

تأثیر دمای کلوخه‌سازی بر خواص بین دانه‌ای و رفتار ارتباطات ضعیف ابررساناهای حجمی (Bi-Pb) ۲۲۲۳

پرویز کاملی^۱، هادی سلامتی^۲، محمود اسلامی^۳ و محمدعلی خطیبی^۱

۱. گروه فیزیک دانشگاه تربیت معلم آذربایجان، کیلومتر ۳۵ جاده تبریز - مراغه
۲. دانشکده فیزیک دانشگاه صنعتی اصفهان، اصفهان

(دریافت مقاله: ۱۰/۱۰/۸۳؛ دریافت نسخه‌نهایی: ۱۵/۱۰/۸۴)

چکیده

در این مقاله تأثیر دمای کلوخه‌سازی بر خواص بین دانه‌ای و رفتار ارتباطات ضعیف نمونه‌های چند بلوری $(\text{Bi}_{11}\text{Pb}_{24})\text{Sr}_7\text{Ca}_7\text{Cu}_2\text{O}_y$ با استفاده از اندازه‌گیری طیف پراش پرتو ایکس، مقاومت الکتریکی و پذیرفتاری مغناطیسی مورد مطالعه قرار گرفته است. در این پژوهه نمونه با دماهای مختلف کلوخه‌سازی، ساخته شدند که در آنها درصد فاز Bi(۲۲۱۲) تغییر قابل ملاحظه‌ای دارد. مشاهده شده است که کاهش فاز Bi(۲۲۲۳) نسبت به فاز Bi(۲۲۱۲) با افزایش دمای کلوخه‌سازی باعث بهبود ارتباطات بین دانه‌ای می‌شود. وابستگی دمایی چگالی جریان بحرانی توسط مدل بین مورد بررسی قرار گرفت. تغییرات چگالی جریان بحرانی بر حسب دما نشان می‌دهد که با کاهش درصد فاز Bi(۲۲۱۲)، افزایش J می‌یابد. این نتایج نشان می‌دهند که فاز Bi(۲۲۱۲) در مراتزهای دانه‌ای قرار گرفته و باعث کاهش زوج‌شدنگی دانه‌ها می‌شود.

واژه‌های کلیدی: ابررساناهای دمای بالا، کلوخه‌سازی، ارتباطات ضعیف و مدل بین

دلایل ممکن برای شکل‌گیری این ارتباطات ضعیف می‌توان به جهت‌گیری نامناسب در مراتزهای دانه‌ای و یا تغییرات ترکیبی، ساختاری و کمبود اکسیژن در آنها اشاره نمود [۳ و ۴]. ترکیب ابررسانای (Bi-Pb)₂Sr₇Ca₇Cu₂O_y (Bi-2223) با دمای گذار حدود ۱۱۰ K 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 و پیشرفت‌های خوبی در بهبود خواص تراپری دار است. با این حال محدودیتها عمدتاً در کاربرد این ترکیب، رفتار ارتباط ضعیف مراتزهای دانه‌ای و قدرت میخکوبی

۱. مقدمه از نقطه نظر کاربردی ساخت ابررساناهای با چگالی جریان بحرانی بالا از اهمیت زیادی برخوردار است. اما همان طور که در اولین مقاله مربوط به ابررساناهای دمای بالا توسط بدنورز و مولر اشاره شد، مراتزهای دانه‌ای در چگالی جریان بحرانی نمونه‌های چند بلوری ابررساناهای دمای بالا محدودیت ایجاد می‌کنند [۱]. مراتزهای دانه‌ای در ابررساناهای دمای بالا باعث ایجاد ارتباطات ضعیف (weak-links) می‌شوند، به طوری که ابررساناهای چند بلوری را می‌توان به صورت آرایه‌ای از دانه‌های ابررسانا در نظر گرفت، که به شکل پیوندگاههای ضعیف جوزفسون عمل می‌کنند. این ارتباطات ضعیف باعث کاهش جریان بحرانی در ابررساناهای دمای بالا می‌شوند [۲]. از

شده در مرحله کلوخه‌سازی در فشار آزمایشگاه و بدون استفاده از شار اکسیژن انجام شد، زیرا نمونه‌های $\text{Bi}_x\text{Sr}_y\text{Ca}_z\text{Cu}_n\text{O}_y$ (BSCCO) در هنگام تشکیل فاز فقط اکسیژنهای اضافی را از دست می‌دهند و با کمبود اکسیژن روبه‌رو نمی‌شوند. در مرحله اول از دمای حدود ۵۰۰ تا ۷۰۰ درجه سانتیگراد گرم کردن با سرعت ۰/۲ درجه بر دقیقه انجام می‌شود و از ۷۰۰ تا دمای نهایی این آهنگ ۰/۱۲ درجه بر دقیقه است. چهار نمونه به مدت ۱۸۰ ساعت در دماهای مختلف الف- ۸۳۰ ب- ۸۴۰ ج- ۸۵۰ و د- ۸۶۰ درجه سانتیگراد درجه بر دقیقه تا دمای ۶۰۰ درجه سانتیگراد خنک شده و سپس کوره خاموش می‌شود.

بررسی ساختاری نمونه‌های به دست آمده توسط دستگاه پراش پرتوی ایکس (XRD) ساخت کارخانه فیلیپس (مدل XPERT) انجام شده است. پذیرفتاری مغناطیسی نمونه‌های به دست آمده توسط دستگاه اندازه‌گیری پذیرفتاری مغناطیسی ساخت شرکت لیک سور^۱ مدل ۷۰۰۰ انجام شد. مقاومت نمونه‌ها نیز توسط دستگاه اندازه‌گیری یخچال مدار بسته ساخت شرکت لی بولد^۲ اندازه‌گیری شد. اندازه‌گیری مقاومت و کترول دمای سیستم به وسیله یک کامپیوتر شخصی مجهز به یک ایترفیس^۳ و یک برنامه کامپیوترا، توسط یک حسگر مقاومتی PT-۱۰۰ و دستگاه کترول دمای قابل برنامه‌ریزی انجام شده است.

۳. نتایج و بحث

در شکل ۱ نتایج حاصل از اندازه‌گیری طیف پراش اشعه X نمونه‌ها نشان داده شده است. همان طور که ملاحظه می‌شود نمونه‌ها شامل ترکیبی از فازهای Bi(۲۲۲۳)، Bi(۲۲۱۲) و Bi(۲۲۰۱) به عنوان فازهای اصلی هستند. با بررسی نتایج طیفها مشاهده می‌شود که درصد فاز Bi(۲۲۱۲) با افزایش دمای کلوخه‌سازی کاهش یافته و درصد فاز Bi(۲۲۲۳) افزایش

ضعیف آنها است.

نشان داده شده است که یکی از عوامل محدود کننده چگالی جریان بحرانی حضور فازهای ثانویه در این ترکیب است [۷-۵]. به عنوان مثال مشاهده شده که فاز Bi(۲۲۱۲) به صورت گسترده‌ای در بین دانه‌ها قرار گرفته و مانع عبور جریان می‌شود [۶]. همین طور کاهش فاز Bi(۲۲۱۲) در ترکیب Bi(۲۲۲۳) باعث افزایش چگالی جریان بحرانی شده است. اما یکی از مسائل عمده ابررساناهای Bi(۲۲۲۳) این است که سازوکارهای محدود کننده جریان به طور کامل مشخص نیست. مشکل اصلی دیگر در مورد ترکیب Bi(۲۲۲۳) این است که ساخت نمونه‌های تک‌فاز و خالص این ترکیب تقریباً غیر ممکن است. در این مقاله ما به بررسی اثر دمای کلوخه‌سازی بر رفتار ارتباطات ضعیف و خواص بین دانه‌ای ابررسانای Bi_{۱/۶۶}Pb_{.۳۴}(Sr_۷Ca_۷Cu_۳O_y) می‌پردازیم.

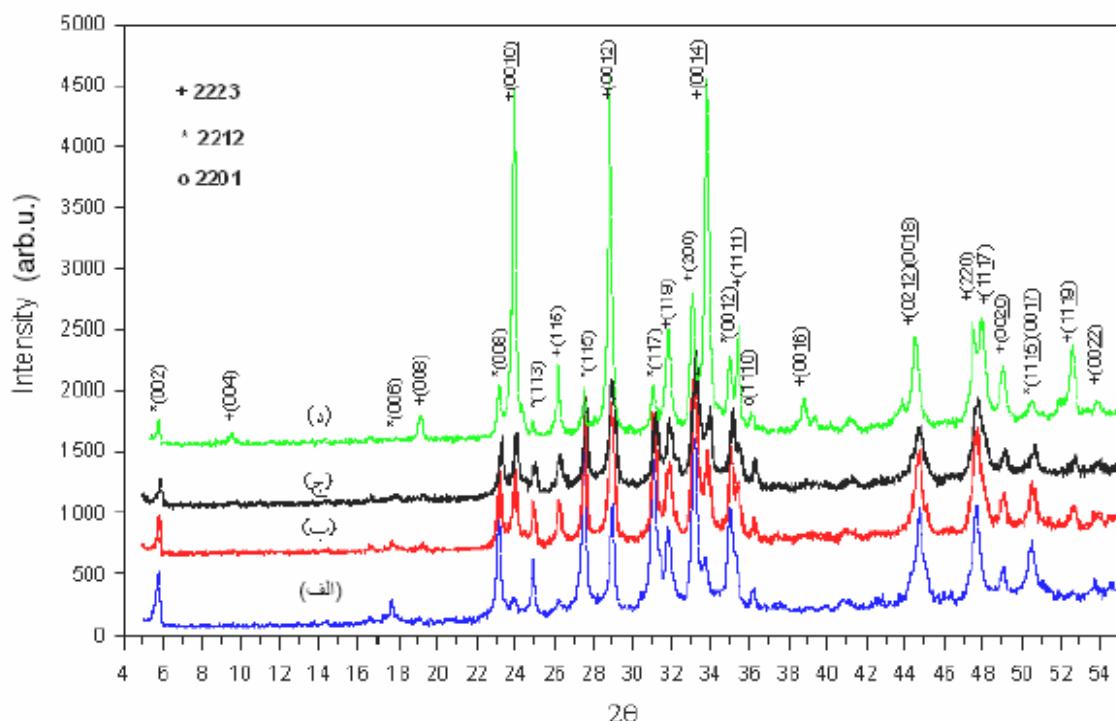
۲. ساخت و آزمایشها

برای ساخت نمونه‌های مورد نیاز از روش معمول واکنش حالت جامد استفاده شده است. مواد اولیه CaCO_۳, Bi_۲O_۳, CuO و SrCO_۳ و PbO با درصد خلوص بهتر از ۹۹/۹۹ درصد و استوکیومتری مناسب با یکدیگر مخلوط و برای مدت یک ساعت آسیاب شدند. محصول به دست آمده در کروزه‌های (ظرف) آلومینا ریخته شده و در کوره‌های مکعبی برای مدت ۲۴ ساعت در دمای ۸۱۰ درجه سانتیگراد تکلیس شدند. عمل آسیاب و تکلیس برای دو بار متوالی تکرار شد. محصول به دست آمده در این مرحله آسیاب شده و در قالبهای مخصوص تحت فشاری معادل ۱۰ تن به صورت قرصهایی به قطر حدود ۱۰ میلی‌متر و ضخامت ۲ تا ۳ میلی‌متر در آمدند. یکی از مهمترین مراحل ساخت نمونه مرحله کلوخه‌سازی است. این مرحله نیز شامل دو قسمت گرم کردن و خنک کردن است که هر دو قسمت دارای اهمیت ویژه‌ای هستند. برای این مرحله قرصهای تهیه شده در روی قطعه‌ای از آلومینا که توسط ورقه‌ای از طلا پوشیده شده بود قرار داده شد و در همان کوره‌ای که عمل تکلیس انجام شد، قرار گرفتند. عملیات حرارتی انجام

۱. Lake Shore

۲. Leybold

۳. Interface



شکل ۱. طیف پراش اشعه X نمونه‌های (الف)، (ب)، (ج) و (د).

این حال افزایش کمی هم در مقدار درصد Bi(۲۲۰۱) با افزایش دمای کلوخسازی دیده می‌شود.

یکی از رفتارهای جالب ابررساناهای دمای بالای چند بلوری تکفاز، وجود گذار دو مرحله‌ای از حالت بهنجار به حالت ابررسانایی است. منحنی مقاومت ویژه، ρ بر حسب دما، T نیز شامل دو مرحله است [۱۰]. 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. این رفتار در منحنی مشتق مقاومت بر حسب دما $\left(\frac{d\rho}{dT}\right)$ به صورت بهتری مشاهده می‌شود. متناظر با گذار دو مرحله‌ای مقاومت (T)، منحنی مشتق مقاومت بر حسب دما قله‌ای را در دماهای بالا و دنباله‌ای^۱ را در دماهای پایین نشان می‌دهد [۳]. در واقع قله نشان دهنده گذار ابررسانایی در درون دانه‌ها است و

می‌یابد. در حالی که درصد فاز Bi(۲۲۰۱) کمی افزایش یافته است. روش‌های مختلفی برای محاسبه درصد حجمی فازها در ترکیب BSCCO پیشنهاد شده است. برخی محققان از همه قله‌های مربوط به فازهای Bi(۲۲۰۱)، Bi(۲۲۱۲) و Bi(۲۲۲۳) برای محاسبه درصد فازها استفاده کردند [۸، ۹]. ما هم از همین روش برای محاسبه درصد فازها استفاده کردیم.

$$\text{Bi}(۲۲۲۳)(\%) \approx \frac{\sum I(\text{Bi}۲۲۲۳)}{\sum I(\text{Bi}۲۲۲۳) + \sum I(\text{Bi}۲۲۱۲) + \sum I(\text{Bi}۲۰۱)} \times 100$$

$$\text{Bi}(۲۲۱۲)(\%) \approx \frac{\sum I(\text{Bi}۲۲۱۲)}{\sum I(\text{Bi}۲۲۲۳) + \sum I(\text{Bi}۲۲۱۲) + \sum I(\text{Bi}۲۰۱)} \times 100$$

$$\text{Bi}(۲۰۱)(\%) \approx \frac{\sum I(\text{Bi}۲۰۱)}{\sum I(\text{Bi}۲۲۲۳) + \sum I(\text{Bi}۲۲۱۲) + \sum I(\text{Bi}۲۰۱)} \times 100$$

در اینجا I شدت قله مربوط به فازهای موجود است. نتایج حاصل در جدول ۱ آورده شده است. همان طور که از جدول مشاهده می‌شود درصد فاز Bi(۲۲۱۲) کاهش قابل ملاحظه‌ای را نشان می‌دهد. به طوری که مقدار آن از ۴۴ درصد برای نمونه (الف) به ۱۶ درصد برای نمونه (د) کاهش پیدا کرده است. با

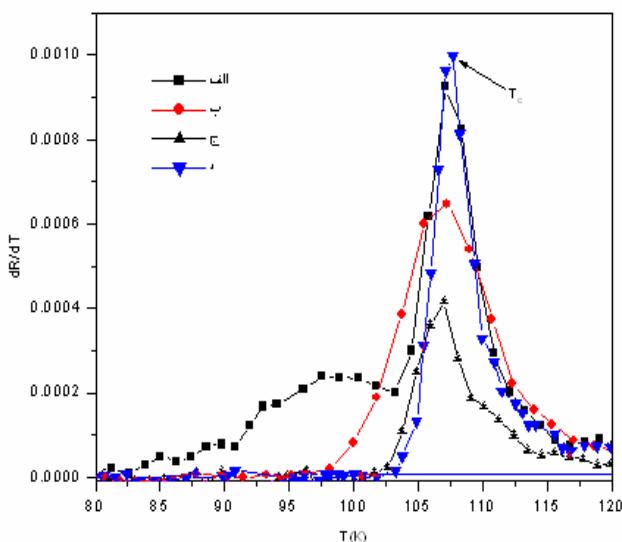
جدول ۱. درصد فازهای موجود در نمونه‌ها.

