

خواص ساختاری و ابررسانایی نمونه‌های $YBa_2Cu_{3-x}M_xO_y$ ($M = Ag, Al$)

سمیه فلاحتی، فاطمه صائب و وحید دادمهر

آزمایشگاه پژوهشی مغناطیس و ابررسانایی، دانشکده علوم پایه، دانشگاه الزهراء، کدپستی ۱۹۹۳۸۹۱۱۷۶، تهران، ایران
پست الکترونیکی: daadmehr@alzahra.ac.ir

چکیده

نمونه‌های بس‌بلوری ابررسانای $YBa_2Cu_{3-x}Ag_xO_y$ با مقادیر آلیش $x = 0/01, 0/15, 0/2, 0/3$ و $YBa_2Cu_{3-x}M_xO_y$ ($M = Ag, Al$) با مقادیر آلیش $x = 0, 0/01, 0/02, 0/03, 0/045$ به روش سل - ژل ساخته شده‌اند. اندازه‌گیریهای مقاومت بر حسب دما (R-T) نشان می‌دهد که همه ترکیبات دارای گذار به حالت ابررسانایی بوده و دمای گذار این نمونه‌ها با افزایش میزان ناخالصی Ag تا مقدار آلیش $x = 0/15$ افزایش یافته و برای مقادیر بالاتر آلیش، کاهش می‌یابد، همچنین دمای گذار این نمونه‌ها با افزایش میزان ناخالصی Al کاهش می‌یابد. آزمایشهای SEM بهبود خواص ساختاری نمونه‌ها را با آلیش Ag نشان می‌دهد. همگنی دانه‌ها با آلیش نقره افزایش یافته و اتصالات قویتری بین دانه‌ها برقرار شده است. برای تعیین ساختار فازهای تشکیل شده آزمایشهای پراش پرتو- (XRD) بر روی نمونه‌ها انجام شد. ساختار بلوری نمونه‌ها با استفاده از نرم‌افزار MAUD ظرفیت‌سازی شد. نتایج نشان می‌دهند که جانشینی Ag در جایگاه Cu (۱) انجام شده است. از بررسیهای انجام شده مقدار بهینه آلیش نقره $0/15$ گزارش می‌شود.

واژه‌های کلیدی: ابررسانای YBCO، آلیش نقره و آلومینیوم، سل - ژل، ارتباطات ضعیف

۱. مقدمه

در این تحقیق اثر جانشینی نقره و آلومینیوم در ترکیب $YBa_2Cu_{3-x}M_xO_y$ ($M = Ag, Al$) را مورد مطالعه قرار می‌دهیم. انتخاب نقره به این دلیل است که به عنوان یک عامل مؤثر در افزایش دمای گذار و رشد و جهت‌گیری دانه‌ای معرفی شده است [۲، ۳ و ۴]. در این تحقیق روش سل - ژل را بر اساس نتایج تحقیقات قبلی برای ساخت نمونه‌ها انتخاب کردیم [۵].

۲. جزئیات تجربی

برای بررسی اثرات جانشینی M / Cu ($M = Ag, Al$) در ساختار $YBa_2Cu_{3-x}Ag_xO_y$ ، نمونه‌های $YBa_2Cu_{3-x}M_xO_y$ با مقادیر آلیش $x = 0/01, 0/15, 0/2, 0/3$ و نمونه‌های $YBa_2Cu_{3-x}Al_xO_y$

پس از کشف ترکیب ابررسانای $YBa_2Cu_3O_y$ جانشینی عناصر مختلف در جایگاه‌های اتمی متفاوت مورد مطالعه قرار گرفت. آلیش در ترکیب YBCO به دو دلیل صورت می‌گیرد: اولی تبیین خواص ابررسانایی ترکیب و دومی بهبود مشخصه‌های فیزیکی و بافت دانه‌ای است. به طور معمول در اولی جانشینی شیمیایی و در مورد دوم اضافه کردن فلز ناخالصی به سرامیک YBCO مورد استفاده قرار می‌گیرد [۱]. از آنجاکه دو جایگاه اتمی مختلف Cu در ترکیب YBCO وجود دارد، اتم مس در زنجیره‌ها (Cu(1)) و اتم مس در صفحات (Cu(2))، جانشینی در جایگاه Cu بسته به اینکه اتم آلاینده کدام جایگاه را اشغال می‌کند، منجر به خواص جالب و متفاوتی می‌شود.

نرم افزار MAUD و مقدار اکسیژن (y) اندازه گیری شده به روش یدومتری در جدول (۱) آمده است.

با افزایش میزان آلایش، تغییرات قابل توجهی در پارامترهای شبکه دیده نمی شود. عدم تغییر در اشغال محل (2) Cu، کاهش کسر اشغال محل (1) Cu و افزایش کسر اشغال Al و Ag در جایگاه (1) Cu متناسب با افزایش مقدار آلاینده، نشان می دهند که جانشینی ها در جایگاه (1) Cu انجام شده است. درجه اورترومبیسیتی نمونه های $YBa_2Cu_{3-x}Al_xO_y$ از ۰/۸۴ در نمونه خالص به ۰/۵۹ در نمونه با آلایش ۰/۴۵ کاهش می یابد. شکل ۳ نتایج اندازه گیری مقاومت الکتریکی بر حسب دما و تراکم آلایش را برای نمونه های $YBa_2Cu_{3-x}Ag_xO_y$ نشان می دهد. مقاومت حالت نرمال برای همه نمونه ها، رفتار فلزی داشته و شیب آن مثبت است. دمای گذار نمونه ها با افزایش مقدار آلایش Ag تا $x=0/15$ افزایش یافته و برای مقادیر بالاتر آلایش کاهش می یابد. همان طور که می بینیم دمای گذار با آلایش Ag افزایش یافته که مؤید کارهای ام. تپه و ا. گورور است [۲ و ۸]. علاوه بر این ثابت ماندن تقریبی ΔT_C با افزایش آلایش Ag نشان می دهد که Ag با یونهای موجود در محیط فاز ناخالصی خاصی را ایجاد نکرده است. بهینه مقدار آلایش Ag در ساختار ۱۲۳ مقدار $x=0/15$ معرفی شده که حداکثر دمای گذار را ارائه می دهد. M. Tepe این مقدار را ۰/۲ معرفی کرده است [۲]. شکل ۴ نتایج اندازه گیری مقاومت الکتریکی بر حسب دما و آلایش را برای نمونه های $YBa_2Cu_{3-x}Al_xO_y$ نشان می دهد.

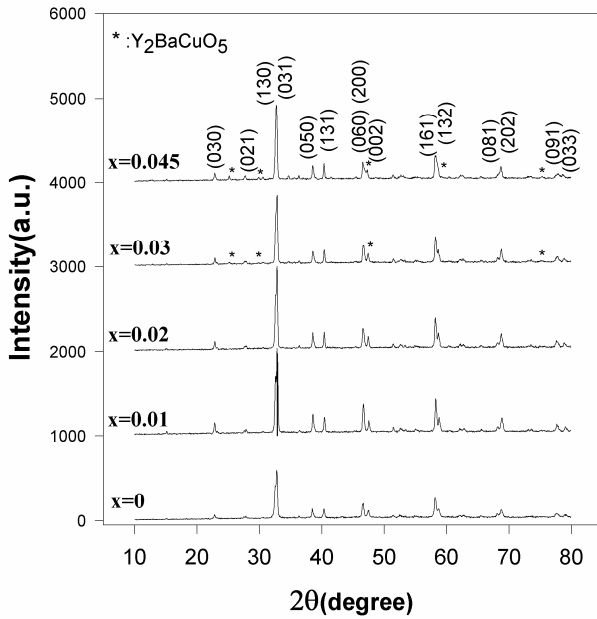
مقاومت حالت نرمال برای همه نمونه ها، رفتار فلزی داشته و شیب آن مثبت است و با افزایش مقدار آلایش Al افزایش می یابد و مؤید کار آر. وی. ووک و همکاران [۹] است. دمای گذار نمونه ها با افزایش آلایش Al به طور یکنواخت کاهش می یابد. روند کاهش دمای گذار ابررسانایی با آلایش Al در جانشینی Al/Cu نتایج کارهای تی. سیگریست [۱۰] و تار اسکن [۱۱] را تأیید می کند. بدلیل محدودیت اندازه گیری دمای گذار دستیابی به مقادیر پایتتر T_C ممکن نبود. پهنای گذار

با مقادیر آلایش $x=0,0/01,0/02,0/03,0/045$ به روش سل-ژل ساخته شده اند [۶ و ۷]. آنالیز فازی نمونه ها بوسیله الگوی پراش اشعه X- (XRD, Philips Cu α radiation) پودری تعیین می گردد. ریز ساختار با میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM, Philips XL30) مشاهده و مقاومت الکتریکی با استفاده از تکنیک چهار میله ای استاندارد برای $30-77^\circ K$ اندازه گیری می شود.

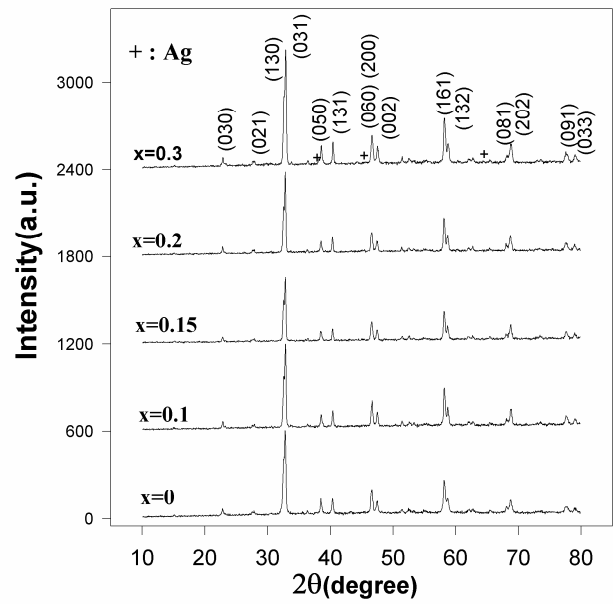
۳. بحث و نتیجه گیری

خلوص فاز نمونه ها به کمک آنالیز XRD پودری مشخص شده اند. شکل (۱) الگوهای XRD نمونه های $YBa_2Cu_{3-x}Ag_xO_y$ با مقادیر تراکم آلایش $x=0,0/1,0/15,0/2,0/3$ را نشان می دهد. از مقایسه این طیفها با کارتهای JCPDS می بینیم که فاز ۱۲۳ به همراه پیکهای مربوطه در زوایای مختلف در همه نمونه ها تشکیل شده است. ارتفاع پیک اصلی این نمونه ها در $2\theta = 34/87^\circ$ است که مربوط به صفحه (۰۳۱) می باشد. الگوهای پراش نمونه خالص و نمونه های $YBa_2Cu_{3-x}Ag_xO_y$ با مقادیر آلایش $x=0/1,0/15,0/2$ هیچ پیک ناخالصی ندارند، بنابراین جانشینی Ag/Cu به خوبی و به طور کامل انجام شده و هیچ فاز ناخالصی در طول انجام فرآیند شکل نگرفته است. الگوی پراش XRD نمونه با $x=0/3$ پیکهای خیلی ناچیزی از Ag را نشان می دهد، در نتیجه مقدار اضافی آلایش Ag در ساختار ۱۲۳ وارد نشده و در بین دانه ها باقی مانده است و نقش تقویت ارتباطات ضعیف را بازی خواهد کرد. شکل (۲) الگوهای XRD نمونه های $YBa_2Cu_{3-x}Al_xO_y$ را نشان می دهد. الگوهای پراش نمونه خالص و نمونه های $YBa_2Cu_{3-x}Al_xO_y$ با مقادیر آلایش $x=0/01,0/02$ هیچ پیک ناخالصی ندارند. الگوی پراش XRD نمونه با آلایش $x=0/03$ پیکهای خیلی ناچیزی از Y_2BaCuO_5 را نشان می دهد که با افزایش مقدار آلایش در $x=0/045$ شدت این پیکها کمی افزایش یافته است.

ثابت های شبکه و مکانهای اتمی نمونه ها بدست آمده از



شکل ۲. الگوی پراش اشعه X نمونه‌های $YBa_2Cu_{3-x}Al_xO_y$.



شکل ۱. الگوی پراش اشعه X نمونه‌های $YBa_2Cu_{3-x}Ag_xO_y$ برای مقادیر

آلایش $x = 0, 0.1, 0.15, 0.2, 0.3$.

