 제2 혼합물을 제조한 후, 1000 MPa 이하의 압력으로 상기 제2 혼합물을 가압하여 성형체를 만들 수 있다. 상기 제1 혼합물 및 마그네슘 분말을 균일하게 혼합하기 위하여, 30 분 이상 상기 제1 혼합물과 상기 마그네슘 분말을 혼합하는 것이 바람직할 수 있다.

[0051] 본 발명의 일 실시예에 따른 소결단계(S400)는 600 ℃ 이상 1000 ℃ 이하에서 10 분 내지 10 시간 동안 수행될 수 있다. 상기 제2 혼합물을 가압하여 제조한 성형체를 소결하기 전까지, 상기 제2 혼합물을 진공상태로 밀봉하여 마그네슘의 산화를 최소화할 수 있다.

[0052] 본 발명의 일 실시예에 따르면, 600 ℃ 이상에서 마그네슘이 붕소에 녹아 들어가 이붕소 마그네슘이 형성될 수 있다. 다만, 소결 온도가 1000 ℃를 초과하는 경우에는 이미 형성된 이붕소 마그네슘 자체가 분해되는 문제가 발생될 수 있으므로, 본 발명의 일 실시예에 따른 성형체는 600 ℃ 이상 1000 ℃ 이하에서 소결되는 것이 바람직할 수 있다.

[0053] 또한, 상기 성형체를 10 분 내지 10 시간 동안 소결할 수 있다. 상기 성형체를 10 분 이상 소결하여 이붕소 마그네슘을 형성할 수 있으나, 10 시간 이상 상기 성형체를 소결하는 경우에는 산화 마그네슘이 형성되는 양이 증가되어 초전도 유효 단면적에 영향을 미칠 수 있으므로, 10 시간 이하로 소결하는 것이 바람직할 수 있다. 다만, 성형체를 소결하는 시간은 소결 온도에 따라 상이할 수 있으며, 소결 온도가 높은 경우 소결 시간을 단축시킬 수 있다.

[0054] 본 발명의 일 실시예에 따른 소결단계(S400)는 비활성 가스 분위기에서 수행될 수 있다. 비활성 가스 분위기에서 상기 성형체를 소결함으로써, 제조되는 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체의 산화를 방지할 수 있다. 비활성 가스로 아르곤 가스를 사용할 수 있고, 아르곤 가스와 수소 가스가 혼합된 혼합가스를 사용할 수 있다. 상

기 아르곤 가스 및 수소 가스가 96:4의 부피비로 혼합된 혼합가스를 사용할 수 있다.

[0055] 본 발명의 일 실시예에 따르면, 제조되는 초전도체의 이붕소 마그네슘에는 염소가 포함될 수 있다. 상기 염소는 상기 이붕소 마그네슘 입자의 결정 입계 또는 내부에 포함될 수 있고, 이붕소 마그네슘의 격자(lattice) 내부에 포함될 수 있다.

[0056] 본 발명의 다른 실시예에 따르면, 본 발명의 일 실시예에 따른 제조방법으로 제조되는 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체가 제공된다.

[0057] 본 발명의 다른 실시예에 따른 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체는 초전도 임계 전류밀도 값이 우수하여, NMR, MRI 등의 의료기기 및 초전도 전력케이블, 초전도 자기에너지 저장장치 등 다양한 분야에 적용될 수 있다.

[0058] 본 발명의 또 다른 실시예에 따르면, 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체로서, 상기 이붕소 마그네슘은 염소를 포함하는 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체가 제공된다.

[0059] 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체에 염소가 포함됨으로써, 초전도체의 초전도성을 향상시킬 수 있다. 구체적으로, 염소를 포함하는 이붕소 마그네슘 초전도체는 염소를 포함하지 않는 이붕소 마그네슘 초전도체보다 초전도 임계 전류밀도가 향상될 수 있다. 따라서, 본 발명의 또 다른 실시예에 따른 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체는 초전도 임계 전류밀도 값이 우수하여, NMR, MRI 등의 의료기기 및 초전도 전력케이블, 초전도 자기에너지 저장장치 등 다양한 분야에 적용될 수 있다.

