

## خواص مغناطیسی و ساختاری ابررسانای (۲۲۲۳) Bi آلاییده به سرب و آنتیموان

هادی سلامتی و مراد کامکار

دانشکده فیزیک، دانشگاه صنعتی اصفهان

(دریافت مقاله: ۷۶/۷/۹ دریافت نسخه نهایی: ۷۷/۳/۱۸)

### چکیده

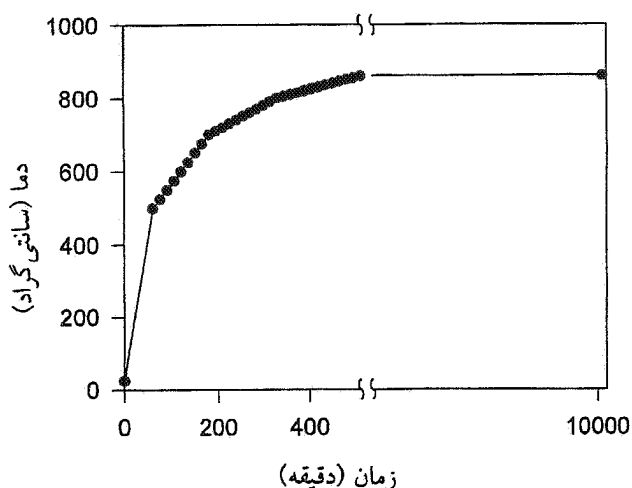
در این پژوهش به طور سیستماتیک به بررسی اثر حضور یونهای  $Pb$  و  $Sb$  در جایگاه  $Bi$  در ابررساناهای سرامیکی  $BSCCO$  (۲۲۲۳) پرداخته ایم. با توجه به گزارشهای متناقضی که در مورد افزایش دمای بحرانی این نوع ابررسانا با نشانیدن  $Sb$  به جای  $Bi$  داده شده است، با انتخاب استکیومتری دقیق، این مطلب و همچنین حضور یونهای  $Sb$  در تشکیل و بهینه سازی فاز (۲۲۲۳)، مورد مطالعه قرار گرفته است. با استفاده از آرایش ابررسانای فوق به نسبت مناسب  $Pb+Sb$ ، نمونه‌های با درصد خلوص بالا از این فاز تهیه شده است. پذیرفتاری مغناطیسی نمونه‌های فوق اندازه گیری شده و ساختار آنها توسط  $XRD$  و  $SEM$  مورد مطالعه قرار گرفته است. نتایج این بررسی‌ها نشان می‌دهد که اگرچه وجود  $Pb$  برای تشکیل فاز (۲۲۲۳) ضروری بوده و باعث پایداری آن می‌شود اما حضور  $Sb$  به ایجاد درصد بالای فاز مذکور کمک می‌کند. ضمناً  $Sb$  باعث همبستگی بیشتر بین دانه‌های شده و باعث افزایش جریان بحرانی این مواد می‌شود. برخلاف گزارشهای قبلی، دمای گذار این نوع ابررساناها با افزودن  $Sb$  بالا نمی‌رود. نتایج آزمایشها نشان می‌دهد که خواص ابررسانایی به مدت زمان و دمای پخت بسیار حساس است.

### ۱. مقدمه

پایدار شناخته شده در این ابررساناها است و به دلیل اینکه می‌توان تک بلور آن را تهیه کرد مورد توجه قرار گرفته است. ولی از بین دو فاز دیگر که دارای پایداری کمتری هستند و آنها را نمی‌توان به راحتی تهیه کرد، فاز (۲۲۲۳) با دمای گذار  $T_c \approx 110^\circ K$  به دلیل دمای گذار بالاتر و توانایی آن در عبور جریان الکتریکی بیشتر، از نقطه نظر کاربردی بیشتر مورد توجه است.

برای تهیه نمونه ابررسانایی که دارای درصد بیشتر فاز (۲۲۲۳) نسبت به (۲۲۱۲) باشد شیوه‌های متفاوتی پیشنهاد شده، از آن جمله می‌توان فرایند پخت آرام [۱،۲]، نسبت مناسب اجزاء با دقت زیاد [۳]، آرایش سیستم توسط اتمهای

ابررساناهای بر پایه  $Bi$ - با فرمول عمومی  $Bi_{1-x}Sr_xCa_{n-1}Cu_nO_{2n+4}$  دارای سه فاز اصلی به ازای  $n = 1, 2, 3$  می‌باشند. آنچه که این سه فاز را از هم متمایز می‌کند، اندازه محور  $c$  در شبکه تراگنال است که به ترتیب دارای طولهای  $c_1 = 24/6 \text{ \AA}$ ،  $c_2 = 30/7 \text{ \AA}$  و  $c_3 = 37/1 \text{ \AA}$  می‌باشند. ابررساناهای پایه  $Bi$  معمولاً با فرمول  $BSCCO$  و فازهای مختلف آن به صورت (۲۲۰۱)، (۲۲۱۲)، (۲۲۲۳) معرفی می‌شوند. این افزایش پارامتر  $c$  مربوط به تفاوت تعداد لایه‌های  $Ca$  و  $CuO_2$  است که با افزایش دمای گذار همراه است. در این بین فاز (۲۲۱۲) با دمای گذار  $T_c \approx 85^\circ K$  فاز



شکل ۱. منحنی گرمادهی برحسب زمان در کلوخه سازی نمونه‌ها.

آسیاب کردن مخلوط انجام می‌دهیم.

