

روتوکوپراتها: میدان رقابت ابررسانایی و مغناطیسی

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

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

(دریافت مقاله: ۸۶/۱۱/۲۵؛ دریافت نسخه نهایی: ۸۷/۲/۹)

چکیده

خواص ساختاری، تراپردی و مغناطیسی نمونه‌های روتوکوپرات $Ru(Gd_{1-x}Pr_x)Ce_{x/5}Sr_2Cu_2O_{1-\delta}$ با $0 \leq x \leq 1$ و $RuGd_{1-x}Pr_xSr_2Cu_2O_{1-\delta}$ ($Ce_{x/5}Pr_x$) با $0 \leq x \leq 0.2$ که به روش واکنش حالت جامد ساخته شدند، با نمونه $RuGd_{1-x}(Gd_xCe_{x/5-x})Sr_2Cu_2O_{1-\delta}$ با $0 \leq x \leq 0.3$ مقایسه گردید. طیف پراش اشعه X نمونه‌های مختلف به دست آمد و پارامترهای شبکه بر حسب مقادیر متفاوت آلیش Pr توسط تحلیل ریتولد محاسبه شد. جهت بررسی خواص مغناطیسی و ابررسانایی در این سیستم‌های لایه‌ای با مقادیر متفاوت Pr، مقاومت ویژه و مقاومت مغناطیسی نمونه‌ها در میدانهای مختلف از ۰ تا ۱۵ kOe و در دماهای مختلف اندازه‌گیری شدند. دماهای گذار ابررسانایی (T_c) و مغناطیسی (T_m) به وسیله منحنیهای مقاومت و پذیرفتاری مغناطیسی متناوب به دست آمدند. افت T_c در جانشینیهای Gd و Pr به جای Ce و Pr به جای Gd، نشان دهنده رقابت میان شکست جفت توسط ناخالصیهای مغناطیسی، نفوذ حفره به علت ظرفیتهای متفاوت یونها، شعاعهای یونی متفاوت، و میزان اکسیژن در نمونه‌هاست. در نمونه‌هایی که در آنها Pr به جای Gd جانشین شده است، افت ابررسانایی بسیار سریع‌تر از نمونه‌هایی است که در آنها Pr و Gd به جای Ce جانشین شده‌اند. این امر نشان می‌دهد که تأثیر نفوذ حفره و شکست جفت به وسیله ناخالصیهای مغناطیسی، قویتر از عامل تفاوت در شعاعهای یونی است. در جایگزینی Pr با Gd تفاوت اندک میان شعاع یونهای Pr و Gd و همچنین جذب بیشتر اکسیژن به علت بالاتر بودن ظرفیت یون Pr نسبت به Gd سبب می‌شوند که فاصله متوسط ممانهای Ru-Ru در ساختارها کاهش یابد و در نتیجه برهمکنش تبادلی مغناطیسی با افزایش آلیش یون Pr قویتر شود. اما در جایگزینیهای Pr و Gd به جای Ce مسئله متفاوت است. خواص مغناطیسی از جمله میدان وادارندگی (H_c) که به وسیله اندازه‌گیریهای مغناطش بر حسب میدان مغناطیسی اعمالی در دو دمای ۳۰۰ K و ۷۷ K به دست آمدند، با افزایش میزان Pr در ساختارهایی که Pr به جای Gd جایگزین شده است، افزایش می‌یابد. در جایگزینیهای Pr و Gd به جای Ce قرار گرفته‌اند، افزایش میزان آلیش کاهش خواص مغناطیسی را در پی دارد.

واژه‌های کلیدی: روتوکوپرات، همزیستی مغناطیس و ابررسانایی، خواص ساختاری، خواص الکتریکی، خواص مغناطیسی

۱. مقدمه

$GdSr_2RuCu_2O_8$ (Ru-۱۲۱۲) [۳]، مشاهده شده است. هر دو ترکیب بلوری Ru-۱۲۱۲ و Ru-۱۲۲۲، دارای تقارن تراگونال بوده و به ترتیب تقارن فضایی گروه $P4/mmm$ (Ru-۱۲۱۲) و $I4/mmm$ (Ru-۱۲۲۲) را دارا هستند [۳-۱]. در این ساختارها، نظم مغناطیسی با حضور ابررسانایی از بین نمی‌رود و همچنین، حالت ابررسانایی با حضور نظم مغناطیسی نابود نمی‌شود. حاملهای بار ابررسانایی توسط صفحات CuO_2 و فرومغناطیس ضعیف توسط لایه‌های Ru تأمین می‌شوند [۴].

ساختار Ru-۱۲۱۲ از شبکه معروف $YBa_2Cu_3O_7$ ، با جایگزینی یون Gd به جای Y و لایه SrO به جای BaO و صفحات

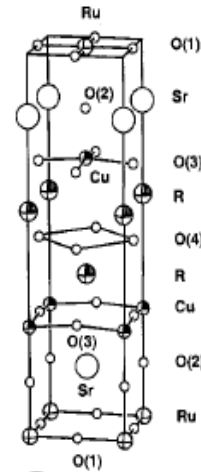
همزیستی ابررسانایی و مغناطیس، یکی از مسائل اساسی و مطرح در فیزیک ماده چگال است که دهها سال به صورت تجربی و نظری در دست بررسی دانشمندان بوده است. از آنجا که این دو فاز همواره در رقابت با یکدیگر هستند، همزیستی آنها در خور توجه است. در ابررساناهای متعارف، ممانهای مغناطیسی جفتهای کوپر را شکسته و ابررسانایی را تضعیف می‌کنند.

همزیستی فرومغناطیس ضعیف (WFM) و ابررسانایی (SC) همچنین در ترکیبات لایه‌ای $R_{1-x}Ce_xRuSr_2Cu_2O_{1-\delta}$ (Ru-۱۲۲۲) $R=Eu$ و Gd [۲ او] و اخیراً در

فرومغناطیس ضعیف و ابرسانایی در ماده همزیستی داشته ولی از هم مجزا هستند، به این معنی که حوزه‌های ابرسانا توسط مرزهایی که در فاز فرومغناطیس به سر می‌برند، از هم جدا شده‌اند. سناریوی دیگری که می‌توان برای همزیستی فرومغناطیس و ابرسانایی ارائه داد، این است که ترکیبات $Ru-1222$ به حوزه‌های پادفرومغناطیس و فرومغناطیس در ابعاد نانو تقسیم می‌شوند. در دمای T_M ، بیشتر ماده پادفرومغناطیس و مقدار کمتر آن فرومغناطیس شده و سپس در T_C ، ماده ابرسانا می‌شود. ابرسانایی در حوزه‌های پادفرومغناطیس که توسط نواحی فرومغناطیس از طریق پیوندگامهای جوزفسون با هم جفت شده‌اند، به وجود می‌آید. شروع ابرسانایی (T_C) دمایی است که این حوزه‌های جفت شده ابرسانا می‌شوند [۶]. در ساختار $R_{1-x}Ce_xRuSr_2Cu_2O_{1-\delta}$ ($R = Eu, Gd$)، گذار مغناطیسی در $T_M = 125 - 180 K$ و ابرسانایی در توده در محدوده دمایی $T_C = 32 - 50 K$ اتفاق می‌افتد و میزان آن به نحوه آماده سازی نمونه و میزان اکسیژن نمونه بستگی دارد [۱ و ۷ و ۸].

در واقع دمای گذار به حالت ابرسانایی در دو مرحله انجام می‌گیرد. افت مقاومت در T_C اتفاق می‌افتد یعنی جایی که داخل دانه‌ها ابرسانا می‌شوند. در این دما، ارتباطات ضعیف بین دانه‌ها، مقاومتی غیر صفر دارند. در دمای پایین‌تر (T_p)، دانه‌ها توسط زوج شدگی جوزفسون، به هم پیوند خورده و ماده به طور کامل ابرسانا می‌شود. T_p نسبت به میدان مغناطیسی بسیار حساس‌تر از T_C است. گذارهای ابرسانایی داخل و بین دانه‌ها روی شکل مقاومت اثر می‌گذارند و این بدان جهت است که گذار الکتریکی به ارتباطات ضعیف مرزهای دانه‌ای حساس است. به همین علت، در منحنیهای مقاومت اکثر این ساختارها، یک گذار پهن و دو پله‌ای مشاهده می‌شود [۶]. به طور کلی، خواص روتنوکوپراتها شدیداً تحت تأثیر دانه‌ها و زوج شدگی آنهاست و به همین دلیل گروههای مختلف دماهای گذار مختلفی را گزارش کرده‌اند. شرایط مختلف ساخت و عملیات حرارتی، به همان شکل که روی ابرسانایی درون دانه‌ها اثر می‌گذارند، روی زوج شدگی دانه‌ها هم مؤثرند.

برخلاف ساختارهای $Ru-1212$ ، که در آنها طبیعت



شکل ۱. ساختار سلول واحد ترکیب $Ru-1222$.

RuO_4 به جای زنجیره CuO به دست می‌آید. برخلاف YBCO، لایه‌های RuO_4 به طور کامل با اکسیژن اشغال شده‌اند که در نتیجه حالت اورتورومبیک در YBCO به حالت تتراگونال در $Ru-1212$ تبدیل می‌شود. یونهای Ru در یک هشت وجهی قرار می‌گیرند. هشت وجهی RuO_6 ، با چرخش کوچکی حول محور c، به اندازه حدوداً 13° از حالت ایده آل خود منحرف می‌شود. این امر، منجر به کاهش زاویه $Cu-O-Ru$ به 173° می‌شود. این واپیچش به کج شدگی -Moriya (DM)-Dzaloshinski معروف است [۵]. ساختار $Ru-1222$ ، از ساختار $Ru-1212$ ، با جایگذاری بلوک $(Gd/Ce)_2O_4$ به جای Gd به دست می‌آید. ساختار سلول واحد ترکیب $Ru-1222$ و وضعیت آنها در شکل ۱ نشان داده شده است.

منحنیهای مقاومت بر حسب دما در این ترکیبات، از دمای بالا به دمای پایین حضور ۴ ناحیه را نشان می‌دهند. در دماهای بالا سیستم در فاز پارامغناطیس است. در دمای T_M ، زیر شبکه Ru پادفرومغناطیس (AFM) شده و نظم $Ru^{+4} - Ru^{+4}$ غالب می‌شود. در دمای $T_M < T_{irr}$ ، که به میزان آلیش و میدان خارجی وابسته است، فرومغناطیس ضعیف (WFM) ظاهر می‌شود. این امر به علت کج شدگی ممانهای Ru به وقوع می‌پیوندد. در این دما نظم $Ru^{+5} - Ru^{+5}$ غالب است. در دماهای پایین‌تر، ابرسانایی ظاهر می‌شود و دمای گذار آن (T_C) شدیداً به میزان R/Ce و میزان اکسیژن وابسته است. زیر T_C ، هر دو فاز

پادفرومغناطیس زیر شبکه Ru توسط مطالعات پراش نوترون به اثبات رسیده است، تاکنون ساختار مغناطیسی ترکیبات Ru-۱۲۲۲ کاملاً کشف نشده است. منحنی مغناطش بر حسب دما M-H در این ترکیبات حلقه پسماندی را نشان می‌دهد [۹] که حاکی از وجود فاز فرومغناطیس در این ساختارها است. هر دو پارامتر مغناطیسی M_{rem} (مغناطش در میدان مغناطیسی بازگشتی صفر) و H_c (میدان مغناطیسی لازم برای کسب مغناطش بازگشتی صفر)، با دما کاهش می‌یابند.

در این مواد، جایگزینیهای جزئی شیمیایی (doping) نشان می‌دهد که T_M و T_C برخلاف یکدیگر تغییر می‌کنند. در ترکیب $Gd_{1-x}Ce_xRuSr_4Cu_4O_{1-\delta}$ کاهش چگالی حفره‌ها با جایگزینی جزئی Gd با Ce، باعث کاهش T_C و افزایش دمای گذار فرومغناطیسی می‌شود [۷ و ۸]. این امر حاکی از آن است که دمای گذار مغناطیسی در Ru-۱۲۲۲ های غیرابرسانا، چندین درجه بالاتر از نمونه‌های ابرساناست و این نتایج، توصیف رقابت بین حالت‌های ابرسانا و فرومغناطیس است. با این حال، جایگزینیهای شیمیایی، پارامترهای دیگری را نیز تغییر می‌دهد. این امر علاوه بر تغییر چگالی حاملها، زوج شدگی مغناطیسی لایه‌های RuO_4 را در جایگزینی Gd با Ce کاهش می‌دهد و باعث تغییر ریز ساختار نیز می‌شود.

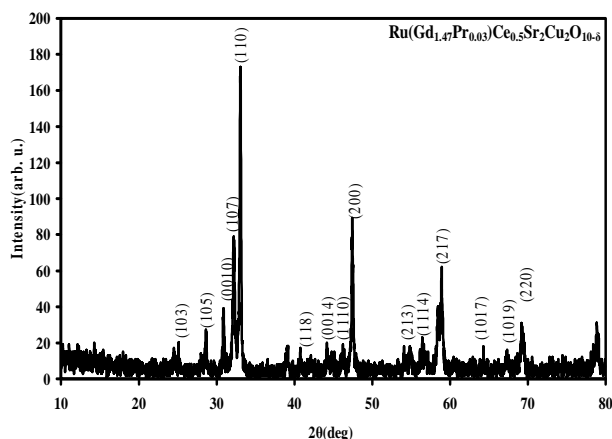
از آنجا که یون Pr در برخی ترکیبات از جمله Gd-۱۲۳ [۱۰] ناهنجاریهایی از خود نشان داده است و در ضمن به علت خواص فرومغناطیس ضعیفی که در ساختارهای Ru-۱۲۲۲ مشاهده شده است و از همه مهمتر دارای ظرفیت بین $+3$ و $+4$ است ($Pr^{3+,4+}$)، جهت بررسی اثراتی که این یون مغناطیسی در این ترکیبات می‌تواند داشته باشد، به صورت جزئی به جای Gd^{3+} و Ce^{3+} در ترکیب $Gd_{1-x}Ce_xRuSr_4Cu_4O_{1-\delta}$ جانشین شد. نتایج به دست آمده با برخی از داده‌های نمونه $RuGd_{1/5}(Gd_xCe_{4/5-x})Sr_4Cu_4O_{1-\delta}$ [۷ و ۸].

۲. جزئیات آزمایش

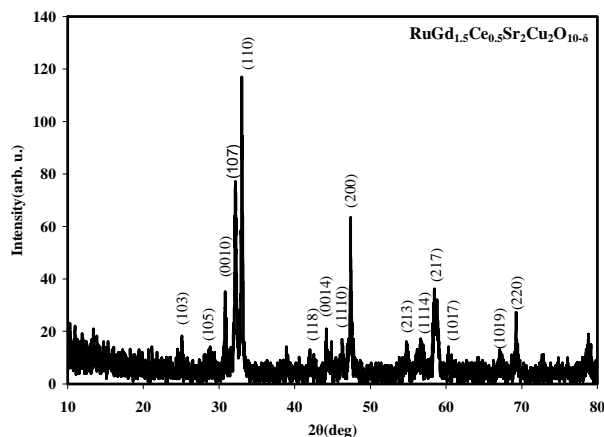
سرامیکهای ابرسانی $Ru(Gd_{1-x}Pr_x)Ce_{0.5}Sr_4Cu_4O_{1-\delta}$ به ازای مقادیر مختلف x از ۰ تا ۰/۱ و

۳. نتایج و بحث

طیف پراش اشعه X، به ازای مقادیر مختلف x از ۰ تا ