

## خواص الکتریکی و مغناطیسی ترکیب فرومغناطیس - ابررسانای $\text{Ru}(\text{Gd}_{1/5-x}\text{Pr}_x)\text{Ce}_{0/5}\text{Sr}_2\text{Cu}_2\text{O}_{10-d}$

آنا خواجه نژاد، ندا نیک سرشت، حنیف هادی پور و محمد اخوان

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

### چکیده

همزیستی ابررسانایی و نظم مغناطیسی و وجود همزمان آنها در برخی مواد، یکی از مسایل اساسی در فیزیک حالت جامد است. به منظور مطالعه خواص الکتریکی و مغناطیسی، ترکیبات فرومغناطیس-ابررسانای  $\text{RuCe}_{0/5}\text{Gd}_{1/5-x}\text{Pr}_x\text{Sr}_2\text{Cu}_2\text{O}_{10-d}$  با  $x=0, 0.1, 0.3, 0.4, 0.5, 0.6, 0.8$  به روش واکنش حالت جامد ساخته شدند. نقش پراش XRD برای مقادیر مختلف  $x$  خلوص بالای این ترکیبات را نشان می‌دهد. منحنیهای مقاومت الکتریکی و مغناطیسی در دماهای مختلف و میدانهای مختلف از ۰ تا  $1/5\text{T}$  اندازه‌گیری شده‌اند. پارامترهای ابررسانایی و مغناطیسی از جمله دمای گذار ابررسانایی ( $T_c$ ) و دمای گذار مغناطیسی ( $T_{\text{irr}}$ ) از اندازه‌گیریهای مقاومت الکتریکی به دست می‌آیند. افت شدید ( $T_c$ ) با  $x$  در  $\text{Ru}(\text{Gd}_{1/5-x}\text{Pr}_x)\text{Ce}_{0/5}\text{Sr}_2\text{Cu}_2\text{O}_{10-d}$ ، به دلیل رقابت بین شکست جفت توسط ناخالصی مغناطیسی، نفوذ حفره به دلیل تفاوت در ظرفیت یونها، تفاوت در شعاع یونی و میزان (استوکیومتری) اکسیژن می‌باشد. در جایگذاری Pr به جای Gd، تفاوت کوچک بین شعاع یونی  $\text{Gd}^{3+}$  و  $\text{Pr}^{3+4+}$  باعث کاهش فاصله ممانهای Ru-Ru می‌شود و در نتیجه برهمکنش تبادلی مغناطیسی، با افزایش میزان  $x$  بیشتر می‌شود. هر دو دمای  $T_c$  و  $T_{\text{irr}}$  با افزایش میدان مغناطیسی خارجی کاهش می‌یابند.

واژه‌های کلیدی: روتنوکوبرات، آلایش Pr، خواص الکتریکی و مغناطیسی، دمای گذار ابررسانایی و مغناطیسی

### ۱. مقدمه

جمله دمای گذار مغناطیسی را تغییر دهد. ترکیبات  $\text{RuSr}_2(\text{R}_{3/4}\text{Ce}_{1/4})_2\text{Cu}_2\text{O}_{10-d}$  ( $\text{R} = \text{Ho, Y, Dy}$ ) تحت فشار و دمای بالا ساخته شده‌اند. دمای گذار مغناطیسی این ترکیبات در حدود  $100\text{K}$  و  $T_c$  (دمای گذار ابررسانایی)، بسته به عنصر خاکی کمیاب جایگزین شونده به جای R، در محدوده دمایی  $40\text{K}$  -  $20\text{K}$  می‌باشد [۵]. دو گذار مغناطیسی در ترکیبات فرومغناطیس-ابررسانای  $\text{RuGd}_{1/5}\text{Ce}_{0/5}\text{Sr}_2\text{Cu}_2\text{O}_{10-d}$  در حدود  $T_M = 150\text{K}$  (گذار از حالت پارامغناطیس به آنتی فرومغناطیس) و  $T_{\text{irr}} = 100\text{K}$  (گذار از حالت آنتی فرومغناطیس به فرومغناطیس) مشاهده می‌شود [۱]. میزان نامعین اکسیژن و تفاوت شعاع یونی عناصر خاکی کمیاب باعث تغییر پارامترهای مغناطیسی (از جمله  $T_M$  و  $T_{\text{irr}}$ ) می‌شوند.