نمونه	Bi(۲۰۰۱)	Bi(۲۲۱۲)	Bi(۲۲۲۳)	دماهی کلوخه سازی (درجه سانتی گراد)
الف	۲/۷	۴۴/۲	۵۳/۱	۸۳۰
ب	۴/۰	۳۵/۶	۶۰/۴	۸۴۰
ج	۴/۴	۳۲/۹	۶۲/۷	۸۵۰
د	۶/۴	۱۴/۰	۷۹/۶	۸۶۰

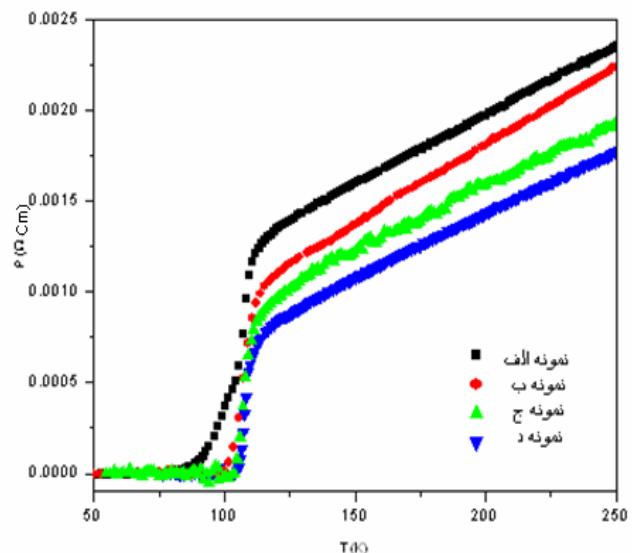
دنباله مربوط به زوج‌شدنگی بین دانه‌ای است. از این رو از عبارت نواحی ضعیف یا ارتباطات ضعیف برای نواحی ساختاری که مسئول چنین رفتارهایی در نمونه هستند استفاده می‌شود.

در شکل ۲-الف تغییرات مقاومت الکتریکی نمونه‌ها با دما نشان داده شده است. در این شکل مشاهده می‌شود که مقاومت در دماهای بالای دمای گذار T_c ، رفتار کاملاً فلزی دارد و گذار به حالت ابررسانایی با مقاومت صفر در همه نمونه‌ها مشاهده می‌شود. همچنین ملاحظه می‌شود که مقاومت حالت بهنجار از نمونه (الف) تا نمونه (د) کاهش پیدا می‌کند و دنباله مربوط به ارتباطات بین دانه‌ای در نمونه‌هایی که در دماهای پایین کلوخه‌سازی شده‌اند با وضوح بهتری دیده می‌شود، این رفتار در منحنی مشتق مقاومت بر حسب دما کاملاً آشکار است (شکل ۲-ب). دمای گذار T_c نمونه‌ها که از روی بیشینه مشتق مقاومت بر حسب دما به دست می‌آید، تقریباً برای همه نمونه‌ها یکسان است. اما همان طور که اشاره شد با افزایش دمای کلوخه‌سازی دنباله مشاهده شده در دماهای پایین از بین می‌رود که نشان دهنده بهبود 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 (الف) تا (د) نشان دهنده این است که با افزایش دمای کلوخه سازی نمونه‌ها همگن‌تر شده و همچنین ارتباطات بین دانه‌ای تحت تأثیر مقدار فازهای Bi(۲۲۱۲) و Bi(۲۰۰۱) که دمای گذار پایین‌تری دارند قرار گرفته است، در حالی که دمای گذار دانه‌ها ثابت باقی می‌ماند. بنابراین به نظر می‌رسد که فازهای

علاوه بر مقاومت الکتریکی، پذیرفتاری مغناطیسی $\chi' - i\chi'' = ac$ نیز به میزان قابل توجهی برای مطالعه خواص ابررساناهای دمای بالا مورد استفاده قرار گرفته است [۷-۵] به ویژه از روش اندازه‌گیری پذیرفتاری مغناطیسی به عنوان یک روش غیر مخرب برای پیدا کردن مشخصات پولفه‌های جوژفسون، مرزدانه‌ها یا مولفه بین دانه‌ای نام برده می‌شوند، استفاده می‌شود. هنگامی که میدان مغناطیسی بزرگتر از میدان بحرانی پایینی جوژفسون به یک نمونه ابررسانای دمای بالای چند بلوری اعمال می‌شود، میدان به شبکه ارتباطات ضعیف بین دانه‌ای نفوذ می‌کند و باعث ایجاد گردشارهای جوژفسون در داخل نمونه می‌شود. تغییرات مکانی انرژی جفت‌شدنگی جوژفسون و بی نظمی در آرایه مرزهای دانه‌ای موجب تغییرات مکانی در انرژی گردشارهای می‌شود که نتیجه آن میخکوبی بین دانه‌ای است. اندازه‌گیری پذیرفتاری مغناطیسی ac با استفاده از میدانهای ضعیف روش بسیار مفیدی برای فهم سازوکارهای میخکوبی شار در مرزهای دانه‌ای است. با مطالعه تغییرات $(T)\chi'$ با میدان و فرکانس اعمال شده، می‌توان برخی از خواص غیر ذاتی ابررساناهای چند بلوری، از قبیل چگالی جریان بحرانی، قدرت زوج‌شدنگی دانه‌ها، انرژی



شکل ۲. (ب) مشتق مقاومت نمونه‌ها بر حسب دما.

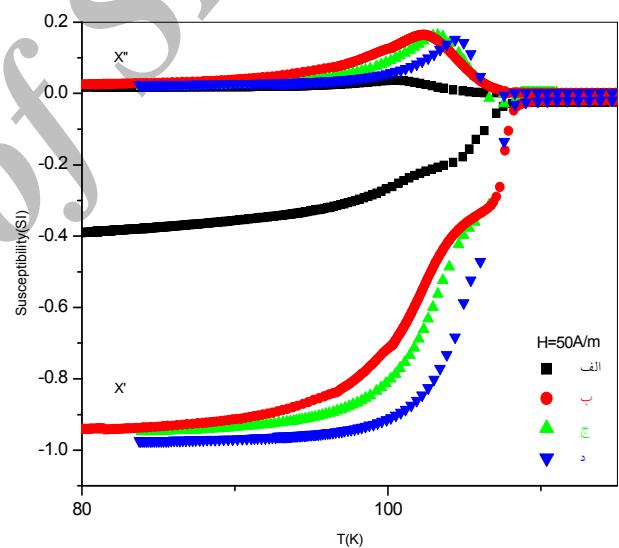


شکل ۲. (الف) تغییرات مقاومت ویژه نمونه‌ها با دما.

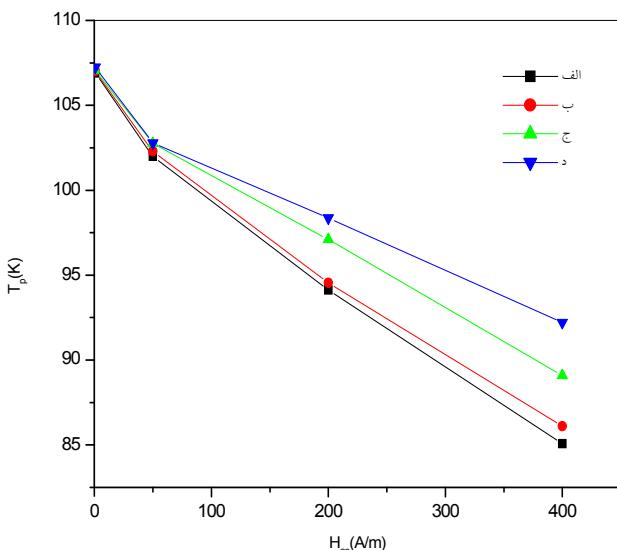
تقریباً یکسان است اما دمای گذار بین دانه‌ای، T_{cj} به شدت تحت تأثیر دمای کلوخمسازی قرار گرفته است به طوری که با افزایش دمای کلوخمسازی مقدار آن افزایش یافته است. این نتایج نشان می‌دهند که زوج شدگی بین دانه‌ای با افزایش دمای کلوخمسازی بهبود یافته است.

در شکل ۴ منحنی‌های تغییرات دمایی پذیرفتاری مغناطیسی نمونه‌ها در میدانهای مختلف و فرکانس 333 Hz نشان داده شده است. از شکل ۴ به وضوح دیده می‌شود که با افزایش میدان، قله مربوط به قسمت موهومنی $\chi''(T_p)$ به سمت دماهای پایین تر منتقل شده و پهنای گذار افزایش یافته است. همان طور که ملاحظه می‌شود میزان جابه‌جایی قله در نمونه (د) از همه نمونه‌ها کمتر است. همچنین تأثیر میدان بر قسمت بین دانه‌ای مولفه حقیقی، χ' در نمونه (الف) بیشتر از همه نمونه‌ها است. میزان جابه‌جایی قله بر حسب دامنه میدان مناسب با قدرت نیروی میخکوبی است. هر چه این جابه‌جایی کمتر باشد، نشان دهنده قوی بودن نیروی میخکوبی و به تبع آن بالا بودن چگالی جریان بحرانی خواهد بود.

