

## بررسی اثر اندازه پودرهای اولیه در ریز ساختار و خواص بین دانه‌های ابررساناهای $\text{Bi-Pb}$ ۲۲۲۳

اسماعیل عبدالحسینی، هادی سلامتی و پرویز کاملی

آزمایشگاه ابررسانایی، دانشکده فیزیک، دانشگاه صنعتی اصفهان

(دریافت مقاله: ۸۵/۳/۱۷؛ دریافت نسخه نهایی: ۸۵/۷/۳۰)

### چکیده

در این مقاله اثر اندازه ذرات پودرهای اولیه در ریز ساختار و خواص بین دانه‌های ابررسانای بس بلور  $\text{Bi-2223}$  مورد بررسی قرار گرفته است. نمونه‌ها به روش واکنش حالت جامد تهیه شدند. پودرهای اولیه پس از مرحله تکلیس به مدت ۱، ۱۲، ۲۴، ۴۸ و ۸۸ ساعت آسیاب شده و سپس در دمای ۸۶۵ درجه سانتی‌گراد به مدت ۱۸۰ ساعت کلوخه سازی شدند. نتایج XRD نشان می‌دهد که با افزایش مدت زمان آسیاب درصد فاز  $\text{Bi-2223}$  افزایش می‌یابد. آنالیز پذیرفتاری مغناطیسی و مقاومت الکتریکی، افزایش چگالی جریان بحرانی با کاهش اندازه ذرات اولیه را نشان می‌دهد. همچنین تصاویر میکروسکوپ الکترونی نشان می‌دهند که با ریز شدن پودرهای اولیه، پس از مرحله کلوخه سازی ابعاد دانه‌ها رشد بیشتری دارند. بنابراین افزایش درصد فاز  $\text{Bi-2223}$  و رشد اندازه دانه‌ها از عوامل اصلی افزایش چگالی جریان بحرانی هستند.

واژه‌های کلیدی: ابررسانای BSCCO، آسیاب، پذیرفتاری مغناطیسی AC

### ۱. مقدمه

مابع بیشتری را در طی مرحله کلوخه سازی تولید کرده که این باعث بهبود رشد دانه‌ها و رسانندگی فاز  $\text{Bi-2223}$  می‌شود و در نتیجه آن چگالی جریان بحرانی بهبود می‌یابد. ترکیب اسمی فوق یکی از شرایط حالت‌های بهینه برای تشکیل فاز  $\text{Bi-2223}$  در ترکیب ابررسانای BSCCO است [۱].

وجود مرزهای دانه‌ای در ابررساناهای دمای بالا باعث ایجاد ارتباطات ضعیف می‌شوند. این ارتباطات ضعیف باعث کاهش جریان بحرانی در ابررساناهای دمای بالا می‌شوند [۲]. از دلایل ممکن برای شکل‌گیری این ارتباطات ضعیف می‌توان به جهت‌گیری نامناسب دانه‌ها در مرزهای دانه‌ای یا تغییرات ترکیبی، ساختاری و کمبود اکسیژن در آنها اشاره نمود [۳ و ۴]. یکی دیگر از عوامل کاهش جریان بحرانی وجود فازهای ثانویه است [۵ و ۶]. این فازهای ثانویه، به طور مثال فاز  $\text{Bi-2212}$  که معمولاً بین دانه‌ها قرار می‌گیرند و نقش ارتباطات ضعیف را

ابررسانای BSCCO با ترکیب اسمی  $(\text{Bi-Pb})_x\text{Sr}_y\text{Ca}_{n-1}\text{Cu}_n\text{O}_x$  دارای سه فاز  $\text{Bi-2223}$ ،  $\text{Bi-2212}$  و  $\text{Bi-2201}$  است. این سه فاز به ترتیب دارای دماهای گذار ۱۱۰، ۸۵ و ۱۵ کلوین هستند. ترکیب  $\text{Bi-2223}$  با دمای گذار حدود ۱۱۰ کلوین از جمله ترکیبات ابررسانای دمای بالا است که به شدت مورد توجه قرار گرفته است. این ترکیب نامزد خوبی برای ساخت سیم‌های ابررسانای دمای بالا به حساب می‌آید و مطالعات متعددی درباره ساخت و بررسی خواص مختلف ساختاری و ابررسانایی آن انجام شده است.

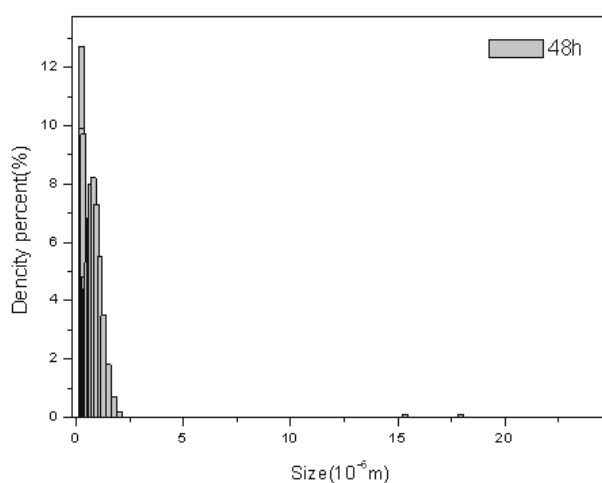
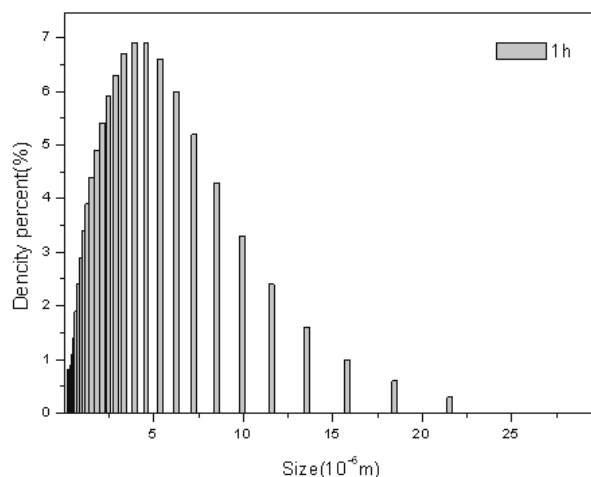
در این مقاله ترکیب اسمی  $(\text{Bi}_{1/66}\text{-Pb}_{7/34})\text{Sr}_2\text{Ca}_7\text{Cu}_7\text{O}_x$  مورد بررسی قرار می‌گیرد. مقدار Pb موجود در پودرهای اولیه، تأثیر زیادی روی تکامل ریز ساختار و رشد فاز ثانویه، در نوارها و سرامیکهای  $\text{Bi-2223}$  دارد. افزایش مقدار سرب، فاز

استوکیومتری مناسب با یکدیگر مخلوط و برای مدت یک ساعت آسیاب شدند. محصول به دست آمده در بوتله‌های آلومینا ریخته شده و در کوره مکعبی برای مدت ۲۴ ساعت در دمای ۸۱۰ درجه سانتی‌گراد تکلیس شدند. عمل آسیاب و تکلیس سه بار متوالی تکرار شد. به منظور دستیابی به اندازه‌های مختلف ذرات، پودر حاصل به مدت ۱، ۱۲، ۲۴، ۴۸ و ۸۸ ساعت توسط یک آسیاب صفحه‌ای برقی آسیاب شدند. محصولات به دست آمده در قالبهای مخصوص تحت فشاری معادل ۱۲ تن بر سانتی‌متر مربع به صورت قرصهایی به قطر ۱۰ میلی‌متر و ضخامت ۲ تا ۳ میلی‌متر در آمدند. این قرصها به مدت ۱۸۰ ساعت و در دمای ۸۶۵ درجه سانتی‌گراد کلوخه‌سازی شدند. بررسی ساختاری نمونه‌های به دست آمده توسط دستگاه پراش پرتوی ایکس (XRD) ساخت شرکت فیلیپس (مدل XPERT) انجام شده است. ریخت شناسی نمونه‌های فوق توسط دستگاه میکروسکوپ الکترونی روبشی ساخت شرکت فیلیپس (مدل XL۳۰) مطالعه شده است. مقاومت ویژه و پذیرفتاری مغناطیسی نمونه‌ها توسط دستگاه اندازه‌گیری پذیرفتاری مغناطیسی ساخت شرکت LakeShore مدل ۷۰۰۰ انجام شده‌اند. توزیع اندازه ذرات پودرها توسط دستگاه تعیین کننده اندازه ذرات به روش لیزری ساخت شرکت FRITSCH انجام شد.

### ۳. نتایج و بحث

شکل ۱ فراوانی اندازه‌ی ذرات را برای نمونه‌های ۱ و ۴۸ ساعت آسیاب شده نشان می‌دهد. این فراوانی توسط دستگاه آنالیز لیزری تعیین شده است. ملاحظه می‌شود که فراوانی اندازه ذرات با افزایش مدت زمان آسیاب به طرف اندازه‌های کمتر انتقال می‌یابد.

شکل ۲ میانگین تغییرات اندازه ذرات با زمان آسیاب را نشان می‌دهد. مشاهده می‌شود که اندازه میانگین ذرات با افزایش مدت زمان آسیاب خیلی سریع کاهش می‌یابد، اما بعد از گذشت مدت زمان ۴۸ ساعت کاهش اندازه‌ی ذرات کند می‌شود. همچنین میانگین ذرات برای مدت زمان آسیاب ۴۸



شکل ۱. فراوانی اندازه ذرات اولیه در نمونه‌های ۱ و ۴۸ ساعت آسیاب شده.

بازی می‌کند، باعث کاهش چگالی جریان بحرانی می‌شوند [۷]. کوچکی اندازه دانه‌های پودرهای اولیه در به دست آوردن چگالی جریان بحرانی بالا نقش تعیین کننده‌ای در ساخت سیمهای ابرسانا داشته‌اند [۸ و ۹]. در این مقاله اثر اندازه دانه‌ها در تشکیل فاز Bi-۲۲۲۳ و خواص بین دانه‌ای این فاز مورد بررسی قرار می‌گیرد.