در بین عملیات حرارتی در تهیه نمونه، آسیاب کردن نمونه از اهمیت بسیاری برخوردار است، این عمل احتمال تشکیل یاخته واحد را به دلیل ایجاد همگنی بیشتر، افزایش می‌دهد. بنابراین پیش از کلوخه سازی یکبار دیگر مخلوط آسیاب می‌شود، ولی در این حالت بیشتر مجاورت سلولهای واحد تشکیل شده در مرحله کلسینه کردن مورد نظر است. در مرحله کلوخه سازی، یاخته‌های واحد مجاور هم می‌توانند شبکه‌ای از فازهای ابررسانا تشکیل دهند. این شبکه‌ها از دانه‌های مجزایی تشکیل شده‌اند که اندازه و ارتباط آنها با یکدیگر نقش مهمی در کیفیت خواص ابررسانایی دارد.

فازهای (۲۲۲۳) و (۲۲۱۲) تمایل دارند در جهت محور *c*- رشد کنند [۳]، بنابراین هر اندازه ارتباط بین دانه‌ها بیشتر باشد، دانه‌های بیشتری در جهت محور *c*- مشترک قرار می‌گیرند و به میدان مغناطیسی اعمال شده بهتر پاسخ می‌دهند.

پیش از عمل کلوخه سازی، مخلوط به دست آمده درون قالب مخصوص با فشار تقریبی  $10^3 \text{ kg/cm}^2 \times 6$  پرس می‌شود. قرص‌های حاصل را به منظور کلوخه سازی به مدت ۱۶۰ ساعت در دمای  $860^\circ\text{C}$  کوره قرار می‌دهیم. برای گرم کردن نمونه و رسیدن به دمای نهایی می‌بایست از روش خاصی پیروی کنیم تا اینکه از شوک‌های حرارتی، ذوب منطقه‌ای و نقص‌های ساختاری ناشی از آنها اجتناب شود. بنابراین برای حفظ تعادل ترمودینامیکی، نمونه‌ها به آرامی گرم می‌شوند و با زیاد شدن دما آهنگ افزایش آن کاهش می‌یابد، شکل ۱. دمای کلسینه کردن و کلوخه سازی به نحوی انتخاب می‌شوند که دمای کلسینه کردن بالاتر از دمای تجزیه

دیگر [۴] را نام برد. در این پروژه برای تهیه نمونه‌ها از هر یک از این شیوه‌ها استفاده شده است تا بتوان شرایط تشکیل فاز (۲۲۲۳) را فراهم آورد.

فاز (۲۲۲۳) در ابتدا به صورت نقص بین رشد شبکه‌ای در تصاویر میکروسکپ الکترونی با قدرت تفکیک بالا در بلور فاز (۲۲۱۲) مشاهده شد. تصاویر بعدی از نمونه‌های آلاییده نشان داد که افزودن مقدار کمی سرب در ترکیب باعث افزایش سریع سهم فاز (۲۲۲۳) در این نمونه‌ها می‌شود، [۵، ۶، ۱]. کوششهای بسیاری نیز در آرایش این ابررسانا با فلزات دیگری همچون آنتیموان صورت گرفت. فلزات سرب و آنتیموان از آن جهت مورد توجه هستند که از نظر خواص به فلز پایه این ابررسانا یعنی بیسموت نزدیک هستند. سرب و بیسموت هر دو در یک دوره جدول تناوبی قرار دارند بنابراین تفاوت عمده آنها در عدد اکسایش است.  $(Bi^{+3}, Pb^{+2})$ . این آرایش می‌تواند به یک عدد اکسایش ترکیبی منجر شود. اما آنتیموان و بیسموت در یک گروه از جدول عناصر قرار دارند، بنابراین به جز شعاع یونی از خواص مشابهی برخوردارند. نتایج گزارشهای آرایش این ابررساناها با *Sb* توسط گروههای مختلف، متفاوت است. بعضی ادعا می‌کنند که این آرایش باعث افزایش دمای گذار می‌شود [۷، ۸، ۹]، در حالیکه نتایج سایرین چنین افزایشی را نشان نمی‌دهد [۱۰، ۱۱].

برای آگاهی از صحت درستی این گفته‌ها و بررسی خواص مغناطیسی و ساختاری این مواد تعدادی نمونه به شیوه ذکر شده ساخته‌ایم و مطالعات متعددی بر روی آنها انجام داده‌ایم.

## ۲- شرح آزمایش

۲-۱- روش ساخت نمونه - در این پروژه از روش واکنش حالت جامد استفاده شده است [۱۲، ۱]. برای رسیدن به فرمول اسمی  $Bi_{1-x}Pb_xSb_ySr_2Ca_2Cu_3O_{10+\delta}$ ، اکسیدهای *Bi*، *Cu*، *Sb*، *Pb* و همچنین کربنات کلسیم و نیترات استرانسیم با درصد خلوص بسیار بالا (حداقل ۹۹/۹٪) را به طور دقیق وزن کرده  $(\Delta m = 10^{-4} \text{ gr})$  و با نسبت‌های مناسب با همدیگر مخلوط می‌کنیم. مخلوط به دست آمده پس از آسیاب کردن جهت کلسینه شدن به مدت ۲۴ ساعت در دمای  $830^\circ\text{C}$  درجه سانتیگراد و در مجاورت هوا پخته می‌شود. در این مرحله بنیانهای غیر فلزی از مخلوط خارج می‌شوند و شرایط برای ترکیب مواد باقی مانده و تشکیل یاخته مورد نظر فراهم می‌شود. برای حصول اطمینان از انجام این عمل، یکبار دیگر عمل کلسینه کردن را پس از

دیگری وجود دارد (سیم پیچ اولیه) که از آن برای ایجاد یک میدان مغناطیسی خارجی (ثابت یا متناوب) استفاده می‌شود. به منظور کاهش اثرات میدان‌های خارجی، یک استوانه فرومغناطیس در خارجی ترین لایه دستگاه قرار گرفته است. همچنین سیم پیچ ثانویه در دو جهت متفاوت پیچیده شده (ثانویه اول و دوم) تا میدان القاء شده به وسیله سیم پیچ اولیه یا اثر منابع نامطلوب خارجی، از بین رود. ولتاژ القا شده در سیم پیچ ثانویه در تقویت کننده (Lock-in) با مرجع ارسالی از واحد کنترل کننده ACS مقایسه می‌شود. حاصل این مقایسه ولتاژی است متناسب با پذیرفتاری مغناطیسی نمونه:

$$v = \chi V H f / \alpha$$

که در آن  $v$  ولتاژ مؤثر اندازه گیری شده،  $\chi$  پذیرفتاری مغناطیسی حجمی نمونه،  $V$  حجم نمونه،  $H$  میدان مغناطیسی مؤثر،  $f$  فرکانس میدان متناوب و  $\alpha$  ضریب درجه بندی دستگاه است. اگر نمونه دارای ضریب وامغناطش باشد مقدار پذیرفتاری تغییر می‌کند:

$$\chi_D = \chi / (1 - D\chi)$$

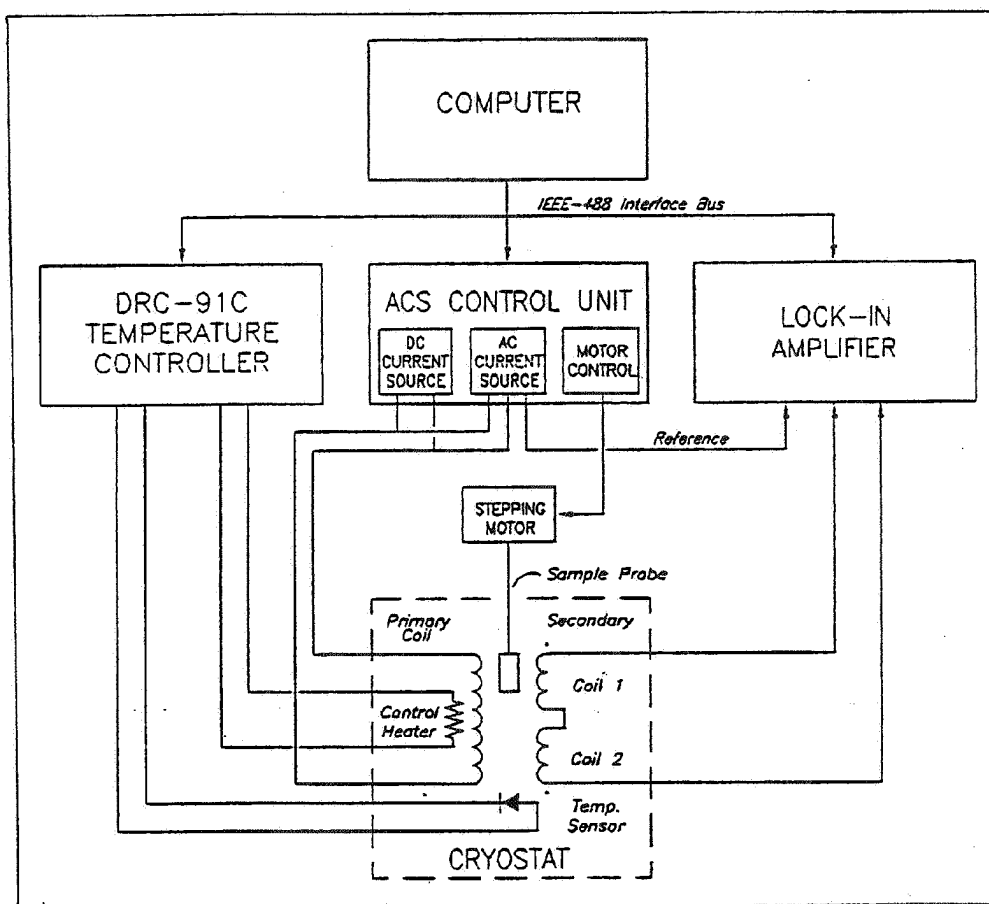
برای استوانه‌ای که میدان مغناطیسی موازی محور آن است  $D = 0$  می‌باشد [۱۳]. در نمونه‌های مکعب مستطیل مورد استفاده نیز به دلیل آنکه طول نمونه به مراتب بیش از عرض و ضخامت آن است، می‌توان نمونه را به طور تقریبی استوانه در نظر گرفت.

از نمونه‌های ساخته شده طیف پراش پرتوی  $x$  تهیه شده و با استفاده از آن درصد حجمی فازهای موجود، ابعاد شبکه و ناخالصی‌های موجود در آنها محاسبه شده است [۱۴]. به منظور بررسی ساختار سطحی، پیکر بندی دانه‌ای و تشخیص درصد مواد تشکیل دهنده نمونه‌ها از آنها تصاویر میکروسکپ الکترونی تهیه شده است. چون نمونه‌های به کار گرفته شده هدایت الکتریکی کافی ندارند انباشته شدن الکترون روی سطوح آن باعث اختلال در پردازش الکترونی‌های بازتاب می‌شود و تصویر واضحی از سطح آنها به دست نمی‌آید. برای رفع این مشکل قبل از گرفتن تصاویر، نمونه به مدت ۳۰ ثانیه در دستگاه لایه گذار در مجاورت بخار فلز (طلا) قرار داده شد تا باعث ایجاد هدایت مورد نیاز نمونه‌ها شود.

