

## خواص تراپردی مغناطیسی و اثر هال در نمونه‌های GdPr-123

حسین خسروآبادی، وحید دادمهر و محمد اخوان

آزمایشگاه تحقیقاتی مغناطیس (MRL)، دانشکده فیزیک، دانشگاه صنعتی شریف

دریافت مقاله: ۸۰/۶/۱۲

دریافت نسخه نهایی: ۸۱/۲/۳۱

### چکیده

نمونه‌های تک فاز چند بلوری  $Gd_{1-x}Pr_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  با استوکیومتری  $x=0/05, 0/10, 0/15$  با روش استاندارد واکنش حالت جامد، ساخته و با انجام آزمایش‌های XRD و SEM مشخصه‌یابی شدند. اندازه‌گیری‌های مقاومت ویژه، اثر هال و مقاومت مغناطیسی بر روی این نمونه‌ها انجام شد. نتایج اندازه‌گیری مقاومت ویژه نشان می‌دهد که هر سه ترکیب ساخته شده دارای گذار ابررسانایی می‌باشند. دما و پهنای گذار این نمونه‌ها با افزایش مقدار آلایش Pr در ترکیب به ترتیب کاهش و افزایش می‌یابند. اندازه‌گیری اثر هال این نمونه‌ها، یک رفتار ناهنجار دمایی در ضریب هال را نشان می‌دهد. در نمونه  $Gd_{0.95}Pr_{0.05}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$  یک تغییر علامت ضریب هال نسبت به دما دیده شده است. اندازه‌گیری مقاومت مغناطیسی این نمونه‌ها در بازه ۰ تا ۱۰ kOe نشان می‌دهد که تغییرات مقاومت ویژه در حالت بهنجار ( $T > T_c$ ) با افزایش میدان مغناطیسی کوچک، اما در حالت مخلوط، بزرگ است. مشاهده شده است که با افزایش میدان، پهنای گذار ابررسانایی افزایش می‌یابد و یک رفتار توانی از H را نشان می‌دهد. همچنین از این آزمایش‌ها، رفتار دمایی  $H_{c2}(T)$  در نمونه‌ها به دست آمده است. از نحوه پهن شدن گذار، انرژی میخکوبی و وابستگی آن به میدان مغناطیسی محاسبه شده است. نتایج نشان می‌دهد که انرژی میخکوبی با افزایش میدان مغناطیسی و ناخالصی Pr در نمونه کاهش می‌یابد.

واژه‌های کلیدی: ابررساناهای دمای بالا، اثر هال، مقاومت مغناطیسی، انرژی میخکوبی.

### ۱. مقدمه

بیشتر آزمایش‌ها در بررسی خواص و فهم پدیده ابررسانایی دمای بالا در این ترکیبات، از طریق بررسی تغییرات دمایی کمیت‌های مختلف و همچنین تغییر آنها با آلایش عناصر مختلف در حالت‌های بهنجار ( $T > T_c$ ) و ابررسانا ( $T < T_c$ ) انجام می‌شود. جایگزینی عناصر نادر زمین به جای ایتروم در ترکیب  $Y-123$ ، نشان می‌دهد که این جایگزینی به استثنای چند مورد  $Pm, Ce, Tb$  و  $Pr$ ، اثرات مهمی بر خواص حالات ابررسانایی و بهنجار و از جمله دمای گذار این ترکیبات ندارد [۲]. از این چهار عنصر، تنها Pr ساختار با پایه ۱۲۳ را تشکیل می‌دهد (Pm به خاطر داشتن هسته ناپایدار و Ce و Tb به خاطر داشتن ظرفیت  $+4$ ، ساختار ۱۲۳ پایدار را تشکیل نمی‌دهند). Pr در ترکیبات

پس از کشف پدیده ابررسانایی دمای بالا، تحقیقات بسیاری روی ساختار و بررسی خواص مختلف این مواد انجام شده است [۱]. هدف این گونه تحقیقات علاوه بر شناخت خواص ناشناخته این مواد و تایید نتایج به دست آمده، بررسی روش‌های ساخت نمونه‌هایی با کیفیت بالا برای اعتماد بیشتر به نتایج آزمایش‌ها می‌باشد. اگرچه نمونه‌هایی با کیفیت بالا و تک فاز از ترکیبات مورد نظر برای بررسی دقیق تجربی این مواد لازم است، بهینه کردن پارامترهایی مانند دمای گذار ( $T_c$ )، جریان بحرانی ( $J_c$ )، حد بالای میدان بحرانی ( $H_{c2}$ ) و خواص مکانیکی کپه‌ای این مواد، از جنبه کاربرد این مواد در صنعت نیز با اهمیت می‌باشد.

$R_H$  و  $Mg$  و  $Ca$  باشد [۱۱]. نتایج آزمایشها نشان می‌دهد که  $R_H$  حتی در محدوده  $T > 300 K$  نیز به طور یکنواخت با افزایش دما کاهش می‌یابد. اگرچه این رفتار در بیشتر خانواده‌های ابررساناهای دمای بالا دیده شده است، مهم‌ترین وابستگی در خانواده  $R-123$  رخ می‌دهد. رفتار  $1/T^2$  برای  $\tan\theta_H$  (زاویه  $\theta_H$  حال است) و رفتار  $1/T^3$  در رسانندگی حال از دیگر ناهنجاریهای مشاهده شده در این ترکیبات است [۱۲-۱۰]. اثر جالب دیگر در حالت هنجار این ترکیبات، مشاهده همبستگی کاهش شیب چگالی حال  $n_H$  برحسب  $T$  ( $dn_H/dT$ )، با کاهش  $T_c$  می‌باشد که با جایگزینی یونهای مغناطیسی  $Co$ ،  $Ni$  و  $Fe$  و یا غیر مغناطیسی  $Zn$  به جای  $Cu$  در سیستم  $Y-123$  نتیجه شده است [۱۳]. مشاهده همین رفتار در سیستم  $La_{1-x}Sr_xCuO_4$  با آلایش  $Ni$  [۱۳] و در سیستم  $Tl_xBa_{2-x}CaCu_2O_{8-\delta}$  با تغییر مقدار اکسیژن [۱۴]، شهودی از جهانی بودن این رفتار در این ترکیبات دارد. حساسیت وابستگی ناهنجاری دمایی به بی‌نظمی داخل صفحه‌ای، از معماهای دیگر اثر حال در این ترکیبات می‌باشد. از نتایج مهمی که با مطالعه فراگیر بر روی  $80$  ترکیب آلایش شده  $Ca_xY_{1-x}Ba_2Cu_2O_{7-\delta}$  و  $Y(La_xBa_{1-x})Cu_2O_{7-\delta}$  توسط توکورا، تورنس، هوانگ و نازان (TTHN) [۱۵] پیشنهاد شده است، اهمیت قاطع غلظت حفره‌های متحرک صفحات  $CuO_2$  در تعیین دمای گذار  $T_c$  می‌باشد، در حالی که حفره‌های جایگزیده در صفحات  $BaO$  نقشی در  $T_c$  ندارند. وابستگی ناهنجار  $T^2$  برای  $\cot\theta_H$  و وابستگی خطی مقاومت طولی به  $T$  در این ترکیبات، به صورت شهودی برای وجود دو آهنگ واهلشی مختلف برای توجیه خواص تراپردی مغناطیسی در حالت هنجار ارائه شده است. پیشنهاد وجود شبه ذرات هولونها و اسپینونها توسط آندرسن [۱۶]، تقارن همیوگ بارها [۱۷]، پراکندگی مورب [۱۸]، و وابستگی دمایی مختلف آهنگ واهلشی روی مناطق مختلف سطح فرمی [۱۹]، برای توجیه وجود دو آهنگ واهلش ارائه شده است. با وجود این توضیحات، استفاده از نظریه مایع فرمی یا مدل‌هایی بر اساس برهمکنش قوی برای توضیح ماهیت ناهنجار اثر حال و دیگر خواص غیر عادی این ترکیبات به صورت یک موضوع مورد

مختلف، ظرفیتهای مختلفی را نشان می‌دهد. به طور مثال در ترکیبات  $PrO_2$ ،  $Pr_2O_3$  و  $Pr_6O_{11}$  به ترتیب دارای ظرفیت  $+3$ ،  $+4$  و  $+3/7$  می‌باشد. نتایج گزارشهای ساخت، نشان می‌دهد که وجود مقدار کمی  $Pr$  در حالت سه ظرفیتی، باعث تشکیل فاز پایدار  $Pr-123$  می‌شود. نتایج بررسی آزمایشها نشان می‌دهد که این ترکیب عایق می‌باشد [۳]. با توجه به وجود این استثناء در مورد خانواده با پایه  $123$ ، به نظر می‌رسد کشف دلایل اضمحلال ابررسانایی در ترکیب  $Pr-123$ ، می‌تواند راهگشای خوبی برای فهم پدیده ابررسانایی دمای بالا در ترکیبات  $123$  و یا حتی در بقیه خانواده‌های ابررساناهای دمای بالا باشد. مطالعات بسیاری در زمینه آلایش عنصر  $Pr$  به جای  $Y$  و یا  $Gd$  در ترکیبات  $Y-123$  و  $Gd-123$  انجام شده است [۴]. نتایج نشان می‌دهد که افزایش مقدار  $Pr$  در ترکیبات  $R_{1-x}Pr_x-123$  (عنصر نادر زمین و  $0 < x < 1$ )، دمای گذار را کاهش داده و در مقدار حدی  $x \approx 0.45$ ، سبب اضمحلال ابررسانش در این سیستم می‌شود [۵]. مطالعات وسیع در این زمینه، مکانیزمهای مختلفی را برای اضمحلال ابررسانایی با افزایش  $Pr$  در این ترکیبات ارائه کرده است. سازوکارهای اصلی پیشنهاد شده در این فرآیند عبارتند از: شکست جفت‌های ابررسانایی توسط گشتاور مغناطیسی  $Pr$  [۶]، پر شدن حفره‌ها [۷] و یا جایگزیده شدن حفره‌ها [۸] در صفحات رسانای  $CuO_2$ . بنابراین جایگزینی  $Gd$  یا  $Y$  با  $Pr$  و بررسی خواص ابررسانایی و از جمله تغییرات کمیتهای مختلف با تغییر مقدار  $Pr$ ، می‌تواند حاوی اطلاعات مفیدی در مورد پدیده ابررسانایی باشد. نقش  $Pr$  در ابررساناهای دمای بالا به تازگی در مرجع [۹] مرور شده است.

اثر حال یکی از مفیدترین آزمایشهای تراپردی برای به دست آوردن اطلاعات الکترونی از جمله مقدار و نوع چگالی حاملهای رسانش می‌باشد. آزمایشهای اثر حال در ترکیبات ابررساناهای دمای بالا یک رفتار ناهنجار دمایی را نشان می‌دهد [۱۰]. این رفتار ناهنجار باعث شده است که این موضوع از بحث‌انگیزترین موضوعها و از دشوارترین آنها برای درک این ترکیبات باشد. از مشاهدات آزمایشهای مختلف نتیجه شده است که وابستگی ضریب حال ( $R_H$ ) در حالت بهنجار که به صورت  $1/T$  با دما تغییر می‌کند، در تناقض آشکاری با همین رفتار در فلزات معمولی با سطح فرمی پیچیده مانند  $Ag$ ،  $Cu$ ،

1. charge conjugation symetry

2. skew scattering

نمونه‌های دانه‌ای، میدانهای مغناطیسی کوچک در حد  $10\text{Oe}$  نیز باعث ایجاد این پهن شدگی می‌شوند [۳۰]. مشاهده پهن شدگی غیر معمول حتی برای میدانهای مغناطیسی موازی با جریان انتقالی در نمونه، سبب ارائه تفسیرهای مختلفی برای منشأ این رفتار شده است. از جمله این نظریه‌ها، خزش شار فعال شده گرمایی<sup>۱</sup> [۳۱]، ذوب شدگی خطوط شار<sup>۲</sup> [۳۲]، قطع شدگی شار<sup>۳</sup>، خمیدگی خطوط شار<sup>۴</sup> [۳۳]، گیراندازی شار<sup>۵</sup> [۳۴ و ۳۵] و لغزش فاز فعال شده گرمایی<sup>۶</sup> [۳۵] می‌باشند. در این پژوهش سعی شده است تا با اندازه‌گیریهای مقاومت مغناطیسی و اثر هال، تأثیر آرایش Pr بر ترکیبات Gd-۱۲۳ و تغییر خواص حالت بهنجار و ابررسانایی آن بررسی شود. این پژوهش تجربی در ادامه و تکمیل پژوهشهای بررسی خواص الکترونی سیستم ابررسانای دمای بالا Y-۱۲۳ است که قبلاً ارائه گردیده است [۳۶].

## ۲. آزمایش

نمونه‌های سرامیک  $\text{Gd}_{1-x}\text{Pr}_x\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  با استوکیومتری ۰/۱۵ و ۰/۱،  $x=0/05$  با روش استاندارد واکنش حالت جامد ساخته شدند. پودرهای  $\text{BaCO}_3$ ،  $\text{Gd}_2\text{O}_3$ ،  $\text{CuO}$ ،  $\text{Pr}_2\text{O}_3$  با خلوص ۹۹/۹٪ با استفاده از ترازوی الکتریکی با دقت  $10^{-6}$  گرم توزین شدند. با توجه به جاذب رطوبت بودن  $\text{Pr}_2\text{O}_3$ ، قبل از توزین آن را کاملاً خشک می‌کنیم. سپس مخلوط همگنی از پودرها، به منظور افزایش تماس بین پودرها و بهتر انجام شدن واکنشهای حالت جامد تهیه می‌شود. به منظور خارج کردن اجزای غیرفلزی مانند  $\text{CO}_2$  و بخار آب اضافی و فراهم شدن شرایط برای تشکیل سلول واحد ۱۲۳، فرایند تکلیس با دمای  $840^\circ\text{C}$  انجام شده است. در این مرحله، از کوره مکعبی کالیبره شده استفاده شده است. آهنگ افزایش دما تا حدود  $500^\circ\text{C}$  اهمیتی ندارد اما در فاصله دمایی

بحث و با اهمیت باقی مانده است.

پدیده معما گونه دیگر، تغییرات علامت ضریب هال با تغییر دما، اعمال میدان و آرایش در این ترکیبات می‌باشد که مورد توجه فراوانی قرار گرفته است. اگرچه تلاشهایی در توجیه این پدیده انجام شده است، از جمله بررسی حرکت گردابه‌ها [۲۰]، در نظر گرفتن نیروی وشکسانی<sup>۱</sup> وارد بر گردابه‌ها در نظریه کلاسیکی باردین-استفن [۲۱] و نوزیرس-وینن [۲۲]، ارائه مدل ترموالکتریکی [۲۳]، استفاده از نگرشی بر پایه معادله وابسته به زمان گینزبرگ-لانداو [۲۴]، وجود دو نوع حاملهای بار [۲۵] و برگشت جریان ناشی از میخکوبی [۲۶]، ولی تاکنون توجیه کاملی برای این پدیده ارائه نشده است.

مشاهده پدیده‌های مختلف در حضور میدان مغناطیسی مانند پهن شدگی گذار دمایی مقاومت ویژه، خطوط برگشت پذیری، کاهش سریع چگالی جریان بحرانی با افزایش دما، ظهور اثرات کوانتومی در نزدیکی دمای صفر مطلق و غیره، سبب افزایش اهمیت مطالعات مغناطیسی در ترکیبات ابررساناهای دمای بالا شده است [۱]. همچنین به منظور افزایش وسعت محدوده کاربردی این ترکیبات، بررسی  $J_c$  و میدان مغناطیسی بحرانی ضروری به نظر می‌رسد. حرکت خزشی گردابه‌ها در اثر افت و خیز گرمایی در حالت  $J_c < J$ ، سبب ظهور مقاومت الکتریکی در حالت مخلوط می‌شود که به صورت  $\rho = \rho_n e^{-U/kT}$  نشان داده می‌شود [۲۶]. میخکوبی گردابه‌ها توسط ناکاملیهای موجود در نمونه، روشی موثر برای جلوگیری از این اتلاف انرژی است. ناکاملیها در این ترکیبات دارای انواع مختلفی هستند که می‌توان به دررفتگیها، ترکها، مرزهای دوقلویی و آرایش عناصر مختلف در هنگام ساخت نمونه، و یا اعمال فشار و تابش ذرات پرانرژی [۲۷] پس از ساخت نمونه، اشاره کرد. با ایجاد این گونه ناکاملیها در نمونه، می‌توان  $J_c$  را تا مقدار بهینه افزایش داد که از جنبه کاربردی در این ترکیبات بسیار مهم می‌باشد.

پهن شدگی گذار مقاومت با عبور جریان و اعمال میدان مغناطیسی خارجی، از دیگر خصوصیات مغناطیسی مهم این ترکیبات است که به طور وسیعی مورد مطالعه قرار گرفته است. اگر چه این پهن شدگی در نمونه‌های تک بلور [۲۸] و لایه‌های نازک جهت‌دار [۲۹] در میدانهای بالا اتفاق می‌افتد، در

2. thermally activated flux creep
3. flux line melting
4. flux cutting
5. curved flux line
6. flux entanglement
7. thermally activated phase slip

1. dissipative

مکان نمونه ( $T'$ ) به صورت  $T=1/116T'-81$  رابطه دارد. این روش ساخت، مشابه با روش به کار گرفته شده در مرجع [۳۷] است.

جهت تعیین کیفیت نمونه‌های ساخته شده، آزمایش‌های روبش میکروسکوپ الکترونی<sup>۱</sup> و پراش پرتو ایکس<sup>۲</sup> انجام شده است. طیف پراش پرتو ایکس با تابش  $K_{\alpha}$  از Co، با طول موج  $1/79.03$  آنگستروم در محدوده  $80^{\circ}$  تا  $10=2\theta$  گرفته شد.

اندازه‌گیری مقاومت ویژه نمونه‌ها با روش ۴ میلی‌ای انجام شده است. نمونه را پس از چسباندن با چسب نقره در جای مخصوص اندازه‌گیری در داخل محفظه خنک شونده یخچال قرار می‌دهیم. برای کاهش دمای این محفظه، از یک یخچال مدار بسته گاز هلیوم استفاده شده است. این یخچال قادر است دمای محفظه نمونه را تا  $10K$  کاهش دهد. نمونه با استفاده از چسب سیلیکان چسبانده می‌شود و اتصالات آن به منبع جریان و تقویت کننده قفلی متصل می‌شود. برای جلوگیری از هرگونه انتقال گرما از محیط آزمایشگاه به نمونه، محفظه نمونه با استفاده از دو پمپ روتاری و دیفیوژن تا فشار تقریبی  $5 \times 10^{-6}$  torr تخلیه می‌شود. کنترل و تعیین دمای نمونه با استفاده از یک کنترل کننده  $330$  - Lake Shore، با مقاومت Pt و دیود GaAs انجام شده است و دقت کنترل کننده  $0.1K$  می‌باشد. جریان  $10mA$  از یک منبع جریان متناوب ac با فرکانس  $23Hz$  که در آزمایشگاه طراحی و ساخته شده، گرفته شده است. جریان گرفته شده با دقت  $0.1$  میلی‌آمپر اندازه‌گیری و کنترل می‌شود. ولتاژهای طولی و عرضی به وسیله یک تقویت کننده قفلی و یک مولتی‌متر حساس با دقت  $10^{-7}$  ولت اندازه‌گیری شده است. داده‌های اندازه‌گیری شده از طریق یک کارت داده خوان اینترفیس<sup>۳</sup> که در آزمایشگاه طراحی و ساخته شده است، به صورت فایل، ذخیره گردیده و به طور همزمان روی صفحه کامپیوتر ترسیم می‌شود.

به منظور انجام اندازه‌گیری‌های مقاومت مغناطیسی و اثر هال، یک میدان مغناطیسی ثابت در جهت عمود بر صفحه عبور جریان اعمال شده است. برای تولید این میدان مغناطیسی از یک

$500$  تا  $840^{\circ}C$ ، به منظور جلوگیری از ذوب اجزای مخلوط و ایجاد زمان لازم برای نفوذ پودرها در یکدیگر، افزایش دما کندتر و به صورت پله‌ای با آهنگ کوچکتر از  $1^{\circ}C/min$  انجام می‌شود. سپس مخلوط به مدت  $24$  ساعت در دمای  $840^{\circ}C$  نگه داشته شده است. برای اطمینان از کامل بودن مرحله تکلیس، این مرحله دو مرتبه انجام شده و قبل از این مرحله پودرها به خوبی آسیاب شده‌اند.

پس از انجام مراحل تکلیس و سایش مجدد، مخلوط را تحت فشار مکانیکی به شکل قرص درآورده و برای اندازه‌گیری‌های الکتریکی آماده می‌گردد. برای قرص کردن پودرها تحت فشار  $10$  تن، از قالب استوانه‌ای با جنس استیل و با تحمل فشار  $15$  تن، استفاده شده است. فشار  $10$  تن در سه مرحله تقریباً مساوی و کاهش فشار نیز به کندی و با آهنگ ثابت انجام شده است. اندازه قطر و ضخامت قرصها به ترتیب در حدود  $1/3$  سانتیمتر و  $1$  میلیمتر می‌باشد.

برای انجام فرایند حرارتی کلوخه‌سازی، قرصها در کوره استوانه‌ای در دمای  $930^{\circ}C$  کلوخه سازی می‌شوند. برای اطمینان از تشکیل کامل فاز مورد نظر و جلوگیری از تشکیل فازهای ناخالصی و کمبود اکسیژن در ترکیب، این مرحله در اکسیژن و به دور از بخار آب و دی اکسید کربن انجام می‌شود. آهنگ افزایش و کاهش دما در این مرحله حرارتی در کیفیت نمونه‌های ساخته شده بسیار مهم است. تغییرات دمایی استفاده شده در این مرحله از ساخت به صورت زیر بوده است: از دمای اتاق تا دمای  $500^{\circ}C$  با آهنگ  $8^{\circ}C/min$ ، از دمای  $500$  تا  $580^{\circ}C$  با آهنگ  $5^{\circ}C/min$ ، از دمای  $580$  تا  $810^{\circ}C$  با آهنگ  $3^{\circ}C/min$ ، از  $810$  تا  $920^{\circ}C$  با آهنگ  $2^{\circ}C/min$  که با افزایش هر  $8^{\circ}C$ ،  $16$  دقیقه در دمای ثابت نگهداشته می‌شود و بالاخره از دمای  $920$  تا  $950^{\circ}C$  با آهنگ  $1^{\circ}C/min$  که با افزایش هر  $2^{\circ}C$  به مدت  $18$  دقیقه در دمای ثابت نگهداشته می‌شود. در آخر، نمونه‌ها به مدت  $38$  ساعت در دمای ثابت  $950^{\circ}C$  و در معرض شارش اکسیژن قرار داشتند. برای کاهش دمای کوره از  $950^{\circ}C$  به  $650^{\circ}C$  با آهنگ  $1^{\circ}C/min$  و به مدت  $1/5$  ساعت در دمای ثابت  $650^{\circ}C$ ، از دمای  $650$  تا  $550^{\circ}C$  با آهنگ ثابت  $1^{\circ}C/min$  و به مدت  $1$  ساعت در دمای ثابت  $550^{\circ}C$  و از دمای  $550$  تا  $100^{\circ}C$  با آهنگ  $1^{\circ}C/min$  انجام شد. دماهای ذکر شده دمای تنظیم کنترل کننده دمای کوره ( $T$ ) می‌باشد که با دمای واقعی

1. scanning electron microscopy (SEM)
2. X-ray diffraction (XRD)
3. interface

بالا، بر روی نمونه‌های لایه نازک و میدانهای خیلی بالا (در حدود چند تسلا) انجام شده است [۳۹]. مقاومت مغناطیسی نمونه‌ها با اندازه‌گیری ولتاژ طولی در میدانهای مغناطیسی ثابت ۰/۲، ۰/۵، ۱، ۲، ۵ و ۱۰ کیلو اورستد عمود بر سطح نمونه و اعمال جریان ۱۰mA در جهت طول نمونه تعیین شده است. با توجه به میدانهای اعمال شده ( $H < 1T$ )، لزومی به تصحیح دمایی اثر مقاومت مغناطیسی سنسور کنترل کننده دما Pt در نمودارهای مقاومت مغناطیسی نمی‌باشد.

### ۳. نتایج و بحث

به منظور تعیین کیفیت نمونه‌ها، بررسی ریزساختار، همگنی، شکل و اندازه دانه‌ها و تغییرات آنها با مقدار ناخالصی Pr در نمونه، با استفاده از آزمایشهای SEM با بزرگنمایی  $\times 4000$  و  $\times 8000$  انجام شده است. برای نمونه، در شکل ۱ نتایج این آزمایش برای نمونه Gd<sub>0.90</sub>Pr<sub>0.10</sub>-123 نشان داده شده است. ساختار نمونه‌ها متخلخل و دانه‌ای به دست آمده است. دانه‌ها به صورت یکنواخت و همگن در نمونه توزیع شده‌اند و به صورت مکعب مستطیل و سوزنی شکل می‌باشند. اندازه دانه‌ها در نمونه‌های Gd<sub>0.85</sub>Pr<sub>0.15</sub>-123 و Gd<sub>0.95</sub>Pr<sub>0.05</sub>-123 در حدود ۲-۴ μm و در نمونه Gd<sub>0.90</sub>Pr<sub>0.10</sub>-123 در حدود ۳-۶ μm می‌باشد.



(الف)



(ب)

شکل ۱. نتایج آزمایش SEM نمونه Gd<sub>0.90</sub>Pr<sub>0.10</sub>-123 با بزرگنمایی  $\times 4000$  (الف) و  $\times 8000$  (ب).

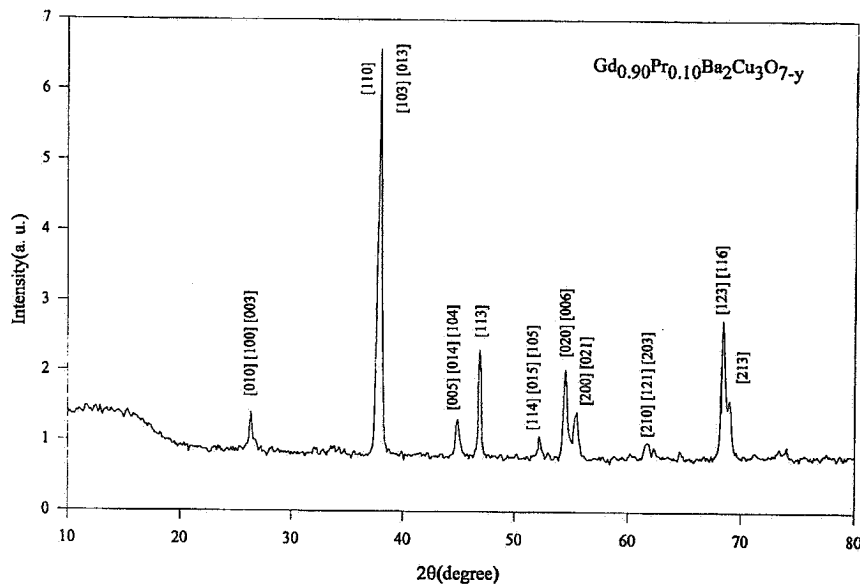
آهنربای الکتریکی با حداکثر شدت ۲/۳ تسلا استفاده شده است. اندازه‌گیریهای مقاومت مغناطیسی در میدانهای ۰/۲، ۰/۵، ۱، ۲، ۵ و ۱۰ کیلو اورستد و اندازه‌گیری اثر هال در میدان ۱ تسلا و در دو جهت معکوس انجام شده است.

برای به دست آوردن ضریب هال نمونه‌ها ( $R_H$ )، ولتاژ عرضی آنها در میدان مغناطیسی ثابت ۱ تسلا در جهت عمود بر صفحه عبور جریان و با تغییر دما اندازه‌گیری شده است. ولتاژ عرضی اندازه‌گیری شده شامل قسمت ولتاژ هال، ولتاژ آفست<sup>۱</sup> و نوفه‌های خارجی می‌باشد. ولتاژ آفست، یک ولتاژ طولی است که از روبروی هم نبودن اتصالهای عرضی به وجود می‌آید. ولتاژ نوفه‌ها نیز ناشی از نوفه‌های گرمایی، منبع جریان و محیط می‌باشد. برای به دست آوردن ولتاژ هال، لازم است که اثرات ولتاژ آفست و نوفه‌ها را از مقدار اندازه‌گیری شده حذف کرد.

با اندازه‌گیری ولتاژ عرضی در دو میدان مساوی و در جهت معکوس می‌توان ولتاژ آفست را حذف کرده و ولتاژ هال (با وجود نوفه‌ها) را از رابطه  $V_H = (V_{(B)} - V_{(-B)}) / 2$  به دست آورد [۳۸]. برای حذف نوفه‌ها، منحنی ولتاژ عرضی را در دو ناحیه دماهای بالا و پایین ۱۰۰K با چند جمله‌ایهای مناسب، برازش داده و نتایج این برازش در میدانهای معکوس، از یکدیگر کم شده است. با این روش مقداری از نوفه‌ها حذف می‌شوند، اگرچه در نتایج نهایی هنوز مقداری نوفه دیده می‌شود، می‌توان در تفسیر نتایج از این نوفه‌ها چشم پوشی کرد و با توجه به اهمیت رفتار دمایی آنها، شکل کلی را در نظر گرفت.

ضریب هال  $R_H$  پس از حذف ولتاژ آفست و نوفه‌ها از رابطه  $R_H = V_H c / IB$  محاسبه می‌شود. در این رابطه، c ضخامت نمونه برحسب متر، I جریان گذرنده از نمونه برحسب آمپر و B میدان اعمالی برحسب تسلا و  $R_H$  برحسب واحد مترمکعب بر کولن ( $m^3/C$ ) به دست می‌آید. رابطه بالا نشان می‌دهد که برای تسهیل در اندازه‌گیری بهینه ولتاژ هال (وجود نوفه‌های کوچک در ولتاژ خروجی)، لازم است c تا حد ممکن کوچک و میدان مغناطیسی اعمالی و جریان تا حد امکان بزرگ انتخاب شوند. با توجه به شرایط آزمایشگاهی و امکانات موجود، مقادیر  $c = 0.1 \text{ cm}$  و  $I = 10 \text{ mA}$ ،  $B = 1T$  انتخاب شده‌اند. اغلب بررسیهای اثر هال انجام شده در ترکیبات ابررسانای دمای

1. offset



شکل ۲. طیف پراش پرتو ایکس نمونه  $Gd_{0.90}Pr_{0.10}Ba_2Cu_3O_{7-y}$ .

جدول ۱. مقادیر پارامترهای شبکه و حجم سلول واحد نمونه‌های  $Gd_{1-x}Pr_x-123$  با استفاده از آنالیز ریتولد.

$V(\text{Å}^3)$	$c(\text{Å})$	$b(\text{Å})$	$a(\text{Å})$	$x$
۱۷۵/۰۲	۱۱/۶۸	۳/۸۹	۳/۸۴	۰/۰۵
۱۷۵/۵۲	۱۱/۶۹	۳/۹۰	۳/۸۴	۰/۱۰
۱۷۵/۶۲	۱۱/۶۸	۳/۹۰	۳/۸۴	۰/۱۵

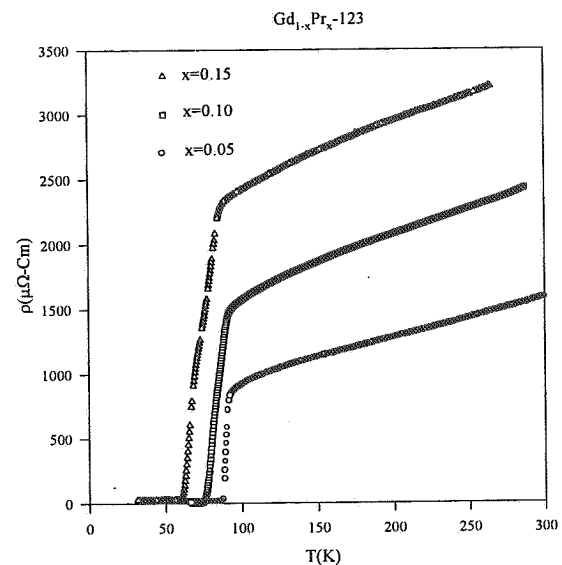
نتایج اندازه‌گیری مقاومت ویژه در شکل ۳ نشان داده شده است. همان‌طور که از شکل دیده می‌شود هر سه نمونه  $Gd_{1-x}Pr_x-123$  ( $x=0/05, 0/1$  و  $0/15$ ) دارای گذار ابررسانایی می‌باشند. تغییرات مقاومت با دما در حالت بهنجار (بالای دمای گذار) یک رفتار خطی با دما با شیب مثبت و حالت فلزی را نشان می‌دهد، اما در هنگام گذار، مقاومت به‌طور سریع از مقادیر بالای ۱۰۰۰ میکرو-اوم-سانتیمتر به مقادیر نزدیک صفر کاهش می‌یابد. مشاهده می‌شود که دمای گذار نمونه‌ها با افزایش مقدار ناخالصی Pr در ترکیب، کاهش و مقاومت حالت بهنجار آن افزایش می‌یابد که در همخوانی با کارهای انجام شده است [۴۰]. گزارش‌های ارائه شده نشان می‌دهد که افزایش Pr از مقدار  $0/15$  نیز دمای گذار را کاهش داده و در مقدار آلایش بحرانی  $x_c=0/45$  در ترکیب  $GdPr-123$  به نارسای الکتریکی تبدیل می‌شود [۵]. این گذار عایق-ابررسانا که برای فهمیدن سازوکار ابررسانایی دمای بالا در این ترکیبات نقش مهمی را

برای تعیین ساختار فاز تشکیل شده، اطلاع از وجود فازهای ناخالصی و خواص ساختاری مانند اندازه پارامترهای شبکه‌ای، آزمایش‌های پراش پرتو ایکس نمونه‌ها انجام شد. برای نمونه، طیف پراش پرتو ایکس نمونه  $Gd_{0.90}Pr_{0.10}-123$  در شکل ۲ نشان داده شده است. با توجه به اندیسه‌های میلر (hkl) مربوط به قله‌ها، مشاهده می‌شود که فاز  $123$  تشکیل شده و فاز غالب است. قله اصلی این فاز در این طول موج در نزدیکی زاویه  $2\theta=38^\circ$  دیده می‌شود. بررسی این طیف توسط روش ریتولد نشان می‌دهد که فاز غالب نمونه، فاز  $123$  با ساختار ارتورمبیک است و فازهای ناخالصی در این نمونه‌ها دیده نمی‌شود (قله‌های مربوط به فازهای ناخالصی در حد زمینه طیف است). پارامترهای  $a, b$  و  $c$  و حجم سلول واحد نمونه‌ها در جدول ۱ نشان داده شده است. از این جدول دیده می‌شود که حجم سلول با افزایش Pr افزایش می‌یابد که با توجه به بزرگتر بودن شعاع یونی Pr ( $R(Pr^{3+})=1/013 \text{ Å}$ ) در مقایسه با شعاع یونی  $Gd$  ( $R(Gd^{3+})=0/938 \text{ Å}$ )، دور از انتظار نیست. مقاومت ویژه نمونه‌های ساخته شده با اندازه‌گیری ولتاژ طولی آنها و استفاده از رابطه  $\rho(T) = V_I(T)bc/II$  به صورت تابعی از دما در محدوده دمای اتاق تا  $50K$  تعیین شده است. در این رابطه  $I, b$  و  $c$  به ترتیب ابعاد طول، عرض و ضخامت و  $I$  جریان گذرنده از نمونه است.

می‌یابد.  $T_c$  بالاترین دمای با مقاومت کمینه و  $\Delta T_c = T_c^{90\%} - T_c^{10\%}$  پهنای گذار ابررسانایی تعریف می‌شود. مقدار مقاومت در حالت بهنجار به صورت خطی با دما کاهش می‌یابد که نشان دهنده یک رفتار فلزی در این ترکیبات است. ضرایب A و B از برازش مقاومت ویژه در حالت بهنجار با معادله خطی  $\rho(T) = AT + B$  تعیین و در جدول ۲ آورده شده است. این جدول، کاهش  $T_c$  با افزایش x را نشان می‌دهد، اگرچه تغییرات  $T_c^{\text{onset}}$  نسبت به دیگر مقادیر  $T_c$  کوچکتر است. مقدار B برونیابی رفتار خطی مقاومت ویژه در دمای صفر را نشان می‌دهد. افزایش مقدار B با x نشان دهنده افزایش پراکندگی الکترونی‌های رسانش با مقدار آرایش است.

نتایج اندازه‌گیری ضریب هال نمونه‌های چندبلوری ۱۲۳-GdPr در شکل ۴ نشان داده شده است. نتایج اثر هال نشان می‌دهد که ضریب هال  $R_H$  بر خلاف دیگر خواص تراپدی (با ناهمسانگردی بالا در این ترکیبات) در نمونه‌های تک بلور با کیفیت بالا و چند بلور حدود ۱۰٪ اختلاف دارد. مقدار مثبت  $R_H$  نشان از وجود حامل‌های جریان از نوع حفره دارد که در ترکیبات دیگر این دسته از مواد نیز دیده شده است [۱۰]. اندازه  $R_H$  حدود یک مرتبه بزرگی از مقدار آن در ترکیبات دیگر این خانواده بزرگتر است، اما در محدوده بعضی اندازه‌گیریها در ترکیبات ابررساناهای دمای بالا می‌باشد [۴۶].

رفتار ناهنجار دمایی ضریب هال در حالت بهنجار در تناقض آشکار با رفتار  $R_H$  در فلزات ساده با سطح فرمی پیچیده مانند Cu، Ag، W، Mg و Ca است. وابستگی دمایی  $R_H$  این فلزات در دماهای پایین مهم، اما در بالای دمای ویژه  $T_H = s\theta_D$  ( $s = 0.7 - 0.8$ )  $\theta_D$  دمای دبی می‌باشد) خیلی ضعیف می‌شود. از شکل ۴، وابستگی دمایی  $R_H$  در حالت هنجار نمونه ۱۲۳-Gd<sub>0.90</sub>Pr<sub>0.10</sub> و وابستگی ضعیفتر آن در نمونه‌های دیگر مشاهده می‌شود که با افزایش دما کاهش می‌یابد. این رفتار که در بیشتر ترکیبات ابررساناهای دمای بالا دیده شده است، به صورت  $1/T$  است [۱۰]. رفتار ناهنجار  $1/T$  باعث تلاش وسیعی برای ارائه نظریه‌ای به منظور توجیه این رفتار شده است. در نظریه پیشنهادی آندرسن، از تمایز آهنگهای واهلشی ذرات متحرک در جهت موازی و عمود بر سطح فرمی استفاده شده است. کامیورا [۴۷]، سطح فرمی پیچیده ترکیب  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  را سبب ناهنجاری دمایی و غلظت ناخالصی



شکل ۳. مقاومت ویژه نمونه‌های ۱۲۳-Gd<sub>1-x</sub>Pr<sub>x</sub> برحسب دما.

دارا می‌باشد مورد توجه بسیاری قرار گرفته است [۴۱]. از سازوکارهای ارائه شده برای حل آن، پر شدن حفره‌های صفحه  $\text{CuO}_2$  با الکترونهای اضافی Pr براساس بزرگتر بودن ظرفیت Pr<sup>3+</sup> و یا جایگزین شدن آنها با هیبریداسیون قوی  $\text{Pr}^{4+}$  با  $\text{O}2p$  است که منجر به کاهش  $T_c$  و از بین رفتن ابررسانایی می‌شود. سازوکار ممکن دیگر، شکست جفتها به وسیله گشتاورهای موضعی می‌باشد که با مشاهده پیروی رفتار  $T_c$  برحسب x در سیستم ۱۲۳-Y، از مدل شکست جفت ابریکاسوف-گورکف ارائه شده است [۴۲ و ۶]. اگرچه آزمایشات دقیقتر این مدل را تایید نمی‌کند [۴۳]. هر چند تلاشهای دیگری مانند استفاده از مدل پرکلاسیون [۴۴] یا نتایج مدل اسپین-پلارن [۷] ترکیبی با مفهوم پر شدن حفره‌ها انجام شده است، تاکنون دلیل واضحی برای اضمحلال ابررسانش در این ترکیبات وجود ندارد. ارائه گزارش ساخت ۱۲۳-Pr ابررسانا در سالهای اخیر [۴۵]، پیچیدگی مسئله را افزایش داده و آن را به یک مسئله تحقیقاتی مهم در این زمینه تبدیل کرده است.

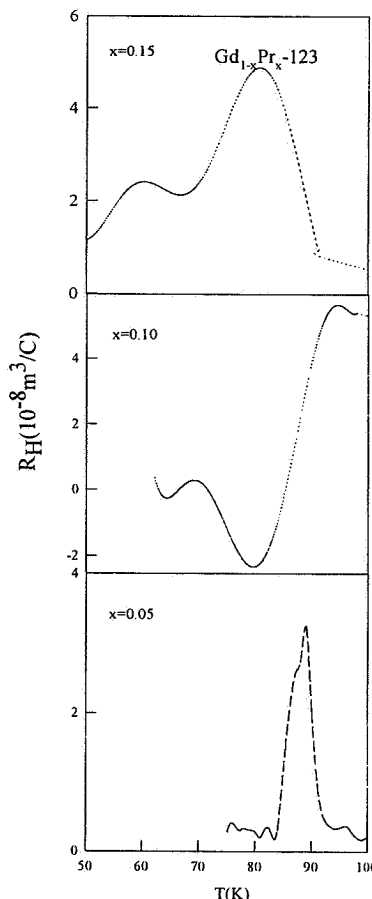
از شکل ۳ همچنین دیده می‌شود که پهنای گذار ابررسانایی ( $\Delta T_c$ ) نیز با افزایش ناخالصی Pr در ترکیب افزایش می‌یابد. جدول ۲ مقادیر  $T_c$ ،  $T_c^{\text{onset}}$ ،  $T_c^{10\%}$ ،  $T_c^{90\%}$  و  $\Delta T_c$  را نشان می‌دهد.  $T_c^{\text{onset}}$  دمای آغاز گذار ابررسانایی،  $T_c^{10\%}$  و  $T_c^{90\%}$  دماهایی است که در آن مقدار مقاومت به اندازه ۹۰٪ و ۱۰٪ (نسبتاً) و نصف مقدار مقاومت در  $T_c^{\text{onset}}$  کاهش

جدول ۲. مقادیر  $T_c$ ,  $\Delta T_c$  و ضرایب A و B در ترکیب  $Gd_{1-x}Pr_x-123$

B	A	$\Delta T_c$	$T_c^\circ$	$T_c^{\%10}$	$T_c$	$T_c^{\%10}$	$T_{c\text{onset}}$	x
۶۳۰/۲۶	۳/۱۷	۳/۴	۸۷/۲	۸۸/۳	۹۰/۱	۹۱/۷	۹۳/۱	۰/۰۵
۱۱۱۹/۴	۴/۳۱	۱۱/۷	۷۴/۳	۷۷/۸	۸۲/۷	۸۹/۵	۹۲/۱	۰/۱۰
۱۹۸۶/۴۲	۴/۸۲	۱۹/۹	۵۹/۶	۶۳/۴	۷۱/۳	۸۳/۳	۸۸/۱	۰/۱۵

$1/\tau(\vec{k})$  مستقل از T باشد،  $R_H$  مستقل از دما خواهد بود. اگر میانگین زمان واهلش  $\tau(\vec{k})$  روی سطح فرمی،  $\tau_H$ ، به صورت خطی با  $1/T$  تغییر کند (همان طوری که در منحنی حالت هنجار  $\rho$  مشاهده شد)، روابط  $\tan \theta_H \sim 1/T$  و  $\sigma_H \sim 1/T^2$  مورد انتظار می‌باشد. این پیشگوییها با رفتار مشاهده شده در ابررساناهای دمای بالا در تناقض است. وابستگی قوی دمایی  $R_H$  در فلزات معمولی، اغلب به خاطر تغییر وابستگی دمایی  $1/\tau(\vec{k})$  با دما می‌باشد [۴۸]. با کاهش دما، پراکندگی فونون به سوی مناطقی از سطح فرمی با قطر<sup>۲</sup> کوچکتر حرکت کرده و بنابراین سهمشان را در جریان هال از دست می‌دهند.  $R_H$  در بعضی از فلزات غیرمغناطیسی مانند Cu، Ag، Cd، W و Mg با سطح فرمی پیچیده، با همسانگرد شدن  $\tau(\vec{k})$  در  $T > T_H (\equiv s\theta_D)$  به صورت یک ثابت رفتار می‌کند. بنابراین پراکندگی الکترون-فونون نمی‌تواند به عنوان یک مشخصه برای توجیه رفتار  $R_H$  برحسب دما باشد. چین و همکارانش [۱۱] رفتار مشاهده شده در ابررساناهای دمای بالا را در اختلاف بزرگی با وابستگی دمایی  $R_H$  به خاطر ناهمسانگردی آهنگ پراکندگی الکترون-فونون نتیجه‌گیری کرده‌اند.

در توصیفی دیگر با استفاده از مدل دونواری، اگر مسافت آزاد میانگین جریان هال الکترونها و حفره‌ها دارای وابستگی دمایی مختلفی باشد، یک وابستگی قوی دمایی برای  $R_H$  ممکن می‌شود. توجیه رفتار  $1/T^3$  برای  $\sigma_H$  با حذف جملات از مرتبه<sup>۲</sup>  $1/T^2$  در بسط  $\sigma_{Hi} = A_i/T^2 + B_i/T^3 + \dots$  ثابت و  $i=1, 2$  و با فرض  $\sigma_{Hi} \approx 1/T^2$ ، که در اینجا  $\sigma_{H1}$  و  $\sigma_{H2}$  به ترتیب جریان هال حفره‌ها و الکترونها می‌باشد، ممکن می‌شود. به نظر می‌رسد که حذف این جملات در  $Y-123$  غیر موجه [۱۱] و به علاوه، در تناقض با اندازه‌گیری اثر هال نمونه‌های  $Y-123$  آلیپه شده با Co یا کمبود اکسیژن [۱۳] و یا با اندازه‌گیری  $R_H$



شکل ۴. ضریب هال ( $R_H$ ) نمونه‌های  $Gd_{1-x}Pr_x-123$  برحسب دما.

معرفی کرده است. شکل زیگ زاگ سطح فرمی تقریباً دویعدی آنها نشان از وجود دو نوع سهم حفره-گونه و الکترون-گونه<sup>۱</sup> در اثر هال دارد. تحلیل رفتار  $1/T^3$  برای  $\sigma_H$  (با توجه به رفتار خطی دمایی مقاومت ویژه  $\rho$  در حالت بهنجار و روابط  $\tan \theta_H = (R_H B / \rho) = D / T^2$  و  $\sigma_H = \tan \theta_H / \rho$ ) با نظریه<sup>۱</sup> ترابردی معمولی ممکن نمی‌باشد [۱۱]. به طور مثال در مدل تک نواری درودی، اگر ناهمسانگردی آهنگ پراکندگی



نزدیکی  $T_c$ ، استفاده از نگرشی بر پایه معادله وابسته به زمان گینزبرگ-لانداو است [۲۴]. بررسی حرکت گردابه‌ها در حالت بزرگتر بودن نیروی لورنتس از نیروی میخکوبی [۵۱]، نشان می‌دهد که اگر مؤلفه میدان حفره‌های تجمعی در کناره‌های نمونه (ناشی از میدان القایی توسط حرکت گردابه‌ها) از میدان هال بزرگتر شود، این امر سبب منفی شدن و تغییر علامت ضریب هال خواهد شد. پیشنهادهای دیگر، وجود دو نوع حامل بار [۲۵]، نیروی وشکسانی [۵۲] و برگشت جریان ناشی از میخکوبی [۲۶] می‌باشد. مشاهده تغییر علامت هال نسبت به میدان نیز در نمونه‌های GdPr-۱۲۳، Y-۱۲۳ [۵۳] و  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$  [۵۴]، سبب ارائه مدل‌های حرکت غیرعادی گردابه تحت تأثیر نیروی مگنوسی [۵۵] یا سهم افت و خیزهای ابررسانایی در اثر پراکندگی مورب مغناطیسی [۵۶] شده است. با وجود ارائه این مدل‌ها، تاکنون نظریه یکتایی برای توجیه این اثر در ابررساناهای دمای بالا ارائه نشده است.

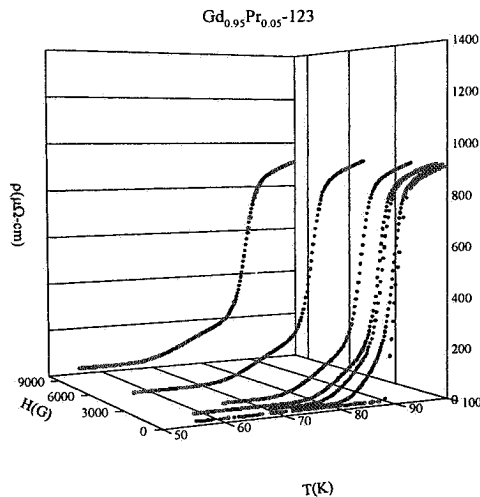
چگالی حامل‌های هال ( $n_H$ ) از رابطه  $n_H = 1/R_{HE} = IB/V_H ce$  محاسبه می‌شود که در آن  $e$  مقدار بار الکترون است. از اینجا مشاهده شده است که  $n_H$  وابستگی شدیدی به دما دارد. یک کاهش تقریباً خطی با دما و افزایش ناگهانی در نزدیکی دمای گذار ابررسانایی با مقدار چگالی حامل‌های هال در حدود  $10^{20}$  تا  $10^{21}$  بر سانتیمتر مکعب به دست می‌آید که یک تا دو مرتبه بزرگی از مقدار آن در فلزات معمولی کوچکتر است. البته باید توجه داشت که به خاطر ناهنجاری دمایی  $R_H$ ، ما مجاز به تفسیر ساده  $n_H$  به صورت مقدار غلظت حاملها نیستیم. این نتایج قابل مقایسه با نتایجی است که در ترکیبهای دیگر، اندازه گیری شده است [۱۰]. این نتایج نشان می‌دهد که شیب تغییرات  $n_H$  به دما،  $dn_H/dT$ ، در نمونه Gd<sub>۰.۸۵</sub>Pr<sub>۰.۱۵</sub>-۱۲۳ نسبت به نمونه Gd<sub>۰.۹۵</sub>Pr<sub>۰.۰۵</sub>-۱۲۳ کاهش می‌یابد که همبستگی بین کاهش  $dn_H/dT$  و  $T_c$  را نشان می‌دهد. البته  $dn_H/dT$  در نمونه Gd<sub>۰.۹۰</sub>Pr<sub>۰.۱۰</sub>-۱۲۳ به دلیل ناهنجاری و تغییرات قوی دمایی  $R_H$  کوچک می‌باشد.

نتایج اندازه‌گیری مقاومت مغناطیسی به طور نمونه برای Gd<sub>۰.۹۵</sub>Pr<sub>۰.۰۵</sub>-۱۲۳ در میدانهای مغناطیسی مختلف و برحسب دما در شکل ۵ نشان داده شده است. گذار ابررسانایی در هر سه

در فشارهای بالا [۴۹] است. اگرچه توجیه این ناهنجاری با وجود این دشواریها و حساسیت وابستگی غیرعادی  $dn_H/dT$  به آرایش Ni و Co، در نظریه معمولی بلوخ-بولتزمن رد می‌شود، وابستگی دمایی  $\rho$  و  $R_H$  رمبل هابارد با مقدار  $U$  با در نظر گرفتن مقاومت الکتریکی به صورت مجموع  $\sigma_B^- + \sigma_F^-$  ( $\sigma_F^-$  رسانندگی برانگیختگیهای بوزون (فرمیون) می‌باشند [۵۰]) تحلیل شده است.

در حالت ابررسانایی ترکیب Gd<sub>۰.۹۰</sub>Pr<sub>۰.۱۰</sub>-۱۲۳، برخلاف دو نمونه دیگر، مشاهده می‌شود که ضریب هال پس از گذشتن از یک بیشینه تیز، کاهش یافته و تغییر علامت می‌دهد. مشاهده این اثر در انواع مختلف ابررساناهای دمای بالا، دمای پایین، با انرژی میخکوبی بالا، با انرژی میخکوبی پایین، همسانگرد و ناهمسانگرد و از نوع حفره و الکترون، نشان از شهود بالایی برای حل آن با استفاده از تصویر دینامیک گردابه‌ها دارد. در بیشتر ابررساناها تغییر علامت ضریب هال به صورت یک خاصیت ذاتی دینامیک گردابه‌ها معرفی شده است [۲۰]. حرکت گردابه‌ها در حالت مخلوط، یک میدان الکتریکی با رابطه جوزفسون به صورت  $\mathbf{E} = -\mathbf{V}_L \times \mathbf{B}$  را تولید می‌کنند، که در آن  $\mathbf{V}_L$  سرعت گردابه‌ها است. علامت ولتاژ هال به چگونگی حرکت گردابه‌ها در جهت یا در خلاف جهت شارش جریان بستگی دارد. در مورد ترکیبات حفره‌ای، حرکت گردابه‌ها در خلاف جهت سرعت ابر جریان  $\mathbf{V}_s$  سبب می‌شود که  $R_H < 0$  شود و برای موارد الکترونی  $R_H > 0$  شود. بنابراین تغییر علامت هال، وجود نیروی وارد بر گردابه‌ها در خلاف جهت  $\mathbf{V}_s$  را پیشنهاد می‌کند.

تغییر علامت ضریب هال در نظریه‌های کلاسیکی باردین-استفن (BS) [۲۱] و نوزیرس-وینن (NV) [۲۲] با وجود نیروی وشکسانی<sup>۱</sup> وارد بر گردابه‌ها، پیش بینی نمی‌شود. محاسبات دیگر نشان می‌دهد که اگرچه نیروی وارد شده به گردابه‌ها، ناشی از پراکندگی شبه ذرات، در جهت خلاف  $\mathbf{V}_s$  است، مقدار آن برای تغییر علامت ضریب هال کافی نیست [۴۸]. مدل ترموالکتریکی ارائه شده در ترکیب Y-۱۲۳ [۲۳] نیز در مورد ترکیب الکترونی Nd<sub>۱-x</sub>Ce<sub>x</sub>CuO<sub>۸-δ</sub> ناقص است. نگرشی دیگر برای فهمیدن وجود تغییر علامت در رسانایی هال  $\sigma_{xy}$  در

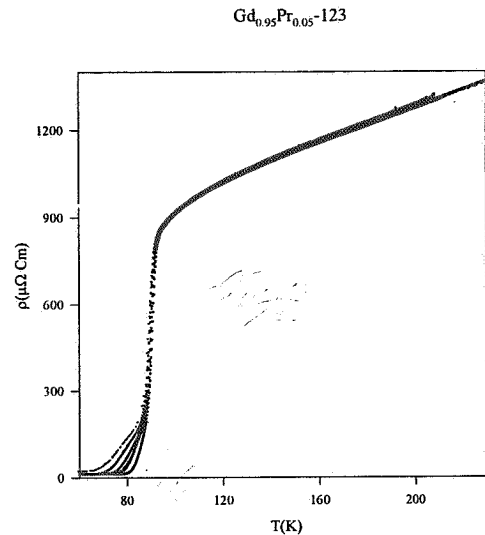


شکل ۶. رفتار پهن‌شدگی مقاومت مغناطیسی ترکیب ۱۲۳- $Gd_{0.95}Pr_{0.05}$  در نزدیکی دمای گذار.

تمامی میدانها نشان می‌دهد که در حالت  $H=0$  نشان داده شده بود.

برای تعیین رفتار  $\Delta T_c$  با میدان،  $\ln \Delta T_c$  برحسب  $\ln H$  رسم شده است (شکل ۷). این رفتار خطی، نشان می‌دهد که  $\Delta T_c$  رابطه توانی  $\Delta T_c = AH^n$  را دارد، که مقادیر  $n$  برای سه نمونه  $0.15, 0.10, 0.05$ ،  $x=0.05, 0.10, 0.15$  به ترتیب  $0.08, 0.11, 0.20$  است که با افزایش  $x$  کاهش می‌یابد.

برای تعیین مقدار و رفتار  $H_{C2}(T)$  مقدار  $H_{C2}$  برحسب دما و آرایش در شکل ۸ نشان داده شده است. در کارهای انجام شده از معیارهای مختلفی مانند مقادیر  $0.9, 0.5, 0.1$  و  $10\%$  مقاومت حالت هنجار برای تعیین  $H_{C2}(T)$  استفاده شده است [۳۹، ۵۱ و ۵۷]. با توجه به کوچک بودن میدانهای اعمال شده در مقایسه با  $H_{C2}$ ، به نظر می‌رسد که معیار  $10\%$  مقاومت حالت هنجار برای تعیین  $H_{C2}(T)$  مناسب باشد. رفتار  $H_{C2}$  در نزدیکیهای  $T_c$  به کندی با دما تغییر می‌کنند، در حالی که در دماهای پایتتر، به سرعت افزایش می‌یابد. برآزش توانی  $H_{C2}$  برحسب  $(1-T/T_c(H))$  به صورت  $H_{C2} = A(1-T/T_c(H))^q$  نشان می‌دهد که مقدار  $A$  نزدیک به صفر و مقادیر  $q$  برای آرایشهای  $0.15, 0.10, 0.05$  به ترتیب  $9/02, 6/34, 3/81$  با آرایش افزایش می‌یابد. این رفتار توانی، رفتار  $H_{C2}(T)$  در میدانهای کوچک را نشان می‌دهد که به طور سریع با دما تغییر می‌کند. آزمایشها نشان می‌دهد که  $H_{C2}(T)$  با

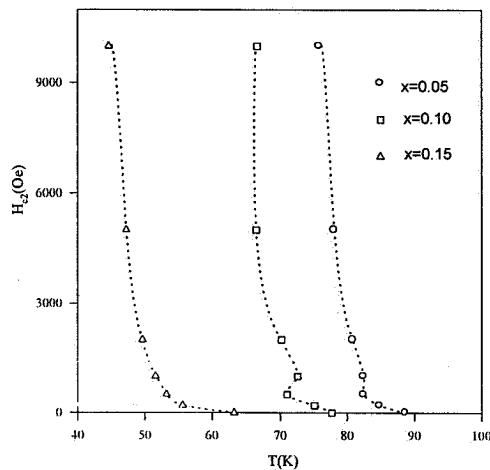


شکل ۵. مقاومت مغناطیسی ترکیب ۱۲۳- $Gd_{0.95}Pr_{0.05}$  برحسب دما.

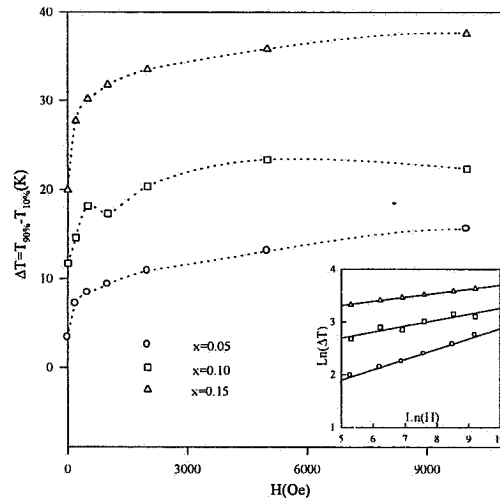
نمونه و برای تمامی میدانهای اعمال شده مشاهده شده است. اگرچه تغییرات مقاومت ویژه حالت بهنجار آنها، با افزایش میدان مغناطیسی کوچک است، در حالت گردابی تغییرات قابل ملاحظه‌ای در مقاومت دیده می‌شود. به منظور روشتر شدن این موضوع و بررسی این تغییرات، مقاومت مغناطیسی این ترکیب در محدوده دمایی  $50$  تا  $100$  K برحسب دما و میدان در شکل ۶ بعدی نمایش داده شده است. از اینجا مشاهده می‌شود که با افزایش میدان، مقاومت حالت مخلوط از صفر به مقادیر قابل ملاحظه‌ای افزایش می‌یابد. همچنین، پهنای گذار ابررسانایی ( $\Delta T_c$ ) به طور مرتب با افزایش میدان افزایش یافته و نمونه در دماهایی پایتتر از  $T_c^0 (H=0)$  دارای مقاومت صفر می‌شود. در حالیکه،  $T_c^{onset}$  آنها تقریباً یکسان است. بررسی این شکلها نتیجه می‌دهد که  $T_c^{onset}$  و  $T_c^{90\%}$  در نمونه‌ها با افزایش میدان، تقریباً ثابت است در حالی که  $T_c^{90\%}$  و  $T_c^0$  آنها به طور سریع با افزایش میدان کاهش می‌یابند. در جدول ۳ مقادیر  $T_c^{onset}$ ،  $T_c^{90\%}$  و  $T_c^0$  برای نمونه‌های مختلف و میدانهای مختلف نشان داده شده است. همچنین، مشاهده می‌شود که  $\Delta T_c$  به طور صعودی با افزایش میدان افزایش می‌یابد. تغییرات  $\Delta T_c$  برحسب میدان مغناطیسی در شکل ۷ نشان داده شده است. دیده می‌شود که  $\Delta T_c$  در میدانهای کوچک به طور سریع تغییر کرده است ولی در میدانهای بالای  $2$  کیلو اورستد تغییرات کمی دارد. مقادیر  $\Delta T_c$  یک افزایش را برحسب مقدار ناخالصی Pr برای