[0060] 본 발명의 또 다른 실시예에 따른 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체의 염소 함량은 상기 이붕소 마그네슘에 대하여 0.1 at% 이상 2 at% 이하일 수 있다. 구체적으로, 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체의 염소 함량은 상기 이붕소 마그네슘에 대하여 0.1 at% 이상 0.3 at% 이하일 수 있다. 우수한 초전도 임계 온도 및 초전도 임계 전류밀도를 보유하는 초전도체를 제공하기 위하여, 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체의 염소 함량은 상기 이붕소 마그네슘에 대하여 0.1 at% 이상 0.3 at% 이하인 것이 바람직할 수 있다.

[0061] 본 발명의 또 다른 실시예에 따르면, 상기 염소는 상기 이붕소 마그네슘 입자의 결정 입계 또는 내부에 포함될 수 있다. 구체적으로, 염소는 이붕소 마그네슘 입자의 내부, 이붕소 마그네슘 입자의 결정 입계(grain boundary) 또는 이붕소 마그네슘 입자의 내부 및 결정 입계에 존재할 수 있다. 또한, 염소는 이붕소 마그네슘의 격자(lattice) 내부에도 존재할 수 있다. 상기 염소가 상기 이붕소 마그네슘 입자의 결정 입계 또는 내부, 격자 내부에 존재함으로써, 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체에 외부 자기장이 부여되는 경우에 이붕소 마그네슘의 자속고정 특성을 강화시켜 상기 초전도체의 초전도 임계 전류밀도를 향상시킬 수 있다.

[0062] **발명의 실시를 위한 형태**

[0063] 이하, 본 발명을 구체적으로 설명하기 위해 실시예를 들어 상세하게 설명하기로 한다. 그러나, 본 발명에 따른 실시예들은 여러 가지 다른 형태로 변형될 수 있으며, 본 발명의 범위가 아래에서 기술하는 실시예들에 한정되는 것으로 해석되지 않는다. 본 명세서의 실시예들은 당업계에서 평균적인 지식을 가진 자에게 본 발명을 보다 완전하게 설명하기 위해 제공되는 것이다.

[0064] **실시예 1**

[0065] 입자 크기가 20 ㎚ 이상 100 ㎚ 이하이고, 전체 붕소 분말 입자에 대하여 99 % 이상의 붕소 분말 입자를 포함하며, 산소 함량은 0.64 at%, 염소 함량은 0.04 at%, 붕소 함량은 99.32 at%인 붕소 분말을 준비하였다. 또한, 액상의 염화 탄화수소 화합물로 클로로포름을 준비하였고, 입자 크기가 1 ㎛ 이상 5 ㎛ 이하이고 전체 마그네슘 분말 입자에 대하여 99 % 이상의 마그네슘 분말 입자를 포함하는 마그네슘 분말을 준비하였다.

[0066] 준비된 붕소 분말 64 mg 및 클로로포름 100 ㎕를 약 10 분 동안 혼합하여 제1 혼합물을 제조하였고, 제조된 제1 혼합물과 마그네슘 분말 74 mg을 약 30 분 동안 혼합하여 제2 혼합물을 제조하였다. 이후, 제2 혼합물을 1000 MPa의 압력에서 가압하여 성형체를 제조하였고, 제조된 성형체를 700 ℃에서 약 1 시간 동안 소결하여, 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체 시편을 제조하였다.

[0067] **실시예 2**

[0068] 클로로포름을 1000 ㎕ 사용한 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체 시편을 제조하였다.

[0069] **비교예 1**

[0070] 상기 실시예 1과 동일한 붕소 분말, 클로로포름 및 마그네슘 분말을 준비하였다. 준비된 붕소 분말 64 mg과 마그네슘 분말 74 mg을 약 약 30 분 동안 혼합하여 제1 혼합물을 제조하였고, 제조된 제1 혼합물과 클로로포름 100 ㎕를 약 10 분 동안 혼합하여 제2 혼합물을 제조하였다. 이후, 제2 혼합물을 1000 MPa의 압력에서 가압하여 성형체를 제조하였고, 제조된 성형체를 700 ℃에서 약 1 시간 동안 소결하여, 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체 시편을 제조하였다.

[0071] **비교예 2**

[0072] 클로로포름을 1000 ㎕ 사용한 것을 제외하고는 상기 비교예 1과 동일한 방법으로 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체 시편을 제조하였다.

[0073] **비교예 3**

[0074] 상기 실시예 1과 동일한 붕소 분말 및 마그네슘 분말을 준비하였다. 준비된 붕소 분말 64 mg과 마그네슘 분말 74 mg을 약 30 분 동안 혼합하여 혼합물을 제조하였고, 제조된 혼합물을 1000 MPa의 압력에서 가압하여 성형체를 제조하였다. 이후, 성형체를 700 ℃에서 약 1 시간 동안 소결하여, 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체 시편을 제조하였다.

[0075] **TEM 분석**

[0076] 도 2는 본 발명의 실시예 1 및 2에서 제조된 제1 혼합물의 TEM 분석 결과를 나타낸 도면이다.

[0077] 도 2를 참고하면, transmission electron microscope(TEM)을 이용하여 실시예 1 내지 2에서 제조된 제1 혼합물을 분석해 본 결과, 클로로포름을 포함하는 비정질 층이 붕소 입자의 표면에 형성되는 것을 확인하였다.

[0078] **EDS 분석**

[0079] 실시예 1 내지 2 및 비교예 1 내지 3에서 제조된 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체 시편을 구성하는 원소를 확인하기 위해 에너지분산형 X선분광기(EDS; Energy Dispersive X-ray Spectroscopy)로 발산된 에너지를 측정하였다.

[0080] 도 3a는 본 발명의 실시예 2에서 제조된 초전도체 시편의 EDS 분석 결과를 나타낸 도면이고, 도 3b는 비교예 2에서 제조된 초전도체 시편의 EDS 분석 결과를 나타낸 도면이다.

[0081] 도 3a 및 도 3b에서 보듯이, 본 발명의 실시예 2 및 비교예 2에서 제조된 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체에는 탄소가 포함되지 않는 것을 확인하였다. 제2 혼합물을 소결하는 단계에서 클로로포름에 포함된 탄소는 일정 양의 염소와 함께 휘발될 수 있다.

[0082] 또한, 본 발명의 실시예 2에서 제조된 초전도체 시편에 포함되는 원자의 함유량과 비교예 2에서 제조된 초전도체 시편에 포함되는 원자의 함유량에 차이가 있는 것을 확인하였다. 즉, 붕소 분말, 액상의 염화 탄화수소 화합물 및 마그네슘 분말을 혼합하는 순서에 따라, 제조되는 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체에 함유되는 원자의 조성비에 차이가 발생되는 것을 확인하였다.

[0083] 비교예 2의 경우, 반응성이 높은 염소와 반응성이 높은 마그네슘이 먼저 반응함에 따라 이염화 마그네슘 등이 형성될 수 있고, 제조되는 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체에 잔존할 수 있다. 이에 의해, 비교예 2에서 제조된 제1 혼합물에는 붕소와 반응할 수 있는 마그네슘의 양이 줄어 제조되는 초전도체의 초전도성이 감소될 수 있으며, 상기 형성된 이염화 마그네슘 등은 마그네슘과 붕소의 반응에 영향을 미칠 수 있다.

[0084] 반면, 본 발명의 실시예 2의 경우, 반응성이 높은 염소에 비하여 붕소는 안정한 물질로서, 클로로포름과 붕소를 혼합함에 따라 붕소 표면에 클로로포름을 포함하는 비정질층이 형성된 제1 혼합물을 제조할 수 있다. 이후, 제2 혼합물을 제조하고 소결함에 따라, 비정질층에 포함된 염소는 이붕소 마그네슘의 결정 입계 또는 내부에 안정적으로 존재할 수 있다.

[0085] **초전도 임계 온도 측정**

[0086] PPMS(Physical Property Measurement System) 장치의 VSM(Vibrating Sample magnetometer) 를 이용하여, 실시예 1 내지 2 및 비교예 1 내지 3에서 제조된 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체 시편의 초전도 임계 온도를 측정하였다.

[0087] 도 4a는 본 발명의 실시예 1 내지 2 및 비교예 3에서 제조된 초전도체 시편의 초전도 임계 온도 값을 나타낸 도

면이고, 도 4b는 비교예 1 내지 3에서 제조된 초전도체 시편의 초전도 임계 온도 값을 나타낸 도면이다.

[0088] 실시예 1 내지 2 및 비교예 1 내지 3에서 제조된 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체 시편의 초전도 임계 온도를 하기 표 1에 나타내었다.