تمامی مواد اولیه باشد، همچنین دمای کلوخه سازی نیز باید زیر کران پایینی ذوب جزئی مواد به کار رفته باشد و بیشترین احتمال تشکیل فاز (۲۲۲۳) را به وجود آورد. این پارامترها در تشکیل درصد فازهای ابررسانا در حجم یک نمونه اثر به سزایی دارند. بنابراین دقت بسیاری به کار گرفته شد تا نمونه‌ها در شرایط یکسان حرارتی ( $\Delta T \leq 1^\circ C$ ) تهیه شوند تا بتوان آنها را با یکدیگر مقایسه کرد. کوره بکار گرفته شده از نوع لوله‌ای با لوله کوارتز است و برای اجتناب از اتصال نمونه با جداره کوره قرصها را ابتدا روی ورقه‌ای از طلا و سپس درون کوره قرار می‌دهیم. قرص‌های کلوخه شده درون کوره با قطع جریان ورودی کوره، سرد شده و تیغه‌ای به طول ۱۲mm، ضخامت ۱mm و عرض ۲mm از آن جدا و جهت پردازش‌های بعدی به کار می‌رود.

چگالی نمونه‌های حاصل بین ۳/۶ تا ۴ گرم بر سانتیمتر مکعب است، که این نسبت با اندازه دانه‌های تشکیل شده در قسمت کلسینه کردن و مقدار فشار به کار گرفته شده در هنگام پرس رابطه مستقیمی دارد. همچنین تغییرات دمایی و دمای کلوخه سازی نیز نقش مهمی در پیکدگی نمونه دارند. هر قدر همبستگی بین دانه‌های یک ابررسانای سرامیکی با یکدیگر زیادتر باشد، فضای میان - دانه‌ای محیط مناسب‌تری جهت عبور ابر الکترونها و رسانش آنها ایجاد می‌کند. لازم به ذکر است که در ابررساناهای پایه ایتیم و بیسموت، حفره‌ها انتقال جریان را بر عهده دارند، بنابراین چگالی حفره‌ها در سطوح  $CuO_p$  در ایجاد ابررسانایی مؤثر است و به همین خاطر آنها را ابررسانای نوع  $P$  نیز می‌نامند.

**۲-۲- وسایل اندازه گیری -** در مطالعه خواص مغناطیسی، دستگاه اندازه گیری پذیرفتاری مغناطیسی متناوب نسبت به شیوه‌های دیگر اندازه گیری مغناطیسی (ارتعاش در یک میدان ثابت، ترازوی فاراده و SQUID) کاربرد فراوانتری دارد. دلیل آن را می‌توان در سادگی نسبی و قابلیت اندازه گیری خواص دینامیکی - مغناطیسی سیستم یافت. در این پروژه از دستگاه پذیرفتاری متناوب (مدل ۷۰۰۰ ساخت شرکت Lake Shore) بهره گرفتیم که نمایی از طرز کار آن را در شکل ۲ مشاهده می‌کنیم. اصول این اندازه گیری ساده و بر پایه رانش شار مغناطیسی از داخل ابررسانا (اثر مایسنر) استوار است. هر گونه تغییر توزیع شار مغناطیسی (انرژی) در فضایی که نمونه در آن قرار دارد می‌تواند یک ولتاژ القایی درون سیم پیچی که به دور نمونه پیچیده شده (سیم پیچ ثانویه)، ایجاد کند. این ولتاژ القایی با پذیرفتاری مغناطیسی نمونه ( $\chi$ ) متناسب است. سیم پیچ



شکل ۲. نمایی از طرز کار دستگاه اندازه گیری پذیرفتاری مغناطیسی متناوب.

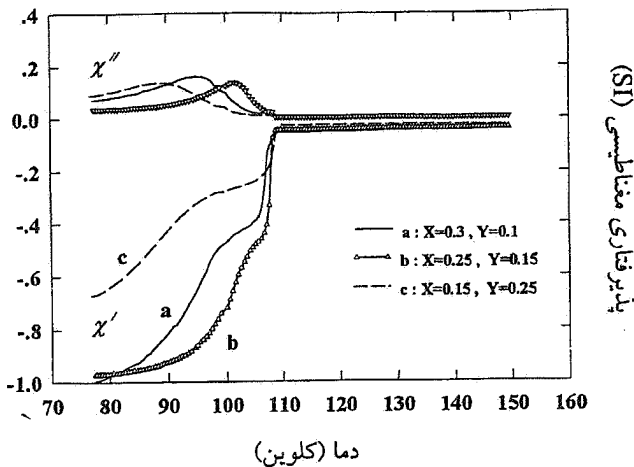
### ۳- نتایج و بحث

در این پروژه پذیرفتاری مغناطیسی جریان متناوب نمونه‌هایی با درصد متفاوت  $Sb$  و  $Pb$  در میدانهایی با دامنه‌های مختلف اندازه گیری شده‌است. نتایج به دست آمده را می‌توان به صورت زیر خلاصه کرد.