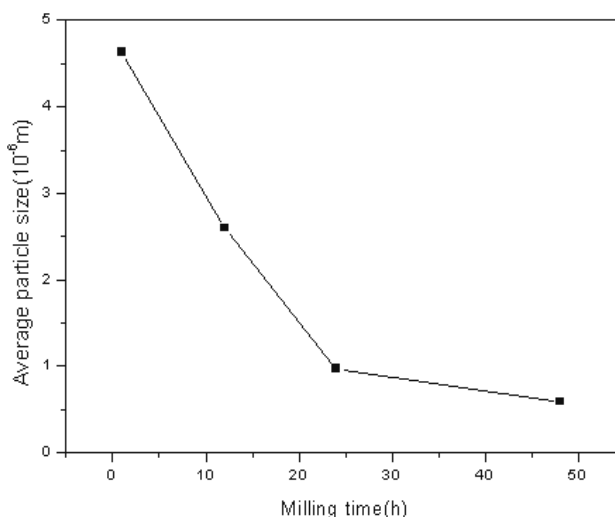
### ۲. ساخت و آزمایشات

برای ساخت نمونه‌های مورد نیاز از روش معمول واکنش حالت جامد استفاده شده است. مواد اولیه  $\text{CuO}$ ،  $\text{Bi}_2\text{O}_3$ ،  $\text{PbO}$ ،  $\text{SrCO}_3$  و  $\text{CaCO}_3$  با درصد خلوص بهتر از ۹۹/۹۹ درصد و

میزان واکنش پذیری را در زمان کلوخه سازی افزایش دهد. این امر گذار فاز را سرعت می‌بخشد و به تشکیل فاز Bi-۲۲۲۳ کمک می‌کند.

به دلیل اینکه همگنی، دانه‌بندی، ابعاد و میزان جفت‌شدگی دانه‌ها، تخلخل و وجود ترکها در نمونه‌ها، خواص ابررسانایی را در ابررساناهای گرم تحت تأثیر قرار می‌دهند، برای تشخیص ریز ساختار نمونه‌ها، از همه آنها تصاویر SEM گرفته شد. شکل ۴ تصویر SEM نمونه‌های ۱ و ۸۸ ساعت آسیاب شده را نشان می‌دهد. از شکل پیداست که نمونه ۸۸ ساعتی دارای اندازه دانه‌های بزرگتر و ارتباطات بین دانه‌ای بهتری نسبت به نمونه ۱ ساعتی است. این نشان می‌دهد که رشد دانه‌ها برای حالتی که ذرات اولیه ریزترند، بیشتر است. به نظرمی‌رسد که ریز بودن اندازه‌ی پودرهای اولیه باعث می‌شود که بعد از پرس کردن آنها و تهیه قرص، میزان تراکم پذیری بالا بوده و در زمان کلوخه سازی ذرات به صورت بهتری با هم واکنش داده و به رشد دانه‌ها کمک کرده‌اند.

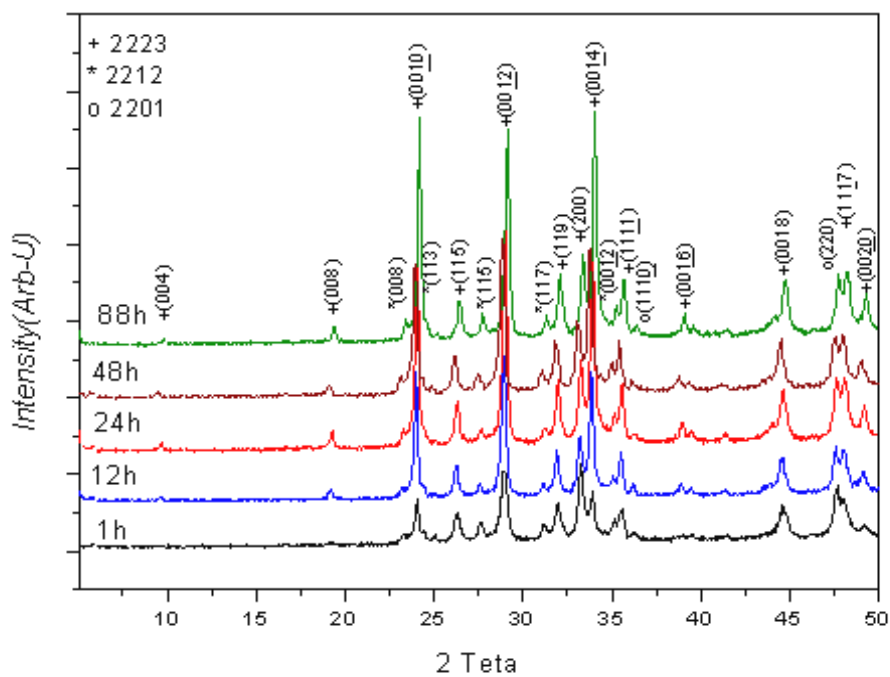
یکی از رفتارهای جالب ابررساناهای دمایی بالا چند بلوری تک فاز، وجود گذار دو مرحله‌ای از حالت بهنجار به حالت ابررسانایی است. منحنی مقاومت ویژه،  $\rho$  بر حسب دما،  $T$ ، شامل دو مرحله است. مرحله اول افت نسبتاً تیز در مقاومت در دمای  $T_c^{onset}$  است که نشان دهنده گذار درون دانه‌ای است و مرحله دوم افت نسبتاً آرام در مقاومت است که با جفت‌شدگی کامل دانه‌ها نهایتاً مقاومت در دمای  $T_c^{offset}$  به صفر می‌رسد و کل سیستم در حالت ابررسانایی است. کرانه پایینی منحنی  $\rho(T)$  حساسیت زیادی نسبت به جریان و میدان دارد. در جریانهای پایین، گذار نسبتاً تیز از حالت بهنجار به حالت ابررسانایی با مقاومت صفر صورت می‌گیرد. اما با افزایش جریان در دماهای پایین دنباله شروع به شکل‌گیری می‌کند. از این رو از عبارت نواحی ضعیف یا ارتباطات ضعیف برای نواحی ساختاری که مسئول چنین رفتارهایی در نمونه هستند، استفاده می‌شود. در شکل ۵ تغییرات مقاومت ویژه الکتریکی نمونه‌ها با دما نشان داده شده است. مشاهده می‌شود که مقاومت در دماهای بالای دمای گذار  $T_c$ ، رفتار کاملاً فلزی