표 1

[0089]

| | 실시예 1 | 실시예 2 | 비교예 1 | 비교예 2 | 비교예 3 |
|---|---|---|---|---|---|
| $T_C$(K) | 37.5 | 37.5 | 37.3 | 37.6 | 37.5 |

[0090] 도 4a, 도 4b 및 표1에서 보듯이, 실시예 1 내지 2 및 비교예 1 내지 3에서 제조된 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체 시편들의 초전도 임계 온도 값은 크게 차이가 나지 않는 것을 확인하였다.

[0091] 탄소를 포함하는 도핑물질을 사용하여 이붕소 마그네슘을 제조하는 경우, 이붕소 마그네슘의 붕소 원자가 탄소 원자로 치환됨에 따라, 이붕소 마그네슘의 초전도 임계 온도 값이 낮아지게 된다. 반면, 본 발명의 실시예 1 및 2에서 제조된 초전도체 시편과 비교예 1에서 제조된 초전도체 시편을 비교해보면, 초전도 임계 온도 값이 크게 감소되지 않는 바, 본 발명의 일 실시예에 따른 방법으로 제조된 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체는 탄소를 포함하고 있지 않는 것을 확인하였다.

[0092] **초전도 임계 전류밀도 측정**

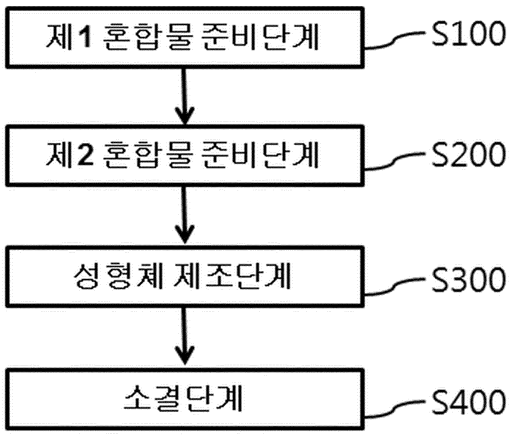
[0093] PPMS(Physical Properties Measurement System)의 VSM option 으로 측정된 자기장에 대한 자화 (Magnetization VS. Field) 결과 값을 Bean´ s model을 이용하여 자기장에 대한 임계전류밀도 (critical current density VS. Field) 변환하여, 실시예 1 내지 2 및 비교예 1 내지 3에서 제조된 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체 시편의 5K 및 20K의 온도에서의 초전도 임계 전류밀도 값을 측정하였다.

[0094] 도 5a는 본 발명의 실시예 1 내지 2 및 비교예 3에서 제조된 초전도체 시편의 초전도 임계 전류밀도 값을 나타낸 도면이고, 도 5b는 비교예 1 내지 3에서 제조된 초전도체 시편의 초전도 임계 전류밀도 값을 나타낸 도면이다.

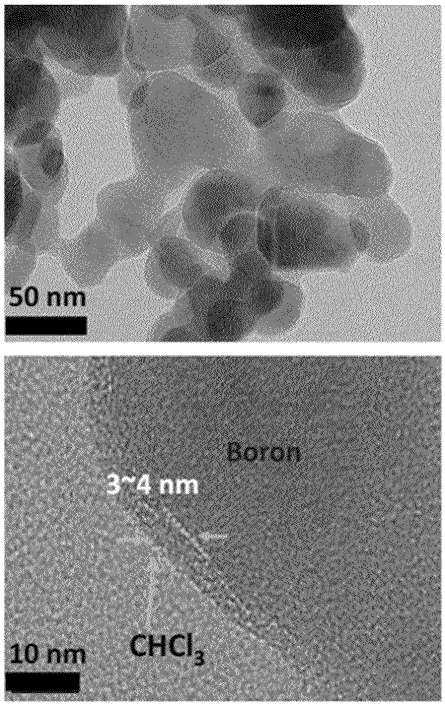
[0095] 도 5a에서 보듯이, 본 발명의 일 실시예에 따라 제조된 제조된 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체는 비교예 3에서 제조된 초전도체에 비하여, 5K 및 20K의 온도에서 초전도 임계 전류밀도 값이 향상된 것을 확인하였다. 반면, 도 5b를 참고하면, 비교예 1 내지 2에서 제조된 이붕소 마그네슘을 포함하는 초전도체는 비교예 3에서 제조된 초전도체에 비하여, 5K 및 20K의 온도에서 초전도 임계 전류밀도 값이 감소된 것을 확인하였다.