این اندازه گیری‌ها دو گذار در هر دو قسمت حقیقی  $\chi'$  و موهومی  $\chi''$  نشان می‌دهند، که از این به بعد به گذار دمای بالا (در حوالی  $110^\circ K$ ) گذار درون-دانه‌ای و به گذار دمای پایینی، گذار میان-دانه‌ای می‌گوییم. صحت این نام گذاری و نسبت دادن دو گذار به قسمت‌های متفاوت نمونه را می‌توان با اندازه گیری پذیرفتاری یک نمونه به دو صورت فشرده (مکعب مستطیل با ابعاد  $12 \times 2 \times 1 mm$ ) شکل ۳ - الف و پودری شکل ۳ - ب در میدان مغناطیسی  $50 A/m$  نشان داد. در اندازه گیری پذیرفتاری نمونه‌های پودری فوق تنها یک گذار مشاهده می‌شود که معرف

گذار فاز دمای بالا (درون-دانه‌ای) در شکل ۳ - الف است. در نمونه پودری که اندازه دانه‌های آن بین ۵ تا ۱۰ میکرون و قابل قیاس با متوسط اندازه دانه‌های نمونه سرامیکی است، ارتباط بین دانه‌ها شکسته می‌شود و دانه‌ها تقریباً از یکدیگر جدا می‌شوند (اندازه ذرات توسط دستگاه  $LPSA$  اندازه گیری شده‌است). بنابراین می‌توان گذار فاز بالایی را به دانه‌ها و پایینی را به بین دانه‌ها منسوب کرد. همچنین در صورت وجود چند گذار فاز، نسبت دامنه گذار می‌تواند ملاک مناسبی از نسبت حجمی آنها در نمونه باشد.

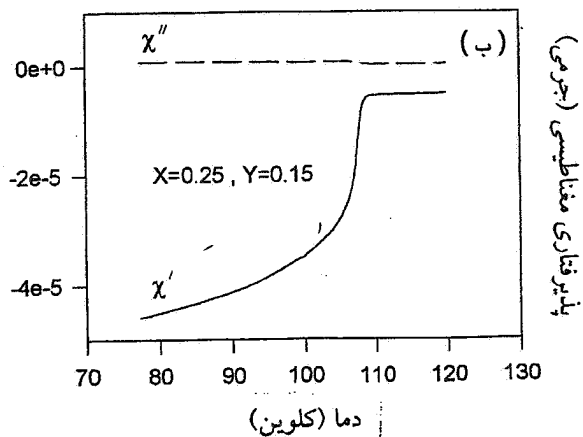
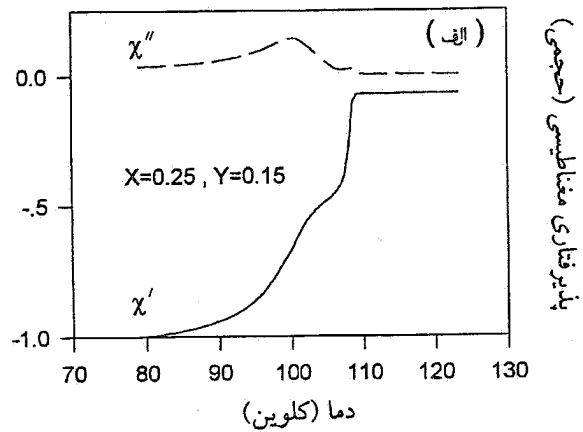
در قسمت موهومی دو قله مشاهده می‌شود، یک قله باریک درون-دانه‌ای و یک قله پهن میان - دانه‌ای. قله‌های قسمت



شکل ۴. پذیرفتاری مغناطیسی متناوب به ازای مقادیر متفاوت سرب ( $X$ ) و آنتیموان ( $Y$ ).

فرایندی معکوس روی می‌دهد و درصد حجمی فاز (۲۲۲۳) به سرعت کاهش می‌یابد. این روند تأثیر مثبت آرایش مقدار کمی از  $Sb$  در بهبود ابررسانای (۲۲۲۳) را نشان می‌دهد و همچنین نشانگر این مطلب است که مقادیر بیشتر آن می‌تواند شبکه آن را تخریب کند. با توجه به نقش  $Pb$  در اصلاح ساختار ابررساناهای  $BSCCO$ ، چنین به نظر می‌رسد که حضور  $Sb$  مانع از تبخیر  $Pb$  می‌شود و شرایط بهینه برای تشکیل فاز (۲۲۲۳) به وجود می‌آید. این نظریه با نتایج محاسبات و اندازه‌گیری‌های لیبو و همکارانش [۱۱] مطابق است. این آرایش تأثیر به‌سزایی در تغییر دمای گذار میان-دانه‌ای دارد، در نتیجه پیش‌بینی می‌شود که به افزایش جریان بحرانی کمک کند. با افزایش میزان  $Sb$  ابتدا دمای گذار میان-دانه‌ای افزایش می‌یابد و سپس شروع به کاهش می‌کند که تغییرات آن به ۱۰ تا ۱۵ کلوین می‌رسد. این در حالی است که دمای گذار درون-دانه‌ای تغییر چندانی نشان نمی‌دهد و در دمای تقریباً  $109^{\circ}K \approx T_c$  ثابت می‌ماند، این نتیجه کاملاً با نتایج به دست آمده توسط سرکار [۱۵] مطابق است. قسمت موهومی پذیرفتاری نیز تغییرات مشابه‌ای نشان می‌دهد. با ثابت ماندن قله کوچک درون-دانه‌ای، قله پهن میان-دانه‌ای با آرایش مقدار کمی از  $Sb$  ضمن باریک شدن (افزایش جریان بحرانی ابرسانا) به دماهای بالاتر انتقال می‌یابد و افزایش بیشتر  $Sb$  باعث انتقال آن به سمت دماهای پایین‌تر می‌شود. پهن شدگی شدید آن در دماهای پایین‌تر نشانه تخریب ارتباط میان-دانه‌ای است.