سیستم  $\text{RuR}_2\text{Sr}_2\text{Cu}_2\text{O}_{10-d}$  ( $\text{Ru}-1222$ ,  $\text{R} = \text{rare earth}$ ) توسط روشهای تجربی مختلفی مورد مطالعه قرار گرفته است [۱ و ۴]. ساختار  $\text{Ru}-1212$  از شبکه معروف  $(\text{YBCO})\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-d}$ ، با جایگزینی‌های یون R به جای Y، لایه  $\text{SrO}$  به جای لایه  $\text{BaO}$  و صفحات  $\text{RuO}_2$  به جای زنجیره  $\text{CuO}$  به دست می‌آید. ساختار  $\text{Ru}-1222$  از ساختار  $\text{Ru}-1212$  با جایگزینی بلوک  $\text{R}_2\text{O}_3$  به جای یون R به دست می‌آید. حاملهای بار ابررسانایی مربوط به صفحات  $\text{CuO}_2$  می‌باشند و حالت فرومغناطیس به لایه‌های Ru اختصاص دارد [۱ و ۲]. جایگزینی عناصر خاکی کمیاب به جای R می‌تواند رفتار ابررسانایی صفحات  $\text{CuO}_2$  را کنترل کند و همچنین پارامترهای مغناطیسی از

آهنربای الکتریکی با میدان ۲۰ kOe و یک دستگاه مگنتومتر مدل PAR-۱۵۵ با حساسیت  $10^{-3}$  emu انجام شد.

### ۳. نتایج و بحث

طی ف پراس اشعه X، ترکیب  $Ru(Gd_{1/5-x}Pr_x)Ce_{0/5}Sr_2Cu_2O_{10-d}$  به ازای مقادیر مختلف x از ۰ تا ۱، اندازه‌گیری شد. همان‌گونه که طیفهای XRD مربوط به دو نمونه در شکل ۱ نشان می‌دهند، این نمونه‌ها تکفاز هستند. مقایسه نتایج XRD با نتایج دیگران نشان می‌دهد که فاز Ru-۱۲۲۲ به خوبی شکل گرفته است [۶]، ولی نمونه  $x=0$  از کیفیت نازلتری برخوردار است.

مقاومت الکتریکی نمونه‌ها در محدوده دمای اتاق تا ۱۰ K برای نمونه‌هایی با مقادیر مختلف جایگزینی Pr به جای Gd، اندازه‌گیری شده است.

با شروع از دماهای بالا به پایین، رفتار مغناطیسی و ابرسانی به ۴ بخش تقسیم می‌شود: (i) در دماهای بالا، سیستم در فاز پارامغناطیس است که نتایج مغناطش در دمای اتاق این موضوع را تأیید می‌کند (حلقه هیستریزس فرومغناطیس گونه مشاهده نمی‌شود) [۷ و ۸]. (ii) در  $T_M$  زیر شبکه Ru، پادفرومغناطیس می‌شود. (iii) در  $T_{III} < T_M$  که وابسته به مقدار Pr است، فرومغناطیس ضعیف القا می‌شود که از کج شدگی ممانهای Ru، سرچشمه می‌گیرد. این کج شدگی از برهم‌کنش فوق تبادلی غیر متقارن (DM) [۹] به وجود می‌آید. (iv) در دماهای پایین‌تر زیر  $T_c$  حالت ابرسانی القا می‌شود. در زیر  $T_c$  هر دو فاز ابرسانی و فرومغناطیس ضعیف همزیستی دارند [۲، ۳ و ۱۰]. در واقع ابرسانی در ابرساناهای دانه‌ای شامل دو مرحله است. این دو مرحله در روتونوکوپراتها بسیار واضح‌تر و چشمگیرتر است و علت آن، وجود مناطق غیر ابرسانا و مغناطیسی در بین دانه‌های پادفرومغناطیس و ابرساناست و همچنین به ناهمگنی در حضور اکسیژن نیز مربوط می‌شود. در  $T_c$ ، مناطق درون دانه‌ای شروع به ابرسانا شدن می‌کنند. در دمای  $T_p$  دانه‌های ابرسانا از طریق اثر جوزفسون با هم زوج می‌شوند [۱۱]. در این نمونه‌ها مقاومت مطلق صفر یعنی جایی