جدول ۳. مقادیر  $T_c^{onset}$ ،  $T_c^{0\%}$  و  $T_c^{10\%}$  نمونه‌های  $Gd_{1-x}Pr_x-123$  با اعمال میدان مغناطیسی

x=0/10			x=0/10			x=0/05			H(kOe)
$T_c^{10\%}$	$T_c^{0\%}$	$T_c^{onset}$	$T_c^{10\%}$	$T_c^{0\%}$	$T_c^{onset}$	$T_c^{10\%}$	$T_c^{0\%}$	$T_c^{onset}$	
۶۳/۲	۸۳/۲	۸۷/۰	۷۷/۷	۸۹/۴	۹۲/۱	۸۸/۷	۹۲/۱	۹۳/۵	۰
۵۵/۶	۸۳/۳	۸۷/۳	۷۵/۱	۸۹/۷	۹۲/۳	۸۴/۹	۹۲/۰	۹۳/۶	۰/۲
۵۳/۲	۸۳/۴	۸۷/۴	۷۱/۰	۸۹/۲	۹۱/۷	۸۲/۵	۹۰/۹	۹۲/۷	۰/۵
۵۱/۶	۸۳/۳	۸۷/۶	۷۲/۶	۸۹/۹	۹۲/۵	۸۲/۵	۹۱/۹	۹۳/۶	۱
۴۹/۷	۸۳/۲	۸۷/۱۰	۷۰/۲	۹۰/۵	۹۳/۹	۸۰/۸	۹۱/۷	۹۳/۵	۲
۴۷/۲	۸۳/۱	۸۸/۱	۶۶/۵	۸۹/۸	۹۲/۳	۷۸/۱	۹۱/۲	۹۲/۸	۵
۴۴/۷	۸۲/۲	۸۶/۸	۶۶/۶	۸۸/۹	۹۲/۴	۷۵/۹	۹۱/۴	۹۳/۳	۱۰

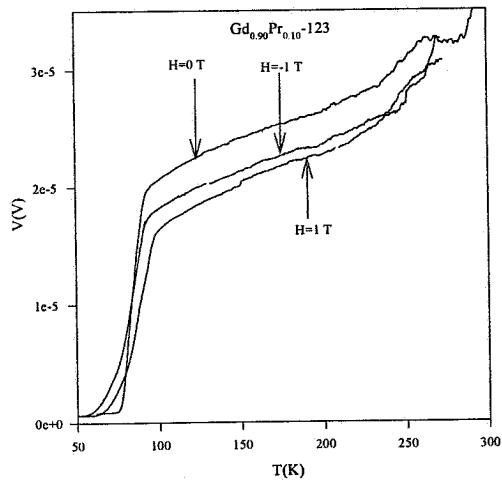
شکل ۸. میدان مغناطیسی بحرانی  $\mu_0 H_{c2}$  نمونه‌های  $Gd_{1-x}Pr_x-123$  بصورت تابعی از دما.

به جریان و میدان بسیار حساس است. از شکل تغییرات مقاومت ویژه در این ناحیه برحسب میدان و دما و برازش آنها با رابطه  $\rho(T) = \rho_n \exp(-U/k_B T)$  می‌توان وابستگی انرژی میخکوبی  $U$  به میدان و ناخالصی را به دست آورد [۲۸]. در اینجا،  $\rho_n$  مقاومت ویژه ابررسانا در حالت بهنجار است. نتایج این برازش در شکل ۹ نشان داده شده است. از این نتایج دیده می‌شود که انرژی میخکوبی  $U$  با افزایش مقدار Pr در ترکیب کاهش می‌یابد. همچنین، مقدار این انرژی با افزایش میدان، کاهش یافته و به یک مقدار تقریباً ثابت می‌رسد. وابستگی انرژی میخکوبی به میدان، در نمونه‌های مختلف، رفتار توانی  $U \propto H^{-\nu}$  را نشان می‌دهد. برازش خطی  $\ln U$  برحسب  $\ln H$

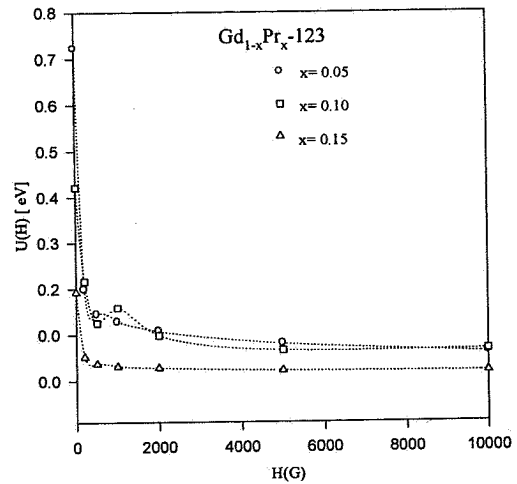
شکل ۹. پهنای گذار نمونه  $Gd_{1-x}Pr_x-123$  برحسب میدان مغناطیسی.

شیب ثابت تا میدان مغناطیسی ۲۵T افزایش می‌یابد [۵۸]. اگرچه با فرمول  $H_{c2}(T) = [\varphi_0 / 2\pi \xi^2(0)] [1 - T_c(H)/T_c(0)]^\eta$  می‌توان کمیتهای مهم مانند طول همبستگی  $\xi(T)$  و  $\eta$  را به دست آورد [۵۹]، به نظر می‌رسد که به دلیل اعمال میدانهای کوچک در این آزمایش (تغییرات کوچک  $T_c(H)$ ) و نداشتن دقت کافی در تغییر  $T_c(H)$  با میدان، نمی‌توان آنها را با دقت مناسب به دست آورد.

مقاومت در محدوده بین  $T_c^{\text{onset}}$  و  $T_c^0$  از دو قسمت تشکیل شده است: یک قسمت نسبتاً تیز در نزدیکی  $T_c^{\text{onset}}$  و یک قسمت بهتر دمی شکل در انتهای ناحیه مخلوط. قسمت دمی شکل به ارتباط ضعیف بین دانه‌ها مربوط می‌شود که نسبت



شکل ۱۰. ولتاژ عرضی نمونه  $Gd_{0.90}Pr_{0.10}-123$  در میدانهای ۰ و  $\pm 1T$  بر حسب دما.



شکل ۹. مقادیر انرژی میخکوبی نمونه‌های  $Gd_{1-x}Pr_x-123$  بر حسب میدان مغناطیسی.

نتایج آن با روش ریتولد، نتیجه شده است که فاز غالب در نمونه‌ها، فاز ۱۲۳ و مقدار فاز ناخالصی موجود در آنها بسیار کم است. همچنین مقادیر پارامترهای شبکه و حجم سلول واحد نیز به دست آمده و مشخص گردیده است که با افزایش مقدار Pr، حجم سلول واحد، افزایش می‌یابد. نتایج این آزمایشها نشان از کیفیت بالای نمونه‌های ساخته شده دارد.

اندازه‌گیری مقاومت ویژه نمونه‌ها نشان می‌دهد که سه ترکیب  $Gd_{1-x}Pr_xBa_2Cu_3O_{7-8}$  ( $x=0/05, 0/10, 0/15$ )، دارای گذار ابررسانایی می‌باشند. دمای گذار ابررسانایی با افزایش ناخالصی Pr در ترکیب، کاهش یافته و پهنای گذار ابررسانایی و مقاومت حالت بهنجار ( $T > T_c$ ) با افزایش Pr در ترکیب، افزایش می‌یابد. مقاومت ویژه در حالت بهنجار یک رفتار خطی را نشان می‌دهد که معرف رفتار فلزی این سیستم است.

اندازه‌گیری ضریب هال در نمونه‌ها، یک رفتار ناهنجار دمایی را برای ضریب هال ( $R_H$ )، برخلاف فلزات معمولی نشان می‌دهد. در حالت بهنجار، ضریب هال با کاهش دما افزایش یافته و پس از گذشتن از یک بیشینه در نزدیکی دمای گذار، به شدت افت می‌کند. همچنین یک تغییر علامت هال نسبت به دما در نمونه  $Gd_{0.90}Pr_{0.10}Ba_2Cu_3O_{7-8}$  دیده شده است.

با محاسبه چگالی حاملهای بار ( $n_H$ ) از ضریب هال اندازه‌گیری شده، مشاهده می‌شود که چگالی حاملهای بار، یک

نشان می‌دهد که مقدار  $\nu$  برای سه ترکیب  $x=0/05, 0/10, 0/15$  به ترتیب  $0/27, 0/30, 0/29$  است که تقریباً مستقل از مقدار ناخالصی در نمونه است.

اندازه‌گیری ولتاژ عرضی این نمونه‌ها نیز بر حسب دما در میدانهای مغناطیسی ۰ و  $\pm 10$  کیلو اورستند انجام شده است. نتایج این اندازه‌گیری برای نمونه  $Gd_{0.90}Pr_{0.10}-123$  در شکل ۱۰ نشان داده شده است. در این شکل، یک برانگیختگی در نزدیکی دمای  $260K$  برای مقاومت حالت بهنجار دیده می‌شود که می‌تواند به گذار فاز مغناطیسی عنصر Gd در ترکیب، مربوط شود. دمای کوری برای Gd برابر  $292/K$  است [۶۰]. این برانگیختگی در منحنی مقاومت طولی، به خاطر ولتاژهای بزرگ طولی نسبت به ولتاژ عرضی، دیده نمی‌شود. یک رفتار مشابه برای نمونه  $Gd_{0.85}Pr_{0.15}-123$  در نزدیکی دمای  $230K$  مشاهده شده است، ولی در نمونه  $Gd_{0.95}Pr_{0.05}-123$  به دلیل افت و خمیزهای بزرگ در منحنی ولتاژ اندازه‌گیری شده، مقاومت ویژه در دمای بالاتر از  $150K$  به دست نیامده است.

### ۴. نتیجه‌گیری

با انجام آزمایشهای SEM روی نمونه‌های ساخته شده  $123-GdPr$  ساختار دانه‌ای و سوزنی شکل آنها و متخلخل بودن و همگنی نمونه‌ها، نتیجه شده است. اندازه دانه‌ها در حدود  $2-6\mu m$  به دست آمده است. از آزمایشهای XRD و بررسی

U به میدان مغناطیسی وابسته است و با افزایش میدان، مقدار آن کاهش می‌یابد. انرژی میخکوبی U با افزایش ناخالصی Pr در نمونه‌ها کاهش می‌یابد. با برآزش LnU برحسب LnH نمای  $\nu$  در  $U \propto H^{-\nu}$  برای  $\nu = 0/05, 0/10, 0/15$  به ترتیب مقادیر  $\nu = 0/29, 0/30, 0/27$  به دست آمده است که تقریباً مستقل از مقدار ناخالصی در نمونه‌هاست.

#### قدردانی

نویسندگان مقاله از کمکهای گیتی ذوالفقارخانی و محمدرضا محمدی زاده تشکر می‌کنند. بخشی از این تحقیق با حمایت دترهای معاونت پژوهشی و تحصیلات تکمیلی دانشگاه صنعتی شریف صورت گرفته است.