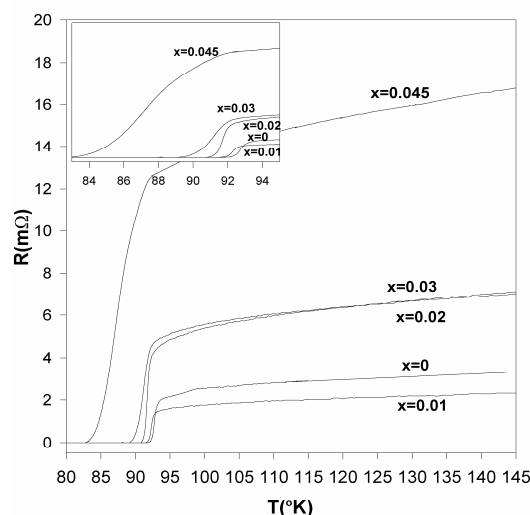
جدول ۱. ثابتهای شبکه و درصد اشغال مکانهای اتمی و مقدار اکسیژن در نمونه‌های $YBa_2Cu_{3-x}M_xO_y$ (M = Ag, Al).

$YBa_2Cu_{3-x}M_xO_y$	a(Å)	b(Å)	c(Å)	Orthorombicity	Cu(1) Occupancy	Cu(2) Occupancy	M Occupancy	y
x=0	۳/۸۲۰	۳/۸۸۵۵	۱۱/۶۸۳۵	۰/۸۴۶۱	۱/۰۰	۱	-	۷/۰۹
M=Ag x=۰/۱	۳/۸۲۰	۳/۸۸۵۵	۱۱/۶۸۳۵	۰/۸۴۵۸	۰/۸۹۸۶	۰/۹۹۹	۰/۰۹۹۲	۷/۰
M=Ag x=۰/۱۵	۳/۸۲۰	۳/۸۸۵۵	۱۱/۶۸۳۶	۰/۸۴۵۹	۰/۸۴۸۳	۰/۹۹۹	۰/۱۴۹۹	۷/۰
M=Ag x=۰/۲	۳/۸۲۰	۳/۸۸۵۵	۱۱/۶۸۳۶	۰/۸۴۵۹	۰/۷۹۷۸	۰/۹۹۹	۰/۱۹۸۷	۷/۰۲
M=Ag x=۰/۳	۳/۸۲۰	۳/۸۸۵۵	۱۱/۶۸۳۵	۰/۸۴۵۸	۰/۶۹۹۵	۰/۹۹۹	۰/۲۹۹۷	۷/۰
M=Al x=۰/۰۱	۳/۸۲۰۴	۳/۸۸۵۶	۱۱/۶۸۳۷	۰/۸۴۶۸	۰/۹۸۳۸	۰/۹۹۶۶	۰/۰۰۷۹	۷/۰۹
M=Al x=۰/۰۲	۳/۸۲۰۳	۳/۸۸۵۵	۱۱/۶۸۳۵	۰/۸۴۵۷	۰/۹۷۹۷	۱/۰۰۰۴	۰/۰۱۹۶	۷/۰۸۸
M=Al x=۰/۰۳	۳/۸۲۰۳	۳/۸۸۵۵	۱۱/۶۸۳۵	۰/۸۴۵۶	۰/۹۶۹۶	۱/۰۰۰۱	۰/۰۲۹۰	۷/۲
M=Al x=۰/۰۴۵	۳/۸۳۵۴	۳/۸۸۱۳	۱۱/۶۹۶۸	۰/۵۹۵۴	۰/۸۰۷۹	۱/۰۰۰	۰/۰۸۳۴	۷/۱۶

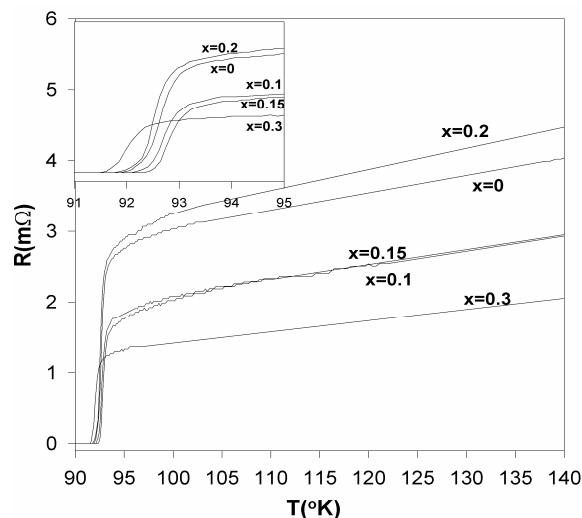
می‌گذارند.

شکل ۵ تصاویر SEM نمونه‌های $YBa_2Cu_{3-x}Ag_xO_y$ را نشان می‌دهد که در آنها همگنی دانه‌ها با آلایش نقره افزایش یافته و ارتباطات قویتری بین دانه‌ها برقرار شده است. این در توافقی با کار سی. لیئونود - هارنویز و همکارانش است، که نشان دادند با آلایش نقره تخلخل نمونه کاهش یافته و ساختاری تقریباً عاری از هرگونه شکاف و حفره به دست

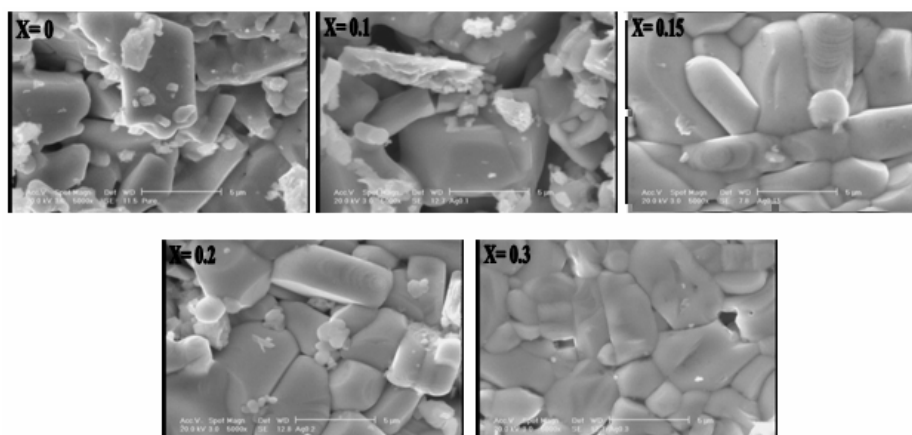
ابرسی با افزایش جانشینی Al/Cu افزایش یافته است. کاهش دمای گذار ابرسانی با آلایش Al را می‌توان به جانشینی آن در زنجیره‌های اتمی Cu-O نسبت داد. از آنجا که Al^{3+} یک یون سه‌ظرفیتی است با جانشینی در زنجیره‌های اتمی، اکسیژن بیشتری را به سمت زنجیره‌ها جابه‌جا می‌کند، بنابراین حفره‌ها در زنجیره‌ها جایگزیده می‌شود [۱۲ و ۱۴]. بنابراین یونهای Al^{3+} بر جفت‌شدگی و انتقال بارها اثر



شکل ۴. مقاومت الکتریکی نمونه‌های $\text{YBa}_2\text{Cu}_{3-x}\text{Al}_x\text{O}_y$ برای مقادیر آلیش $x = 0-0.045$. شکل داخلی جزئیات گذار را نشان می‌دهد.



شکل ۳. نمودار R-T نمونه‌های $\text{YBa}_2\text{Cu}_{3-x}\text{Ag}_x\text{O}_y$ برای مقادیر آلیش $x = 0-0.3$. شکل داخلی جزئیات گذار را نشان می‌دهد.



شکل ۵. تصاویر SEM نمونه‌های $\text{YBa}_2\text{Cu}_{3-x}\text{Ag}_x\text{O}_y$.

از رشد و جهت‌گیری دانه‌ای عمل می‌کند که کاملاً کار ام. تپه و همکارانش را تأیید می‌کند [۲].