## 도면

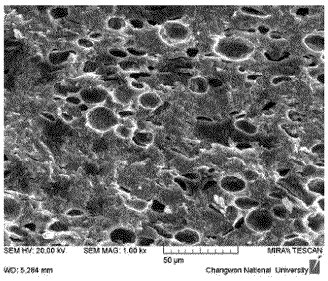
### 도면1

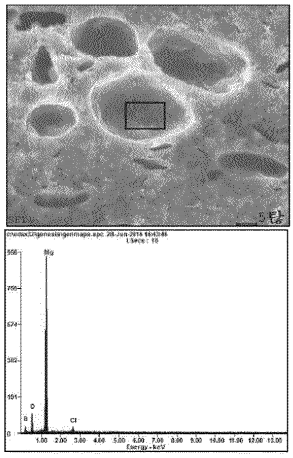


도면2

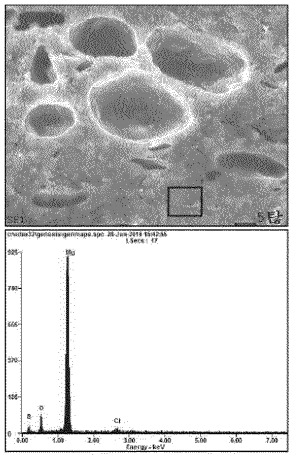



도면3a



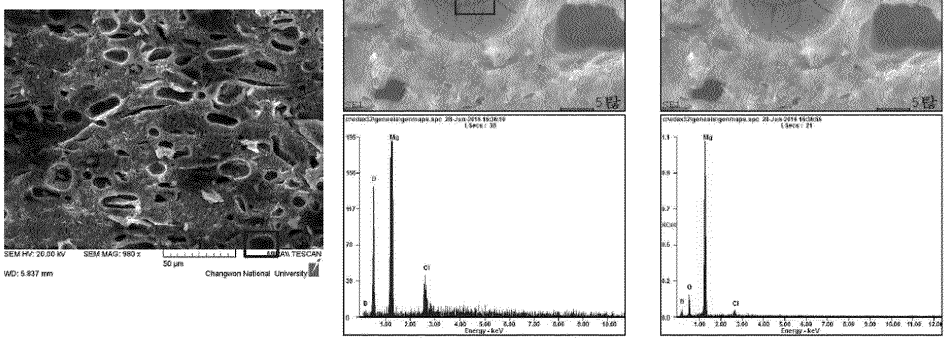



| Element | Wt% | At% |
|---|---|---|
| BK | 66.25 | 80.04 |
| OK | 07.02 | 05.73 |
| MgK | 25.96 | 13.95 |
| ClK | 00.78 | 0.29 |
| Matrix | Correction | ZAF |



| Element | Wt% | At% |
|---|---|---|
| BK | 64.69 | 79.03 |
| OK | 06.75 | 05.57 |
| MgK | 27.86 | 15.14 |
| ClK | 00.70 | 0.26 |
| Matrix | Correction | ZAF |