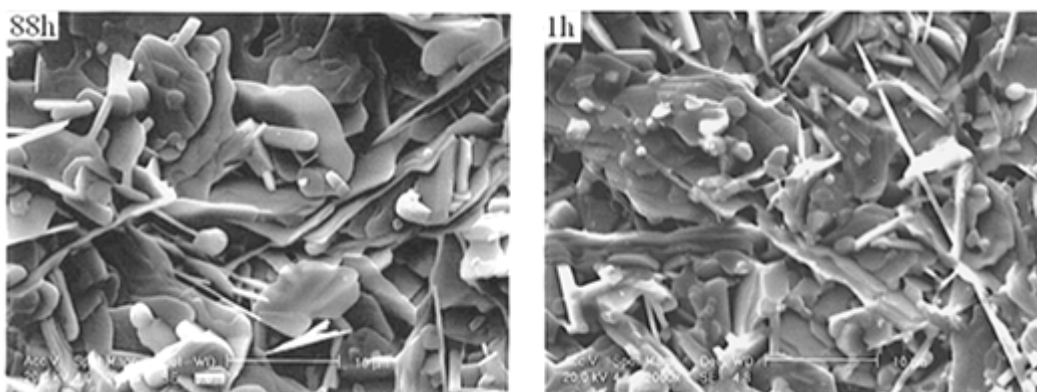
شکل ۲. تغییرات میانگین اندازه ذرات با زمان آسیاب.

ساعت به کمتر از ۱ میکرومتر کاهش می‌یابد.

شکل ۳ نتایج حاصل از پراش اشعه ایکس برای نمونه‌های ۱، ۱۲، ۲۴، ۴۸ و ۸۸ ساعت آسیاب شده را نشان می‌دهد. برای تعیین ساختار بلوری و نیز تعیین نوع و درصد ناخالصیها، طیف حاصل از پراش پرتو X مورد استفاده قرار می‌گیرد، که این روش بر اساس رابطه براگ استوار است. با شناسایی قله‌های موجود در طیف حاصل از نمونه‌ها و مقایسه آنها با کارتهای استاندارد JCPDS، اندیسه‌های میلر مربوط به هر قله نامگذاری شده‌اند. نمونه‌ها ترکیبی از سه فاز است و فازهای ناخالصی تقریباً قابل مشاهده نیستند. معمولاً برای تخمین درصد حجمی فازها در یک نمونه شدت همه قله‌های مربوط به سه فاز را در نظر می‌گیرند [۶]. ما نیز به این طریق درصد حجمی را حساب کردیم و نتایج حاصله در جدول ۱ آمده است. ملاحظه می‌شود که با افزایش مدت زمان آسیاب، درصد حجمی فاز Bi-۲۲۲۳ از ۷۰٪ به ۸۷٪ افزایش، درصد حجمی فاز Bi-۲۲۱۲ از ۲۰٪ به ۷٪ کاهش و درصد حجمی فاز Bi-۲۲۰۱ از ۱۰٪ به ۶٪ کاهش یافته است. این نتایج نشان می‌دهند که کوچکی اندازه ذرات اولیه باعث بهبود تشکیل فاز Bi-۲۲۲۳ می‌شود. با کاهش اندازه دانه‌ها، نسبت سطح به حجم افزایش می‌یابد و این امر باعث می‌شود سطح تماس ذرات افزوده شود. به نظر می‌رسد پودر همگن و ریز اولیه و قرار گرفتن بهتر آنها در کنار هم می‌تواند



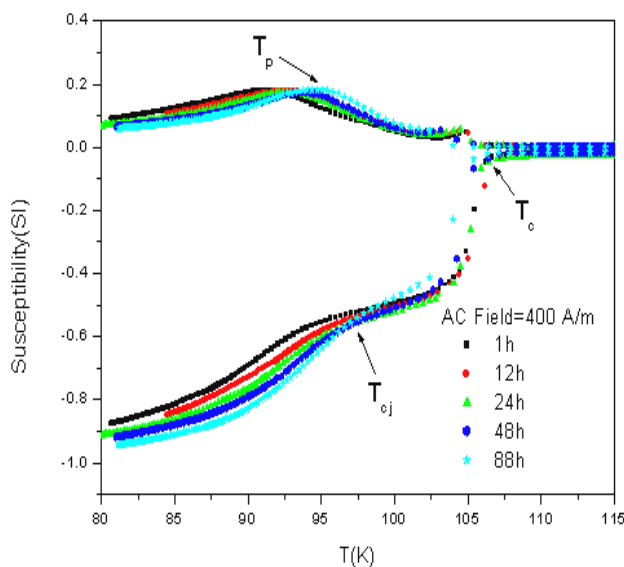
شکل ۳. پراش اشعه ایکس نمونه‌ها.



شکل ۴. تصویر SEM نمونه ۱ و ۸۸ ساعت آسیاب شده.

جدول ۱. درصد حجمی فازهای ۱، ۲ و ۳.

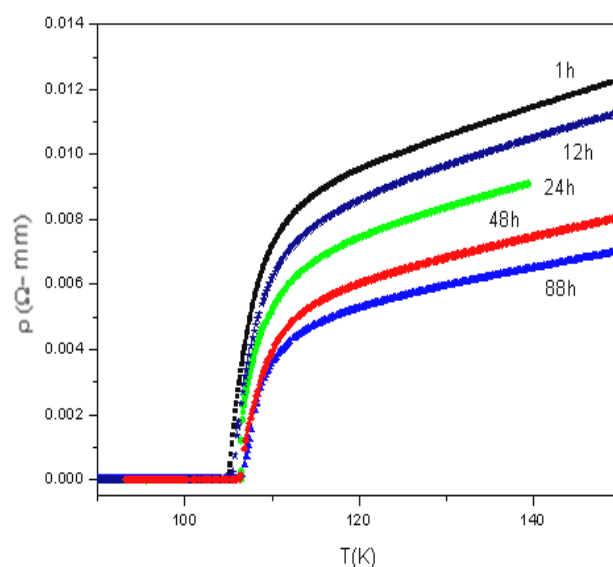
مدت آسیاب (h)	Bi ۲۲۲۳ (%)	Bi ۲۲۱۲ (%)	Bi ۲۲۰۱ (%)
۱	۷۰	۲۰	۱۰
۱۲	۸۱	۱۰	۹
۲۴	۸۶	۸	۶
۴۸	۸۶	۸	۶
۸۸	۸۷	۷	۶



شکل ۶. تغییرات پذیرفتاری مغناطیسی AC نمونه‌ها بر حسب دما در فرکانس ۳۳۳Hz و میدان ۴۰۰ (A/m).

اولیه قرار گرفته است، به طوری که با ریز شدن ذرات اولیه مقدار آن افزایش یافته است. این نتایج نشان می‌دهند که ارتباط بین دانه‌ای با ریز شدن ذرات اولیه و بزرگ شدن دانه‌ها بعد از کلوخه سازی بهبود یافته است.