پخت ترکیبات ساخته شده در حضور فشار اکسیژن باعث افزایش دمای  $T_{III}$  و تغییر سایر مشخصه‌های مربوط به خاصیت فرومغناطیسی ضعیف آنها می‌شود [۱ و ۳]. انتظار داریم که خواص ابرسانی ترکیب  $RuGd_{1/5}Ce_{0/5}Sr_2Cu_2O_{10-d}$  با جایگزینی Pr به جای Gd تغییر یابد. در پی تلاش برای فهم سازوکار ابرسانی و مغناطیس در Ru-۱۲۲۲، در اینجا اطلاعاتی در مورد خواص تراپردی ترکیبات  $Ru(Gd_{1/5-x}Pr_x)Ce_{0/5}Sr_2Cu_2O_{10-d}$  آورده شده است. نتایج نشان می‌دهند که ناخالصی مغناطیسی و ظرفیت قابل تغییر Pr نقش اساسی‌ای در این جایگزینی دارند.

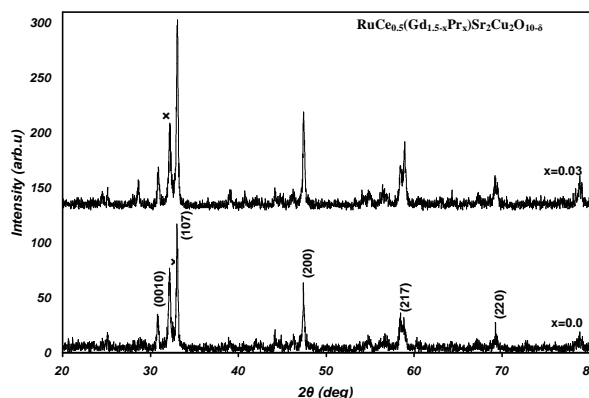
### ۲. جزئیات آزمایش

سرامیکهای ابرسانی  $Ru(Gd_{1/5-x}Pr_x)Ce_{1/5}Sr_2Cu_2O_{10-d}$  به ازای مقادیر مختلف x از ۰ تا ۱، و  $Ru(Ce_{0/5-x}Pr_x)Gd_{0/5-x}Sr_2Cu_2O_{10-d}$  برای x از ۰ تا ۱/۲ از پودرهای  $Gd_2O_3$ ، CuO،  $CeO_2$ ،  $SrCO_3$ ،  $Pr_6O_{11}$  و  $RuO_2$  با خلوص ۹۹/۹٪ به روش واکنش حالت جامد ساخته شده‌اند. پودرهای اولیه با نسبتهای استوکیومتری مناسب در یک هاون مخلوط شده و در بوته‌های آلومینا ریخته می‌شوند، سپس مخلوط حاصل تا دمای ۹۵۰ درجه سانتیگراد در گامهای زمانی معینی در معرض هوا گرم می‌شود. مدت زمان قرارگیری در این دما ۳۰ ساعت است. سپس به آرامی تا دمای اتاق سرد می‌شود. این مرحله از ساخت به منظور همگنی بیشتر پودرهای اولیه دو بار صورت می‌پذیرد. محصول به دست آمده تحت فشار  $10 \text{ ton/cm}^2$  به شکل قرص با ابعاد به قطر ۱۰ mm و ضخامت ۱ mm درآورده می‌شود، سپس به مدت چند روز تحت عبور اکسیژن در دمای ۱۰۶۰ درجه سانتیگراد قرار می‌گیرد. طیف پراس پرتو x نمونه‌ها با استفاده از طول موج  $1/54 \text{ \AA}$  و در گستره دمایی  $2q = 10 - 80^\circ$  گرفته شد. برای اندازه‌گیریهای الکتریکی از یک یخچال مدار بسته دیسپلکس در بازه دمایی ۳۰ K تا ۱۰ K استفاده شد. برای اندازه‌گیری و کنترل دما از یک ترمومتر Pt-۱۰۰ و دستگاه Lake Shore مدل ۳۳۰ A استفاده شد. اندازه‌گیریهای مغناطیسی نمونه‌ها با استفاده از یک

مغناطیسی با افزایش  $x$  افزایش می‌یابد. همچنین، دمای گذار مغناطیسی بسیار به میزان اکسیژن نمونه حساس است و جایگزینی عناصر خاکی کمیاب می‌تواند میزان اکسیژن جذب شونده توسط ماده را تغییر دهد. شواهد بسیاری مبنی بر ورود و خروج اکسیژن از صفحات  $\text{RuO}_2-d$  وجود دارد [۵]. تغییر چگالی حفره‌ها در صفحات  $\text{Cu-O}$  توسط اکسیژن، الکترونیهای منتقل شونده به باند  $d$  اتمهای  $\text{Ru}$  را افزایش می‌دهد و بنابراین، برهم‌کنش تبدلی زیرشبکه  $\text{Ru}$  افزایش یافته،  $T_{\text{IR}}$  بالا می‌رود.

وابستگی دمایی مقاومت الکتریکی نمونه با  $x=0/0.33$  در میدانهای مغناطیسی خارجی مختلف به بزرگی  $0-15\text{kOe}$  در شکل ۳ نشان داده شده است.

شروع ابررسانایی، جایی که درون دانه‌ها ابررسانا می‌شوند، چندان تحت تاثیر میدان مغناطیسی قرار نمی‌گیرد. دمایی که در آن مقاومت مغناطیسی نمونه به طور کامل صفر می‌شود ( $T_c^{\text{R}=0}$ ) و  $T_p$ ، دمایی که اتصالات ضعیف جوزفسون به هم متصل می‌شوند، شدیداً تحت تاثیر میدان مغناطیسی خارجی هستند [۱۳]. میدان مغناطیسی خارجی، یک میدان باقیمانده در ترکیب تولید می‌کند و این میدان داخلی می‌تواند به واسطه ناهمگنی ترکیب، در درون ماده نفوذ نموده، باعث پهن شدن ناحیه گذار ابررسانایی در میدانهای مغناطیسی ضعیف شود. همچنین، این پهن شدن در ناحیه گذار ابررسانایی می‌تواند به واسطه حضور و حرکت شارهای مغناطیسی در ترکیب رخ دهد [۱۴]. پهنای شدید ناحیه گذار می‌تواند به دلیل حضور اکسیژن در این نمونه‌ها باشد. چرا که حضور بیشتر اکسیژن در نمونه‌هایی که ساختار دانه‌ای دارند، منجر به رشد دانه‌های ابررسانا می‌شود [۱۵]. بنابراین مرز بین دانه‌ها که به عنوان مراکز میخکوبی برای شارهای مغناطیسی عمل می‌کردند، کم می‌شوند و بدین ترتیب شارهای مغناطیسی که در درون ماده نفوذ کرده اند آزادی حرکت بیشتری خواهند داشت و افت مقاومت در ناحیه گذار ابررسانایی در دماهای پایتتری اتفاق می‌افتد و گذار ابررسانایی بهتری خواهیم داشت. از مقایسه میزان پهنای گذار به واسطه حضور میدان مغناطیسی خارجی می‌توان برای مقایسه میزان اکسیژن نمونه‌های مختلف استفاده کرد [۷ و ۸].