۴. نتایج

اثر آلیش نقره و آلومینیوم در نمونه‌های ابررسانای $\text{YBa}_2\text{Cu}_{3-x}\text{M}_x\text{O}_y$ ($M = \text{Ag}, \text{Al}$) مورد مطالعه قرار داده شده است. تصاویر SEM نمونه‌های $\text{YBa}_2\text{Cu}_{3-x}\text{Ag}_x\text{O}_y$ نشان می‌دهد که همگنی و سطح تماس دانه‌ها با آلیش نقره افزایش یافته و ارتباطات قویتری بین دانه‌ها برقرار شده است. جانسنی‌ها در جایگاه $\text{Cu}(1)$ انجام شده است. مقدار بهینه

می‌آید [۴]. بنابراین انتظار داریم که آلیش نقره به افزایش J_c کمک کند. مقالات زیادی افزایش J_c در اثر آلیش Ag را گزارش کردند که افزایش سطح تماس دانه‌ها، تغییر در مرزهای بین دانه‌ای و رشد و جهت‌گیری مناسب دانه‌ها را علل اصلی افزایش چگالی جریان بحرانی با افزایش آلیش Ag معرفی کردند [۲، ۳، ۱۵ و ۱۹].

تصاویر SEM در شکل ۵ نشان می‌دهد که با افزایش مقدار آلیش نقره تا $x = 0.15$ دانه‌ها رشد بهتری کرده‌اند، اما با آلیش اضافی نقره در $x = 0.3$ دانه‌ها ریزتر شده‌اند. در نتیجه افزایش مقدار آلیش از حد بهینه به عنوان یک عامل بازدارنده

می‌شویم. افزایش جایگزیدگی حفره‌ای در اثر جانشینی Al/Cu در صفحات CuO_y می‌تواند یکی از علل کاهش T_C باشد.

قدردانی

نویسندگان از حمایت مالی معاونت پژوهشی دانشگاه الزهرا تشکر می‌کنند.

آلایش نقره ۱۵/۰ به دست آمد. افزایش مقدار آلایش از حد بهینه به عنوان یک عامل بازدارنده از رشد و جهت‌گیری دانه‌ای عمل می‌کند.

اندازه‌گیری مقاومت الکتریکی برحسب دما برای مقادیر کم آلایش Al کاهش جزئی در دمای گذار را نشان می‌دهد اما با افزایش مقدار آلایش با افت سریع در دمای گذار $T_C(0)$ مواجه

مراجع

1. J M S Skakle, *Materials Science and Engineering*, **R23** (1998)1-40.
2. M Tepe, I Avci, H. Kocoglu and D Abukay, *Solid State Communications* **131** (2004) 319-323.
3. G Bolaflos and P Prieto, *Physica C* 341-348 (2000) 1197.
4. C Lebiand-Harnois et al., *Physica C*, **341-348** (2000) 2439.
5. S Barekat Rezaee, V Daadmehr, and S. Dadras, *Fifth International Conference MSM* (2007) 93.
6. S Barekat Rezaee, V Daadmehr, F Saeb and S Falahati, *Fifth International Conference MSM* 31 (2007).
7. R S Liu, W N Wang, C T Chang and P T Wu, *Jpn. J. Appl. Phys.* **28** (1989) L2155-L2157.
8. O Gorur, T Kucukomeroglu, C Terzioglu, A Varilci and M Altunbas, *Physica C* **418** (2005) 35.
9. R V Vovk, et al., *Journal of Materials Science; Materials in Electronics*, **18** (2007)811-815.
10. T Siegrist, L F Schneemeyer, J V Waszczak, N P Singh, R L Opila, B. Batlogg, L W Rupp and D W Murphy, *Phys. Rev. B* **36**(1987)316.
11. J M Tarascon, P Barboux, P F Miceli, L H Greene and G W Hull, *Phys. Rev. B* **37** (1988) 13.
12. M D Glinchuk and A P Pechenyi, *Ferroelectrics*, **155** (1994) 25-30.
13. Pinglin Li, Jincang Zhang, Guixin Cao, Chao Jing, and Shixun Cao, *Phys. Rev. B* **69** (2004) 224517.
14. S Schmenn, H. Lutgemeier, Th Wolf and E Brecht, *Journal of LOW Temperature Physics*, **105** (3-4) (1996) 425-430.
15. M J Qin, A W Kaiser and H J Bornemann, *Physica C* **311** (1999) 280-286.
16. E Mendoza, T Puig, E Varesi, A E Carrillo, J Plain and X Obradors, *Physica C* **334** (2000) 7-14.
17. C Harnois, G Desgardin, I Laffez, X Chaud and D Bourgault, *Physica C* **383**(2002) 269-278.
18. J Jung, I Isaac and M A-K Mohamed, *Phys. Rev. B* **49**(1993)10.
19. C H Cheng and Y Zhao, *Physica C* **463-465** (2007) 174.