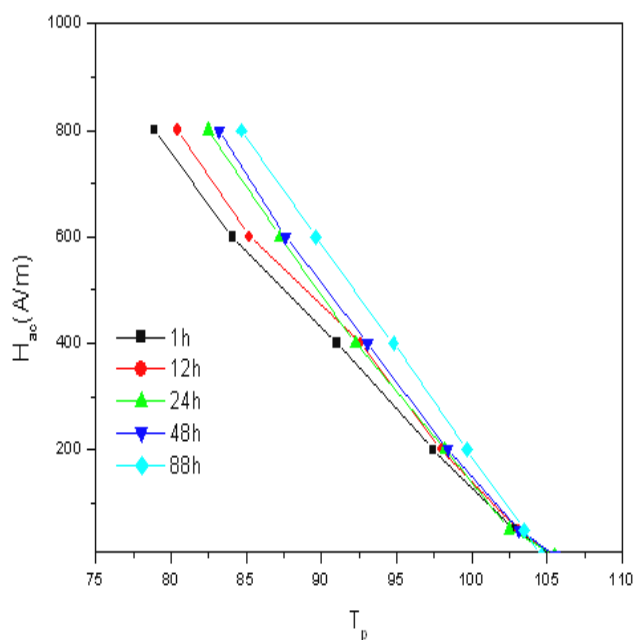
در شکل ۷ منحنیهای تغییرات دمایی پذیرفتاری مغناطیسی نمونه‌ها در میدانهای مختلف و فرکانس ۳۳۳ Hz نشان داده شده است. اعمال میدان مغناطیسی متناوب به نمونه‌ها، اختلاف فازی در تابع پاسخ نمونه‌ها به وجود می‌آورد که شامل دو جمله همفاز  $\chi'$  و غیر همفاز  $\chi''$  است. برای یک نمونه ابررسانا،  $\chi'$  معادل پوشش ابرجریان و  $\chi''$  اتلاف انرژی ناشی از پسماند مغناطیسی و حرکت خطوط شار مغناطیسی هستند. نتایج حاصل از اندازه‌گیری پذیرفتاری متناوب و تغییرات منحنیهای  $\chi'(T)$  (قسمت حقیقی منحنی) و  $\chi''(T)$  (قسمت موهومی منحنی) با میدان مغناطیسی متناوب، اطلاعات با ارزشی درباره خصوصیات ساختاری نمونه در برداشته می‌توان با استفاده از آن تعدادی از پارامترهای مشخصه و تغییرات آنها را بررسی کرد. مهمترین خصوصیتی که در این رابطه می‌توان آن را نشان داد، خواص ابررسانندگی دانه‌ای و بین دانه‌ای است که تأثیر مستقیمی بر روی منحنیهای  $\chi'(T)$ ,  $\chi''(T)$  دارد. با افزایش



شکل ۵. تغییرات مقاومت ویژه نمونه‌ها با دما.

دارد و گذار به حالت ابررسانایی با مقاومت صفر در همه نمونه‌ها مشاهده می‌شود. همچنین ملاحظه می‌شود که مقاومت حالت بهنجار از نمونه ۱ ساعتی تا نمونه ۸۸ ساعتی کاهش پیدا می‌کند. دمای گذار  $T_c$ ، تقریباً برای همه نمونه‌ها یکسان است. با افزایش مدت آسیاب، دنباله مشاهده شده در دماهای پایین از بین می‌رود که نشان دهنده قوی شدن ارتباطات بین دانه‌ای در این نمونه‌ها است. کاهش مقاومت حالت بهنجار همراه با از بین رفتن دنباله در منحنیهای مقاومت و ثابت ماندن دمای گذار از نمونه ۱ ساعتی تا نمونه ۸۸ ساعتی نشان دهنده این است که ارتباطات بین دانه‌ای تحت تأثیر ریز شدن ذرات اولیه قرار گرفته‌اند و با افزایش زمان آسیاب پودرهای اولیه و به عبارت دیگر بزرگ شدن اندازه دانه‌ها بعد از کلوخه سازی و افزایش درصد فاز Bi-2223 تقویت شده‌اند.

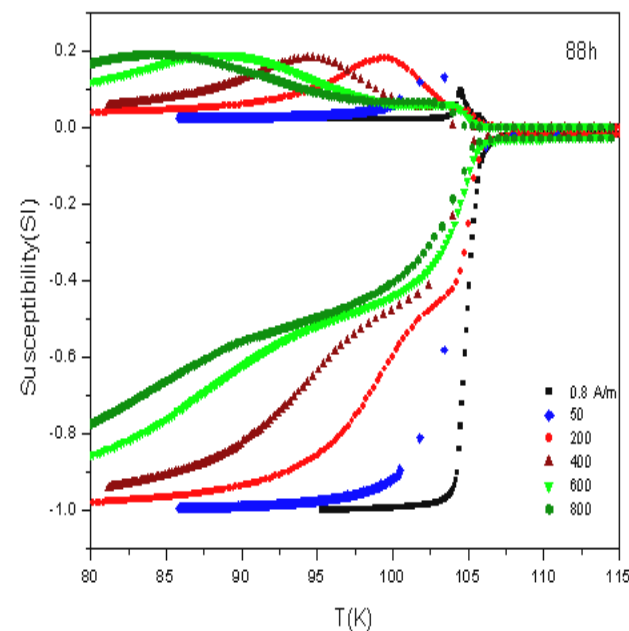
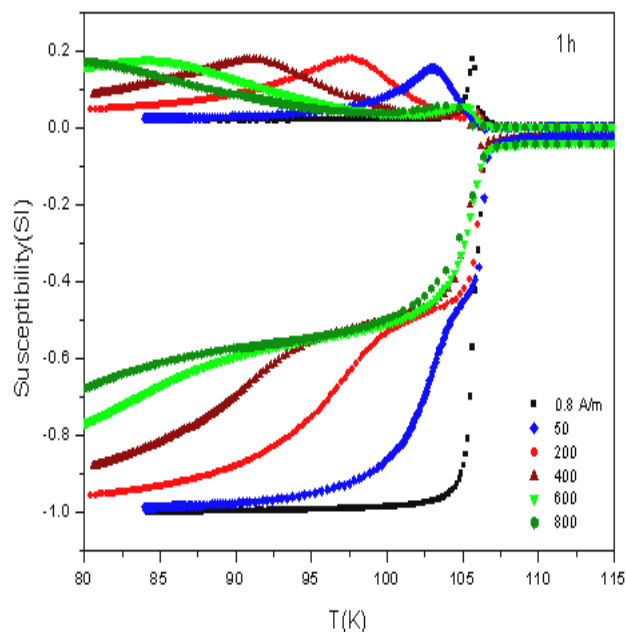
در شکل ۶ تغییرات مولفه‌های حقیقی و موهومی پذیرفتاری مغناطیسی AC نمونه‌ها بر حسب دما در فرکانس ۳۳۳Hz و میدان ۴۰۰ (A/m) نشان داده شده است. همان طور که مشاهده می‌شود مؤلفه حقیقی بر حسب T شامل دو مرحله است که منعکس کننده گذار درون دانه‌ای و بین دانه‌ای است. دمای گذار درون دانه‌ای،  $T_c$  برای همه نمونه‌ها تقریباً یکسان است. اما دمای گذار بین دانه‌ای،  $T_{ej}$  تحت تأثیر اندازه ذرات



شکل ۸. تغییرات دامنه میدان،  $H_{ac}$  بر حسب دمای قله،  $T_p$  برای همه نمونه‌ها.

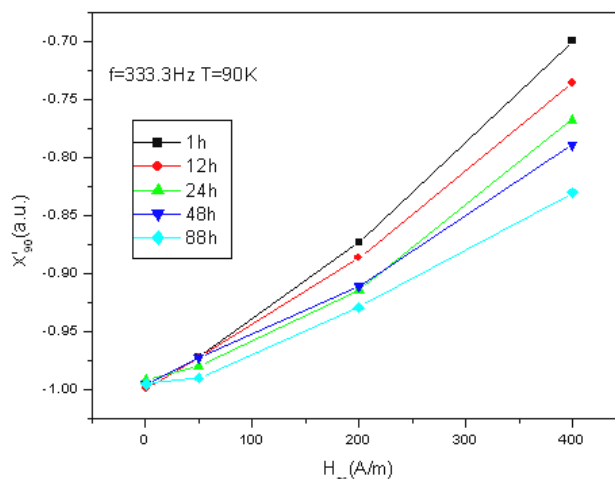
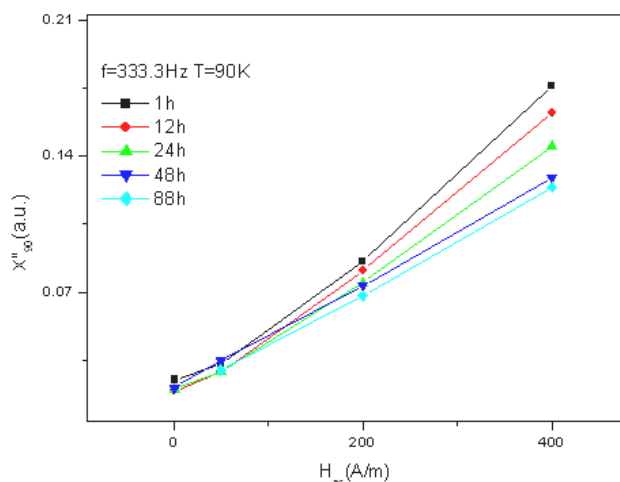
بین دانه‌های ابررسانا در دماهای پایین‌تری اتفاق می‌افتد. همچنین با افزایش میدان اعمالی، پهنای منحنی موهومی افزایش می‌یابد که دلیل آن نفوذ شار مغناطیسی در قسمت بیشتری از ماده است. با توجه به میدانهای اعمالی، مشخصه درون دانه‌ای خاصی در قسمت موهومی "χ" نمونه‌ها مشاهده نمی‌شود. عدم حضور قله در منحنی "χ" در قسمت درون دانه‌ای ناشی از پایین‌تر بودن اتلاف انرژی مغناطیسی نسبت به قسمت بین دانه‌ای است.

از شکل ۷ پیداست که با افزایش میدان، قله مربوط به قسمت موهومی، "χ" به سمت دماهای پایین‌تر منتقل شده و پهنای گذار افزایش یافته است. همان‌طور که ملاحظه می‌شود میزان جابه‌جایی قله در نمونه ۸۸ ساعتی کمتر از نمونه ۱ ساعتی است. همچنین تأثیر میدان بر قسمت بین‌دانه‌ای مولفه حقیقی، χ' در نمونه ۱ ساعتی بیشتر از نمونه ۸۸ ساعتی است که نشان دهنده قوی شدن ارتباطات بین دانه‌ای در نمونه ۸۸ ساعتی است. در شکل ۸ میزان جابه‌جایی قله بر حسب دامنه میدان برای نمونه‌ها نشان داده شده است. بر طبق مدل بین چگالی جریان بحرانی در دمای قله،  $T_p$  برای یک



شکل ۷. تغییرات دمایی پذیرفتاری مغناطیسی نمونه‌های ۱ و ۸۸ ساعت آسیاب شده در میدانهای مختلف و فرکانس ۳۳۳ Hz.

دما میدان مغناطیسی ابتدا در بین دانه‌های ابررسانا نفوذ می‌کند (تشکیل گردابه‌های شار بین دانه‌های ابررسانا)، که متناظر با دومین تشدید قسمت حقیقی منحنی پذیرفتاری است، سپس به درون دانه‌های ابررسانا نیز شروع به نفوذ می‌کند که متناظر با اولین افت قسمت حقیقی منحنی پذیرفتاری است. همان‌طور که مشاهده می‌کنیم با افزایش میدان مغناطیسی، نفوذ میدان در



شکل ۹. تغییرات قسمت موهومی و حقیقی پذیرفتاری مغناطیسی AC بر حسب میدان اعمال شده در دمای ۹۰ کلونین برای نمونه‌های مختلف.

طوری که نمونه ۸۸ ساعته دارای کمترین شیب و در نتیجه بیشترین چگالی جریان بحرانی است.

#### ۴. نتیجه گیری

در این مقاله اثر اندازه ذرات پودرهای اولیه در ریز ساختار و خواص بین دانه‌ای ابررسانای بس بلور Bi-2223 را بررسی کردیم. این بررسی با مطالعه نتایج حاصل از پراش اشعه ایکس (XRD)، ریخت شناسی میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM)، اندازه‌گیری پذیرفتاری مغناطیسی و مقاومت ویژه نمونه‌ها صورت گرفت. این آنالیزها حاکی از این است که اندازه دانه‌ها طی عملیات کلوخه سازی رشد می‌یابند که میزان رشد دانه‌ها برای حالتی که ذرات اولیه ریزترند بیشتر است. این کار باعث می‌شود که ارتباطات بین دانه‌ای بهتر شده، و به تبع آن چگالی جریان بحرانی افزایش یابد.

#### قدردانی

از معاونت پژوهشی دانشگاه صنعتی اصفهان به خاطر حمایت از این کار تشکر می‌کنیم.

نمونه با مقطع مستطیلی به صورت  $J_c = H_{ac} / a \approx H_{ac} / \sqrt{ab}$  داده می‌شود، که در آن مساحت سطح مقطع  $2a \times 2b$  است. بنابراین از تغییرات دمایی  $H_{ac}$  می‌توان تغییرات چگالی جریان بحرانی را تعیین نمود [۱۰]. شکل ۸ بیانگر این است که میزان جابه‌جایی قله با افزایش زمان آسیاب کاهش یافته و برای نمونه ۸۸ ساعته کمتر است. میزان جابه‌جایی قله بر حسب دامنه میدان متناسب با قدرت نیروی میخکوبی است، هر چه این جابه‌جایی کمتر باشد، نشان‌دهنده قوی بودن نیروی میخکوبی و به تبع آن بالا بودن چگالی جریان بحرانی بین دانه‌ای است. بنابراین روند چگالی جریان بحرانی بین دانه‌ای از نمونه ۱ ساعته به ۸۸ ساعته افزایشی است. همچنین از روی تغییرات قسمت حقیقی و موهومی پذیرفتاری مغناطیسی بر حسب میدان در یک دمای ثابت می‌توان اطلاعاتی درباره‌ی چگالی جریان بحرانی به دست آورد.

شکل ۹ تغییرات قسمت موهومی و حقیقی پذیرفتاری مغناطیسی AC بر حسب میدان اعمال شده در دمای ۹۰ کلونین برای نمونه‌های مختلف را نشان می‌دهد. شیب خط در این شکل با میدان نفوذی نسبت عکس دارد و چگالی جریان بحرانی با این میدان متناسب است [۱۱]. پس هر چه شیب کمتر باشد چگالی جریان بحرانی بیشتر است. ملاحظه می‌شود که با افزایش زمان آسیاب شیب این منحنیها کاهش می‌یابد. به

## مراجع

- Dou, *Physica C* **300** (1998) 43.
6. P Kameli, H Salamati and M Eslami, *Solid State communication* 137 (2006) 38.
  7. Y C Guo, J Horvat, H K Liu and S X Dou, *Physica C* **300** (1998) 38.
  8. Q Li, K Brodersen, A Hjuler and T Freltofi, *Physica C* **217** (1993) 38.
  9. J Jiang and J S Abell, *Physica C* **299** (1998) 13.
  10. C B Been, *Rev. Mod. Phys.* **36** (1964) 31.
  11. S Celebi, *Physica C* **316** (1999) 251.
  1. J W Ko, J M Yoo Kim, K H Oh, S J Choe and H Chung, *Cryogenics* **43** (2003) 549.
  2. J Passai, M Lahtinen, J Thure Eriksson and M Polak, *Physica C* **259** (1996) 1-9.
  3. N D Browing, P D Nellist, D P Norton, M F Chisholm and S J Pennycook, *Physica C* **294** (1998) 183.
  4. H Salamati and P Kameli, *Solid. State. Communication* **125** (2003) 407.
  5. J Horvat, Y C Guo, B Zeimetz, H K Liu and S X