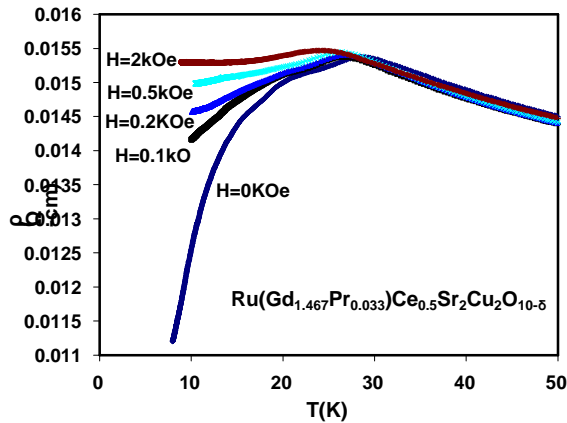


شکل ۱. طرح پراش اشعه  $X$  برای نمونه‌های  $\text{RuCe}_{0.5}\text{Gd}_{1.5-x}\text{Pr}_x\text{Sr}_2\text{Cu}_2\text{O}_{10}$  با  $x=0$  و  $x=0/0.3$ .

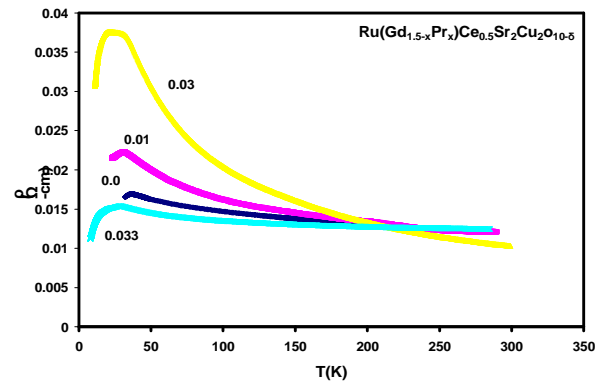
که فقط فاز ابررسانا موجود است، در دماهای خیلی پایین اتفاق می‌افتد که دسترسی به آن مشکل است. بنابراین شروع افت مقاومت به عنوان دمای گذار ابررسانایی ( $T_c$ ) در نظر گرفته می‌شود [۱۲].

همان طور که در شکل ۲ نشان داده شده است، با افزایش  $x$  از  $x=0$  تا  $x=0/0.33$ ، دمای گذار ابررسانایی از  $40\text{K}$  به  $27\text{K}$  کاهش می‌یابد. تفاوت شعاع یونی یونهای  $\text{Pr}$  و  $\text{Gd}$ ، پارامتر شبکه را کاهش داده و انرژی پرشی افزایش می‌یابد. همچنین، به دلیل تفاوت ظرفیت  $\text{Pr}^{3+4+}$  با  $\text{Gd}^{3+}$  جذب اکسیژن در نمونه‌های با  $\text{Pr}$  بیشتر، اندکی بیشتر است که این امر منجر به تقویت ابررسانایی می‌شود. اما، شکست جفت‌های کوپر توسط یون مغناطیسی  $\text{Pr}$  و آرایش الکترون در ترکیب، که دو عامل اساسی در تخریب ابررسانایی در این جایگزینی هستند، بر عوامل تقویت کننده ابررسانایی پیروز شده و در نهایت، کاهش شدید  $T_c$  را با افزایش  $x$ ، در این نمونه خواهیم داشت.

دمای گذار مغناطیسی از تغییرات منحنی مشتق مقاومت مغناطیسی بر حسب دما به دست آمده است. رفتار دمای گذار مغناطیسی  $T_{\text{IR}}$  بر حسب  $x$ ، برای نمونه‌های مختلف به دست آمده است. جایگزینی  $\text{Pr}$  به جای  $\text{Gd}$ ، دمای گذار مغناطیسی را افزایش می‌دهد. چرا که اختلاف شعاع یونی  $\text{Pr}$  نسبت به  $\text{Gd}$  باعث کاهش پارامتر  $a(=b)$  شبکه می‌گردد. بنابراین، با جایگزینی  $\text{Pr}$ ، فاصله گشتاورهای  $\text{Ru-Ru}$  کاهش می‌یابد. در نتیجه، برهم‌کنش‌های مغناطیسی قویتر می‌گردند و دمای گذار



شکل ۳. مقاومت برحسب دما برای نمونه با  $x=0.033$  در میدانهای مغناطیسی مختلف از ۰ تا ۲kOe.