در شکل ۵ تغییرات دمای قله، T_p بر حسب دامنه میدان، H_{ac} برای همه نمونه‌ها رسم شده است. همان طور که به وضوح دیده می‌شود میزان جابه‌جایی دمای قله، T_p با دامنه میدان، با

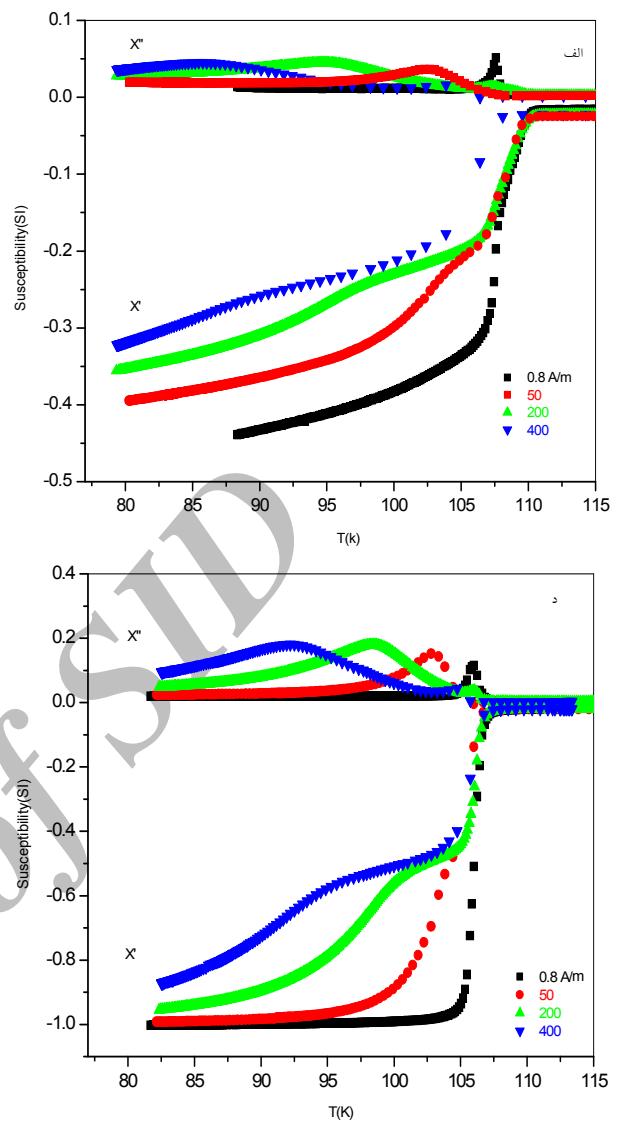
شکل ۳. پذیرفتاری مغناطیسی ac نمونه‌ها بر حسب دما در فرکانس 333 Hz و میدان 50 A/m .

فعالسازی میخکوبی و بسیاری از ویژگی‌های ساختار ریز یک نمونه را بررسی کرد. در شکل ۳ تغییرات مولفه‌های حقیقی و موهومنی پذیرفتاری مغناطیسی ac نمونه‌ها بر حسب دما در فرکانس 333 Hz و میدان 50 A/m نشان داده شده است. همان طور که مشاهده می‌شود منحنی χ' 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



شکل ۵. تغییرات دمای قله، T_p بر حسب دامنه میدان، H_{ac} برای نمونه‌ها.

مقایسه داده‌های مقاومت (شکل ۲) و پذیرفتاری مغناطیسی (شکل ۳ و ۴) برای نمونه‌ها نشان می‌دهد که فاز Bi(۲۲۱۲) رفتار ارتباطات ضعیف نمونه‌های چند بلوری Bi(۲۲۲۳) را تحت تأثیر قرار داده است. این به آن معنا است که فاز Bi(۲۲۱۲) در مرزهای دانه‌ای قرار گرفته و نقش ارتباطات ضعیف را در ترکیب ابررسانای Bi(۲۲۲۳) بازی می‌کند. به عبارت دیگر نواحی بین دانه‌ای در این نمونه‌ها، تا دمای گذار فاز Bi(۲۲۱۲) ($\approx 85K$) ابررسانا نیستند و دنباله مشاهده شده در منحنی مقاومت نشان دهنده ضعیف بودن زوچ شدگی دانه‌ها است.