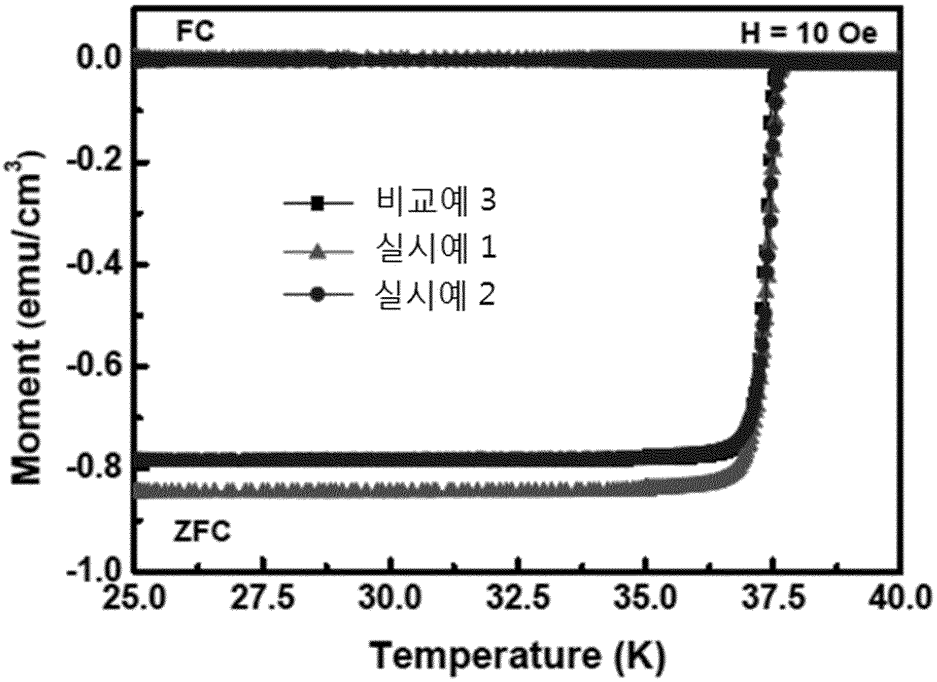
도면3b



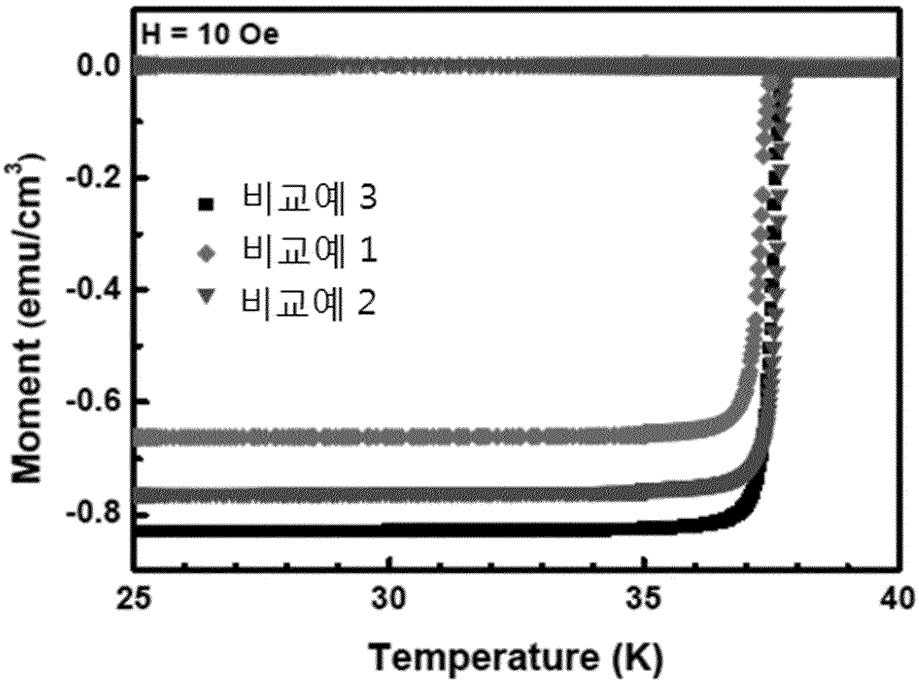
| Element | Wt% | At% |
|---|---|---|
| BK | 37.84 | 54.19 |
| OK | 21.39 | 20.70 |
| MgK | 36.53 | 23.26 |
| ClK | 04.24 | 01.85 |
| Matrix | Correction | ZAF |

| Element | Wt% | At% |
|---|---|---|
| BK | 66.10 | 79.39 |
| OK | 09.61 | 07.80 |
| MgK | 23.28 | 12.43 |
| ClK | 01.01 | 0.37 |
| Matrix | Correction | ZAF |

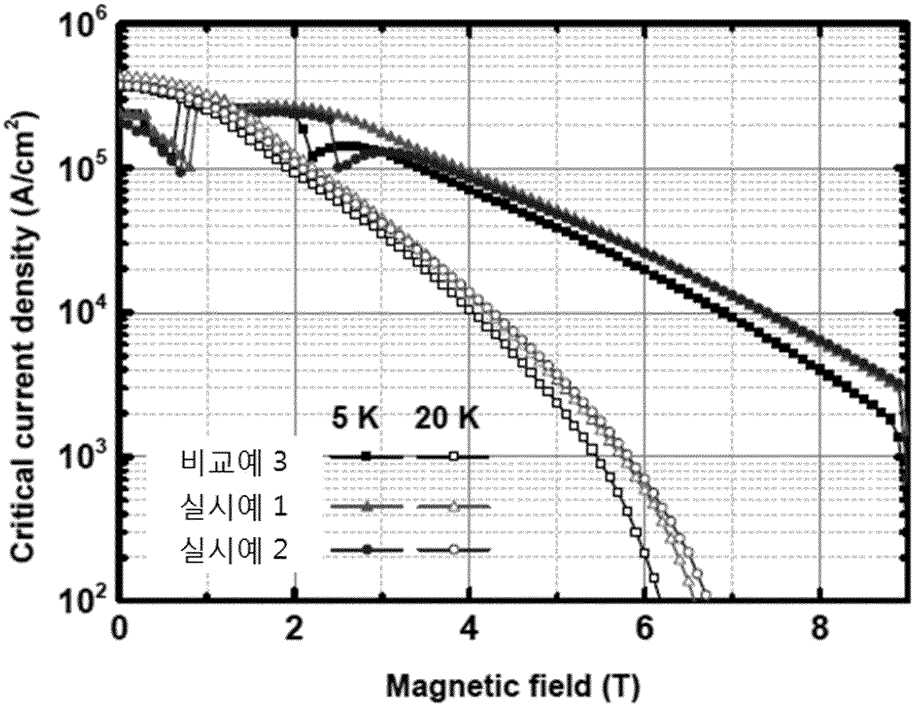
도면4a



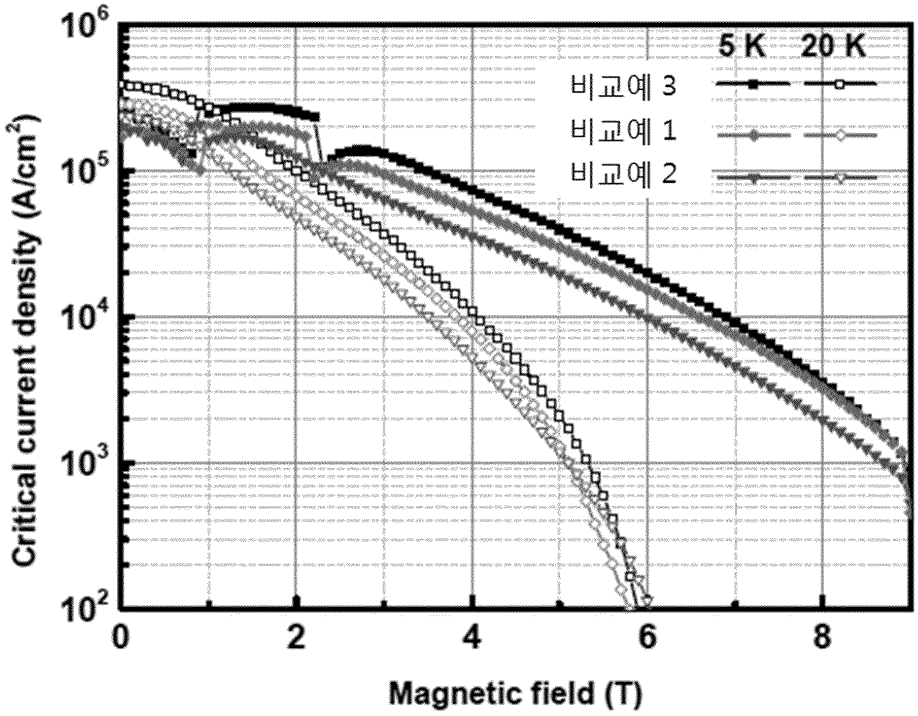
도면4b


H = 10 Oe
0.0
-0.2
-0.4
-0.6
-0.8
Moment (emu/cm3)
비교예 3
비교예 1
비교예 2
25
30
35
40
Temperature (K)

도면5a


10^6
10^5
10^4
10^3
10^2
Critical current density (A/cm2)
5 K
20 K
비교예 3
실시예 1
실시예 2
0
2
4
6
8
Magnetic field (T)

도면5b


5 K
20 K
비교예 3
비교예 1
비교예 2
Critical current density (A/cm²)
Magnetic field (T)
10⁶
10⁵
10⁴
10³
10²
0
2
4
6
8