وابستگی قوی به دما دارند. نتیجه شده است که مقدار حامل‌های بار در این ترکیبات یک تا دو مرتبه بزرگی از مقدار آنها در فلزات معمولی کوچکتر است.

اندازه‌گیریهای مقاومت ویژه در میدانهای مغناطیسی ۰ تا ۱۰ kOe نشان می‌دهد که گذار ابررسانایی در همه میدانها اتفاق می‌افتد. پهنای گذار در هر سه نمونه با افزایش میدان، افزایش می‌یابد و یک رفتار توانی  $(\Delta H \propto H^n)$  را نشان می‌دهد. مقادیر n برای  $n = 0/20, 0/11, 0/08$  به ترتیب  $x = 0/05, 0/10, 0/15$  به دست آمده‌اند که یک رفتار نزولی از x را نشان می‌دهد. منحنی مقاومت ویژه در طی گذار از حالت بهنجار به حالت ابررسانایی از دو قسمت نسبتاً تیز و دمی شکل تشکیل می‌شود. نتایج برآزش قسمت دمی شکل با معادله  $\rho(T) = \rho_n \exp(-U/k_B T)$  نشان می‌دهد که انرژی میخکوبی

#### مراجع

1. D M Ginsberge, *Physical Properties of High Temperature Superconductors*, vols. I-V (World Scientific, 1989).
2. P H Hor, R L Meng, Y Q Wang, L Gao, Z J Huang, J Bechtold, K Forster, and C W Chu, *Phys. Rev. Lett.* 58 (1987) 1891.
3. M B Maple et al., *Physica B* 148 (1987) 155.
4. D M Ginsberge, *Physical Properties of High Temperature Superconductors*, vol. I (World Scientific, 1989).
5. M Akhavan, *Physica C* 250 (1995) 25; Z Yamani, M Akhavan, *Phys. Rev. B* 56 (1997) 894.
6. A Kebede, C S Jee, J Schwegler, J E Crow, T Mihalisin, G H Myer, R E Salomon, P Schlottmann, M V Kuric, S H Bloom, and R P Guerin, *Phys. Rev. B* 40 (1989) 4453.
7. R F Wood, *Phys. Rev. Lett.* 66 (1991) 829.
8. David P Notton, D H Lowndes, B C Sales, J D Budai, B C Chakoumakos, and H R Kerchner, *Phys. Rev. Lett.* 66 (1991) 1537.
9. M Akhavan, *Physica B*, 321 (2002) 265
10. D M Ginsberg, *Physical Properties of High Temperature Superconductors*, vol. 2, Ch. 7 (World Scientific, 1990).
11. T R Chein, D A Brawner, Z Z Wang, and N P Ong, *Phys. Rev. B* 43 (1991) 6242.
12. Wu Jiang, J L Peng, S J Hagen, and R L Green, *Phys. Rev. B* 46 (1992) 8694.
13. J Clayhold, N P Ong, Z Z Wang, J M Tarascon, and P Barboux, *Phys. Rev. B* 39 (1989) 7324.
14. Y Shimakawa, Y Kubo, T Manako, and H Igarashi, *Phys. Rev. B* 40 (1989) 11400.
15. Y Tokura, J B Torrance, T C Huang, and A I Nazzal, *Phys. Rev. B* 38 (1988) 7156.
16. P W Anderson, *Phys. Rev. Lett.* 67 (1991) 2092.
17. P Coleman, A J Schofield, and M Tsvelik, *Phys. Rev. Lett.* 76 (1996) 1324.
18. G Kotliar, A Sengupta, and C M Varma, *Phys. Rev. B* 53 (1996) 3573.
19. B P Stojkovic and D Pines, *Phys. Rev. Lett.* 76 (1996) 811, C Kendziora, D Mandrus, L Mihaly, and L Forro, *Phys. Rev. B* 46 (1992) 14297 A T Zheleznyak, V M Yakovenko, H D Drew, and I I Mazin, *Phys. Rev. B* 57 (1998) 3089.
20. A W Smith, S J Hagen, M Rajeswari, J L Peng, Z Y Li, R L Greene, S N Mao, X X Xi, S Bhattacharya, Q Li, and C J Lobb, *Physica B* 194-196 (1994) 2257.
21. J Bardeen and M J Stephan, *Phys. Rev. A* 140 (1965) 1197.
22. P Nozieres and W F Vinen, *Philos. Mag.* 14 (1966) 667.
23. A Freimuth, G Hohn, and M Galfy, *Phys. Rev. B* 44 (1991) 396.
24. S Ullah and A T Dorsey, *Phys. Rev. B* 44 (1991) 262.
25. J E Hirsch and Marsiglio, *Phys. Rev. B* 43 (1991) 424.
26. Z D Wang and C S Ting, *Phys. Rev. B* 46 (1992) 284; Z D Wang and C S Ting, *Phys. Rev. Lett.* 67 (1991) 3618.
27. V Daadmehr and M Akhavan, *Phys. Status Solidi (a)* 193 (2002) 153.
28. T T M Palstra, B Batlogg, R B Van Dover, L F Schneemeyer, and J W Waszczak, *Phys. Rev. B* 41 (1990) 6621.

- Blackstead, D B Chrisey, J D Dow, J S Horwitz, A E Klunzinger, and D B Pulling, *Phys. Lett. A207* (1995) 109.
46. H Sunagawa, M Kaiwa, Y Koike, T Noji and Y Saito, *Physica C185-189* (1991) 1271; N A Fortune, K Murata, Y Hidaka, M Ishibashi, Y Yokoyama, F Iga, and Y Nishihara, *Physica C185-189* (1991) 1277.
47. H Kamiura, T Schimizu, and H Vshio, *Physica C 185-189* (1991) 1697.
48. For a survey, see C Hurd, in *The Hall effect and its Applications*, Eds. C L Chein and C R Westgate (Plenum Press, New York, 1980) p.1.
49. I D Parker and R H Friend, *J. Phys. C 21* (1988) L345.
50. L P Ioffe and A I Larkin, *Phys. Rev. B 39* (1989) 8999.
51. H E Horng, C H Lin, D S Lee, H H Sung, and H C Yang, *Physica B 194-196* (1994) 2109.
52. S J Hagen, C J Lobb, and R L Greene, *Phys. Rev. B 43* (1991) 6246.
53. V Daadmehr, H Naghshara, and M Akhavan, in *Proceedings of the First Regional Conference on Magnetic and Superconducting Materials (MSM-99)* Eds. M Akhavan, J Jensen, and K Kitazawa, vol. A (World Scientific, Singapore, 2000) 335.
54. R Hopfengartner, M Leghissa, G Kreiselmeyer, P Schmitt, B Holzapfel, I Khassanov, J Strobel, and G Saemman-Ischenko, *Physica C185-189* (1991) 1281.
55. S N Artemenko, I G Gorlova, and Yu I Latyshev, *Phys. Lett. A 138* (1989) 428.
56. A G Aronov and S Hikami, *Phys. Rev. B 41* (1990) 9548.
57. J S Moodera, R Meservey, J E Tkaczyk, C X Hao, G A Gibson, and P M Tedrow, *Phys. Rev. B 37* (1988) 619.
58. P J M van Bentum, H van Kempen, L EC van de Leemput, J A A J Perenboom, L W M Schreurs, and P A A Teunissen, *Phys. Rev. B 36* (1987) 5279.
59. B Oh, K Char, A D Kent, M Natio, MR Beasley, T H Geballe, R H Hammond, A Kapitulnik, and J M Graybeal, *Phys. Rev. B 37* (1988) 7861.
60. R J Elliott, *Magnetic Properties of Rare Earth Metals*, (Plenum Press, London and New York, 1972) 344.
29. J J Kim, H K Lee, J Chung, H J Shin, H J Lee, and J K Ku, *Phys. Rev. B43* (1991) 2962; R H Koch, V Foglietti, W J Gallagher, G Koren, A Gupta, and M P A Fisher, *Phys. Rev. Lett. 63* (1989) 1511.
30. A C Wright, K Zhang and A Erbil, *Phys. Rev. B44* (1991) 863.
31. H Iwasaki, O Tanaigichi, S Kenmochi, and N Kobayashi, *Physica B196* (1994) 2117; T T M Palstra, B Batlogg, L F Schneemeyer, and J V Waszczak, *Phys. Rev. Lett. 61* (1988) 1662.
32. D R Nelson, *Phys. Rev. Lett. 60* (1988) 1973.
33. A M Campbell and J E Evetts, *Adv. Phys. 21* (1972), 199; E H Brandt, *Phys. Rev. Lett. 63* (1989) 1106.
34. P A Fisher, *Phys. Rev. Lett 62* (1989) 1415.
35. H Shakeripour and M Akhavan, *Supercond. Sci. Technol. 14* (2001), 213; V Ambegaokar and I B Halperin, *Phys. Rev. Lett. 22* (1969) 1364.
۳۶. حسین خسروآبادی، محمدرضا محمدی‌زاده و محمد اخوان، مجله پژوهش فیزیک ایران، جلد ۳، شماره ۱، (۱۳۸۰) ۵۹.
37. Z Yamani and M Akhavan, *Supercond. Sci. Technol. 10* (1997) 412.
38. R S Popovic, *Hall Effect Devices*, IOP Publishing Ltd. (1991).
39. V N Narozhnyi and T G Uvarova, *J. Magn. and Magn. Mat., XXXC* (1996), 7307.
40. L Soderholm, K Zhang, D G Hinks, M A Beno, J D Jorgensen, C U Segre, and I K Schuller, *Nature 328* (1987) 604; Y Dalichaouch, M S Torikachvili, E A Early, B W Lee, C L Seaman, K N Yang, H Zhou, and M B Maple, *Solid State Commun. 65* (1988) 1001.
41. Q Gao and Li-Y Zhang, *Phys. Rev. B59* (1994) 10230.
42. J L Peng, P Klavins, R N Shelton, H B Radousky, P A Hahn, and L Bernardez, *Phys. Rev. B40* (1989) 4517.
43. J Neumeier and M B Maple, *Physica C191* (1992) 158.
44. C Infante, M K Elmously, R Dayal, M Husain, S A Siddigi, and P Ganguly, *Physica C167* (1990) 640.
45. H A Blackstead, J D Dow, D B Chrisey, J S Horwitz, M A Black, P J McGinn, A E Klunzinger, and D B Pulling, *Phys. Rev. B54* (1996) 6122; H A