شکل ۴. تغییرات دمایی پذیرفتاری مغناطیسی نمونه‌های (الف) و (د) در میدانهای مختلف و فرکانس 333Hz .

۴. نتیجه‌گیری

تأثیر دمای کلوخه‌سازی بر نمونه‌های چند بلوری ابررساناهای XRD، حجمی (Bi-Pb) (شکل ۲۲۲۳) با استفاده از اندازه‌گیری طیف MDT، مقاومت و پذیرفتاری مغناطیسی مورد مطالعه قرار گرفته است. مشاهده شد که با افزایش دمای کلوخه‌سازی درصد فاز Bi(۲۲۱۲) کاهش چشمگیری را نشان می‌دهد. همچنین مشاهده شد که فاز Bi(۲۲۱۲) در مرزهای دانه‌ای قرار گرفته و نقش ارتباطات ضعیف را در ابررسانای Bi(۲۲۲۳) بازی می‌کند و باعث کاهش زوچ شدگی دانه‌ها می‌شود. بنابراین به نظر می‌رسد

افزایش دمای کلوخه‌سازی کاهش یافته است. با اینکه در شکل ۵ تغییرات دمای قله، T_p بر حسب دامنه میدان، H_{ac} رسم شده است، اما با استفاده از مدل بین می‌توان آن را به تغییرات چگالی جریان بحرانی، J_c بر حسب دما مربوط کرد [۱۱]. بر طبق مدل بین چگالی جریان بحرانی در دمای T_p برای یک نمونه با مقطع مستطیلی به صورت $J_c = \frac{H_{ac}}{\sqrt{ab}}$ داده می‌شود، که در آن مساحت سطع مقطع برابر $2a \times 2b$ است [۱۲]. بنابراین از تغییرات دمایی H_{ac} می‌توان تغییرات دمایی چگالی جریان بحرانی را تعیین نمود.

تشکر و قدردانی

از دانشگاه تربیت معلم آذربایجان و همچنین دانشگاه صنعتی اصفهان به خاطر حمایت از انجام این کار سپاسگزاری می‌شود.

با افزایش دمای کلوخه‌سازی، نمونه Bi(۲۲۲۳) به سمت تک فاز شدن می‌کند. پذیرفتاری مغناطیسی نمونه‌ها با استفاده از مدل بین مورد تجزیه و تحلیل قرار گرفت و وابستگی دمایی چگالی جریان بحرانی نمونه‌ها توسط این مدل مورد بررسی قرار گرفت. تغییرات چگالی جریان بحرانی بر حسب دما نشان می‌دهد که با کاهش درصد فاز Bi(۲۲۱۲)، J_c افزایش می‌یابد.

مراجع

6. M Nikolo and R B Goldfarb, *Phys. Rev. B* **39** (1989) 6615.
7. R Prozorov, A Shaulov, Y Wolfus and Y Yeshurun, *Phys Rev. B* **52** (1995) 12541.
8. M Wurlitzer, M Lorenz, K Zimmer and P Esquinazi, *Phys. Rev. B* **45** (1992) 11816.
9. K H Muller, *Physica C* **159** (1989) 717.
10. A R Jurelo, et al., *Physica C* **311** (1999) 133.
11. C B Bean, *Rev. Mod. Phys* **36** (1964) 31.
12. I V Driessche, et al., *Appl. Supercond.* **4** (1996) 185.
1. J G Bednorz and K A Muller, *Z. Phys. B* **64** (1986) 189.
2. J Passai, M Lahtinen, J Thure Eriksson and M Polak, *Physica C* **259** (1996).
3. H Salamatı and P Kameli, *Physica C* **403** (2004) 60-66.
4. H Salamatı and P Kameli, *Solid. State. Communications*, **125** (2003) 407.
5. G C Han, C K Ong and H P Li, *Physica C* **299** (1998) 71.