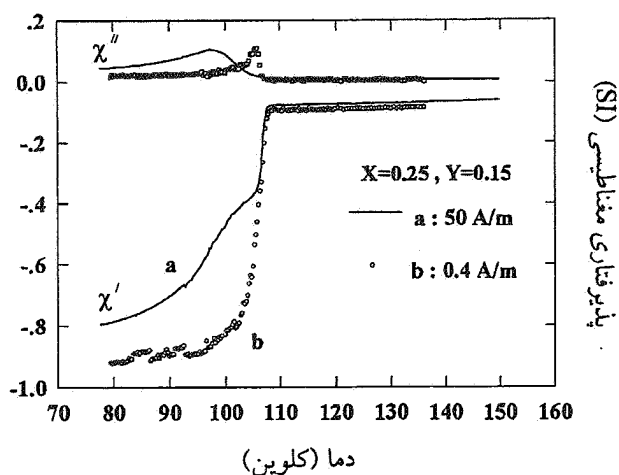
اگر از مقدار سرب همچنان بکاهیم و بر مقدار آنتیموان



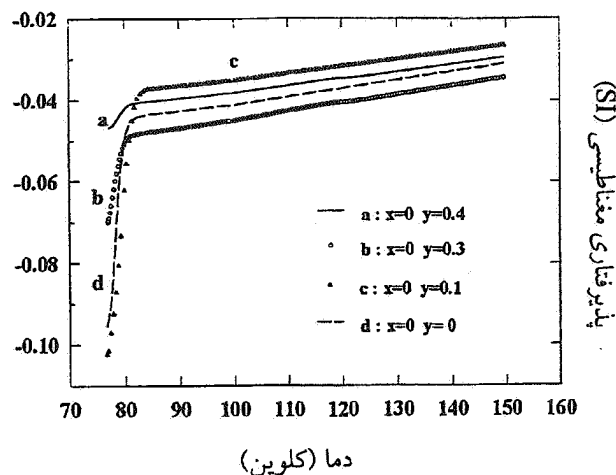
شکل ۳. پذیرفتاری مغناطیسی متناوب نمونه  $X=0/25$  و  $Y=0/15$  (الف) به صورت سرامیک با حجم معین، (ب) به صورت پودر با جرم معین.

موهومی ( $\chi''$ ) به اتلاف پس‌ماند مربوط است و پهنای آن نسبت عکس با مقدار جریان بحرانی نمونه دارد. با توجه به اینکه قله میان-دانه‌ای بسیار بزرگتر و پهن‌تر از قله درون-دانه‌ای است انتظار می‌رود جریان بحرانی در نمونه‌های فوق‌پایین باشد، به عبارت دیگر فضای میان-دانه‌ای جریان بحرانی درون-دانه‌ای را محدود کند.

مطالعه تغییرات پارامترهای مهم ابررسانایی در نمونه‌های ساخته شده از این ابررسانا با مقدار سرب  $X (0 \leq X \leq 0/3)$  و مقدار آنتیموان  $Y (0/1 \leq Y \leq 0/4)$  نشان می‌دهند که به ازای مقدار آنتیموان  $Y (0/15$  و  $X = 0/25)$  فاز (۲۲۲۳) بیشتر تشکیل می‌شود و گذار این فاز بهتر صورت می‌گیرد. در شکل ۴ منحنی پذیرفتاری مغناطیسی سه نمونه به ازای  $X=0/15$ ،  $0/25$ ،  $0/3$  و  $X=0/1$ ،  $0/15$ ،  $0/25$  مشاهده می‌شود. افزایش مقدار آنتیموان تا  $Y = 0/15$  باعث افزایش دامنه گذار ( $\Delta T_c$ ) و کاهش پهنای آن می‌شود، از آن به بعد با افزایش مقدار آنتیموان



شکل ۶. پذیرفتاری مغناطیسی متناوب نمونه ( $X=0.25$  و  $Y=0.15$ ) در دو شدت مغناطیسی قوی (a) و ضعیف (b).



شکل ۵. مؤلفه حقیقی پذیرفتاری مغناطیسی متناوب به ازای مقادیر متفاوت آنتیموان ( $Y$ ) در نمونه بدون سرب.

حجم این نمونه‌ها فاز (۲۲۲۳) است. از طرفی با کمک اندیس‌های میلر می‌توان ابعاد شبکه تشکیل دهنده این نمونه را به دست آورد. (اندیس‌های به کارگرفته شده از مرجع [۱۸] برگرفته شده است). مقدار متوسط ابعاد شبکه بلوری برای فاز (۲۲۲۳) که از نتایج پراش پرتوی ایکس این نمونه محاسبه شده است عبارتند از  $c = 37/2\text{\AA}$  و  $a \approx b \approx 5/4\text{\AA}$  که با ابعاد گزارش شده دیگر گروه‌ها کاملاً مطابق است. [۱، ۵]

برای به دست آوردن تصویر مناسب تری از تأثیر آرایش این ابررساناها با  $Sb$  تصاویر میکروسکپ الکترونی این نمونه‌ها با مقدار متفاوت سرب و آنتیموان تهیه شده است، شکل ۸. بررسی این تصاویر نشان می‌دهد که دانه‌بندی نمونه‌های ( $X=0.25$ ,  $Y=0.15$ ) بزرگتر و به شکل لایه‌های پکیده با چگالش بیشتری از سایر نمونه‌ها هستند. تحلیل این نتایج نشان می‌دهد که نه تنها افزودن  $Sb$  باعث افزایش درصد حجمی فاز (۲۲۲۳) (تأثیر درون دانه‌ای) می‌شود بلکه باعث ارتباط بهتر بین دانه‌های این نوع ابررساناها نیز خواهد شد. این تحلیل‌ها با نتایج به دست آمده توسط سرکار و همکارانش [۱۵] کاملاً مطابق بوده و مؤید نتایج حاصل از اندازه‌گیری‌های پذیرفتاری مغناطیسی است.

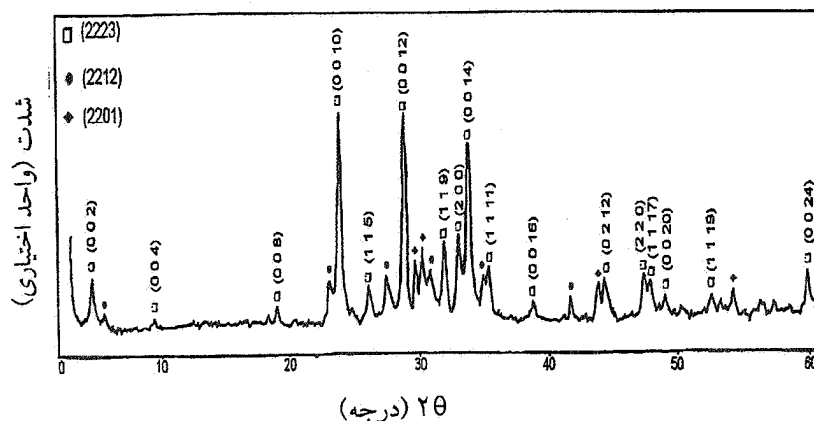
#### ۴. خلاصه

آزمایشهای انجام شده نشان می‌دهند که وجود مقدار کمی آنتیموان در ترکیب (۲۲۲۳) به شدت بر ارتباط بین دانه‌های اثر می‌گذارد و باعث افزایش دمای گذار آن به مقدار تقریبی  $15^\circ\text{K}$

بیشتر می‌گردد. به شدت کاهش می‌یابد و با حذف سرب ( $X=0$ ) از ترکیب، فاز (۲۲۲۳) به کلی حذف می‌شود. جالب تر اینکه حذف فاز (۲۲۲۳) نیز با ظاهر شدن فاز (۲۲۱۲) همراه است. این نتیجه کاملاً با نتایج قبلی [۱۷، ۱۶، ۵، ۱] مطابق است که نشان می‌دهد وجود سرب برای تشکیل فاز (۲۲۲۳) ضروری است و نقش یک تصحیح کننده ساختاری را برای تشکیل این فاز بازی می‌کند [۵]. در حالی که مقدار سرب صفر است، دمای بحرانی و دامنه فاز (۲۲۱۲) با تغییر مقدار آنتیموان کمی تغییر می‌کند که به ازای ( $Y=0.1$ ) بیشترین مقدار خود را خواهد داشت. شکل ۵ حاکی از آن است که مقدار کمی آنتیموان در تشکیل فاز (۲۲۱۲) نیز مؤثر است.

اندازه‌گیری پذیرفتاری مغناطیسی جریان متناوب با میدانهای کم نشان می‌دهد که گذار فاز میان-دانه‌ای شدیداً به دامنه این میدانها وابسته است. در شکل ۶ چگونگی تأثیر تغییر شدید میدان مغناطیسی از  $50\text{ A/m}$  (a) تا  $0.4\text{ A/m}$  (b) برای نمونه بهینه ( $X=0.25$ ,  $Y=0.15$ ) ملاحظه می‌شود. کاهش میدان باعث انتقال و باریک شدن قله قسمت موهومی می‌شود که نشانه کاهش اتلاف پس ماند است.

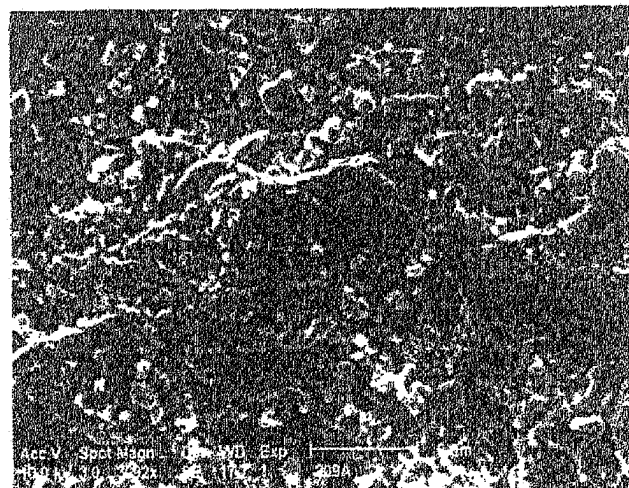
نتایج پراش پرتوی ایکس نمونه ( $x=0.25$  و  $Y=0.15$ ) در شکل ۷ نشان داده شده است. تحلیل نتایج حاصله از این نمودار نشان می‌دهد که فاز غالب در این نمونه‌ها فاز (۲۲۲۳) است. البته قله‌هایی از فازهای (۲۲۱۲) و (۲۲۰۱) نیز در این طیف وجود دارند که درصد حجمی کمی از این فازها را نشان می‌دهند. محاسبات انجام شده نشان می‌دهد که بیش از ۶۳٪



شکل ۷. طیف پراش پرتوی  $X$ -از نمونه ( $X = 0/25$  و  $Y = 0/15$ ) که در آن قله‌های سه فاز اصلی ابررسانای بیسموت به همراه اندیسه‌های میلر فاز (۲۲۲۳) مشخص شده‌اند.