شکل ۴. نمودار مقاومت الکتریکی نمونه‌های

$Ru(Gd_{1.5-x}Pr_x)Ce_{0.5}Sr_2Cu_2O_{10-d}$  با  $x=0, 0.01, 0.03, 0.033, 0.1$ .

دمای گذار مغناطیسی می‌شود. دمای گذار ابررسانایی بین دانه‌ای، در حضور میدان مغناطیسی خارجی کاهش می‌یابد.

### قدردانی

از همکاریهای سعید فلاحی، مجتبی مظاهری و حمید عباسزاده کمال تشکر را داریم. این پژوهش توسط قطب علمی سیستمهای پیچیده و ماده چگال ([www.cscm.ir](http://www.cscm.ir)) حمایت شده است.

### ۴. نتیجه گیری

خواص ابررسانایی و مغناطیسی ترکیبات  $Ru(Gd_{1.5-x}Pr_x)Ce_{0.5}Sr_2Cu_2O_{10-d}$  برای مقادیر مختلف  $x$  مورد بررسی قرار گرفته‌اند. دمای گذار ابررسانایی با افزایش میزان آلایش Pr کاهش می‌یابد. شعاع کوچکتر Pr نسبت به Gd، فاصله بین یونهای مغناطیسی Pr و صفحات ابررسانای  $CuO_2$  را می‌کاهد و بنابراین منجر به تضعیف ابررسانایی در این نمونه‌ها می‌شود. بزرگتر بودن شعاع یونی Pr نسبت به Gd باعث افزایش

### مراجع

1. I Felner, U Asaf and E Galstyan, *Phys. Rev. B* **66** (2002) 024503.
2. I Felner, U Asaf, Y Levi and O Millo, *Phys. Rev. B* **55** (1997) R3374.
3. Felner, U Asaf, Y Levi and O Millo, *Physica C* **334** (2000) 141.
4. H Hadipour, D Sabri, M Mirzadeh, M Akhavan, *Physica Status Solidi (c)* **3** (2005) 2982.
5. V P S Awana, M A Ansari, A Gupta, R B Saxena, H Kishan, D Buddhikot and S K Malik, *Phys. Rev. B* **70** (2004) 104520.
6. C A Cardoso, F M Araujo-Moreira, V P S Awana, E Takayama-Muromachi, O F de Lima, H Yamauchi, M Karppinen, *Phys. Rev. B* **67** (2003) 020407R; C A Cardoso, A J C Lanfredi, A J Chiquito, F M Araujo-Moreira, V P S Awana, H Kishan, R L de Almeida, and O F de Lima, *Phys. Rev. B* **71** (2005) 134509.
7. A Khajehnezhad, N Nikseresht, H Hadipour, M Akhavan, *E. Phys. J. B* **63** (2008) 461-467(7).
8. آنا خواجه نژاد، ندا نیک سرشت، حنیف هادی پور، محمد اخوان، مجله پژوهش فیزیک ایران، **۲۸** (۱۳۸۷) ۴۵.
9. J Dzyaloshinsky, *J Phys. Chem. Solids* **4** (1958) 241; T Moriya, *Phys. Rev.* **120** (1960) 91.
10. J L Tallon, J W Loram, G V M Williams and C Bernhard, *Phys. Rev. B* **61** (2000) R6471.
11. Q Xiong, Y Y Xue, J W Chu, Y Y Sun, Y Q Wang, P H Hor and W Chu, *Phys. Rev. B* **47** (1993) 1137.
12. ندا نیک سرشت، آنا خواجه نژاد، حنیف هادی پور، محمد اخوان، کنفرانس فیزیک ایران (۱۳۸۶) ۳۴۳.
13. D Sabri, H Hadipour, M Mirzadeh, M Akhavan, *Physica Status Solidi (c)* **3** (2005) 2964.
14. A A Abrikosov and L P Gorkov, *J Exptl. Theor. Phys.* **39** (1960) 1781 [*Sov. Phys. JETP* **12** (1961) 1243].
15. Y Y Xue, B Lorenz, A Baikalov, D H Cao, Z G Li and C W Chu, *Phys. Rev B* **66** (2002) 014503; *Phys. Rev B* **65** (2002) R020511.