(ب)



(الف)

شکل ۸. تصاویر میکروسکپ الکترونی (الف) نمونه ( $X = 0/25$  و  $Y = 0/15$ ) یکپدگی و وجود لایه‌های فشرده قابل مشاهده است. (ب) نمونه  $X = 0/3$  و  $Y = 0/1$  وجود ساختار سوزنی شکل قابل مشاهده است.

می‌تواند منجر به یک مدولاسیون بی‌تناسب شود. به هر حال نتایج نشان می‌دهند که ترکیبی از آنتیموان و سرب به عنوان آلاینده در ابررسانای بیسموت می‌تواند یکی از روشهای مناسب افزایش درصد تشکیل فاز (۲۲۲۳)، ارتباط بهتر بین دانه بندی در این ابررساناها و در نتیجه منجر به افزایش جریان بحرانی در این نوع ابررساناها شود. مطالعات بعدی در مورد اثر حضور  $Sb$  و  $Pb$  و تأثیر آن بر جریان بحرانی این ابررسانا هم اکنون در حال انجام است.

می‌شود. این امر با افزایش درصد حجمی فاز (۲۲۲۳) در نمونه همراه است. این در حالی است که دمای گذار درون-دانه‌ای هیچ تغییری نمی‌کند و فقط دامنه گذار آن بزرگتر می‌شود که گویای بیشتر شدن درصد حجمی فاز (۲۲۲۳) است. همچنین افزودن  $Sb$  باعث می‌شود پهنای گذار کمتر شود که نتیجه‌ای از همگنی بیشتر نمونه است.

تفاوت عدد اکسایش سرب (+۲) نسبت به بیسموت (+۳) می‌تواند یک عدد اکسایش ترکیبی بین +۲ و +۳ ایجاد کند و شعاع یونی کوچکتر آنتیموان نسبت به بیسموت احتمالاً

## مراجع

- Yuntao, Zhou Guien, Mao Zhiqiang, Wang Haiqian, Chen Zhaojia, and Zhang Yuheng, *Supercon. Sci. Technol.* **3**, 87 (1990).
9. Ansar A Qidwai, Mutaz Humayun, S M Zia-ul-Haque, Dabir Ahmad, and Ahmad Saghir, *Supercon. Sci. Technol.* **5**, 602 (1992).
  10. M Vlasse, J Golben, and T Mitchell, *Supercon. Sci. Technol.* **5**, 236 (1992).
  11. Ren Yuan Liu, H Naito, M Okuda, K Nakahigashi, Y Takingawa, T Mastsushita, and K Kurosawa, *Supercon. Sci. Technol.* **5**, 482 (1992).
  12. R Ramesh, S Green, C Jiang, Yu Mei, M L Rudee, and H L Luo, *Phys. Rev. B*, **38**, 7070 (1988).
  13. Sōshin Chikazumi and Stanley H Charap, *Physics of Magnetism*, John Wiley, New York, 1964.
  14. G H Stout and L H Yensen, *X-ray Structure Determination*, Macmillan, New York, 1968.
  15. B Sarkar, Y S Reddy, and R G Sharma, *Physica C*, **219**, 26 (1994)
  16. H Salamati, *Iranian Journal of Sci. and Technol.*, **18**, 247 (1994).
  17. J C Garvel and R Flükiger, *Supercon. Sci. Technol.*, **9**, 555 (1996).
  18. A Maeda, M Hase, I Tsukada, K Noda, S Takebayashi, and K Uchinokura, *Phys. Rev. B*, **41**, 6418 (1990).
  1. J M Trascon, W R Mckinnon, Y lePage, N Stoffel and M Giroud, *Phys. Rev. B*, **38**, 8885 (1988).
  2. T Hatano, K Aota, S Ikeda, K Nakamura and K Ogawa, *Jpn. J. Appl. Phys.* **27**, L2055 (1988).
  3. Y T Huang, C Y Shei, W N Wang, C K Chiang, and W H Lee, *physica C*, **169**, 76 (1990).
  4. R J Cavan, B Batlogg, S A Sunshine, T Siegrist, R M Fleming, K Rabe, L F Schneemeyer, D W Murphy, R B Van Dorver, P K Gallagher, S H Glarum, S Nakahara, R C Farrow, J J Krajewski, S M Zahurak, J V Waszczak, J H Marshall, P Marsh, L W Rupp, W F Peck and E A Rietman, *Physica C*, **153**, 560 (1988).
  5. S A Sunshine, T Siegrist, L F Schneemeyer, D W Murphy, R J Cava, B Batlogg, R B Van Dover, R M Fleming, S H Glarum, S Nakahara, R Farrow, J J Krajewski, S M Zahurak, J V Waszczak, J H Marshall, P Marsh, L W Rupp and W F Pack, *Phys. Rev. B*, **38**, 893 (1988).
  6. E Chavira, R Escudero, D Rios-Jara and L M Leon, *Phys. Rev. B*, **38**, 9272 (1988).
  7. Liu Hongbao, Zhang Weijie, Zhou Ling, Mao Zhiqiang, Li Biyou, Yan Ming, Cao Liezhao, Chen. Zhaojia, Ruan Yaozhong, Peng Dingkun and Zhang Yuheng, *Solid State Commun.* **69**, 867 (1989).
  8. Cheng Tingzhu, Lu Jiang, Fan Chengao, Yang Li, Lei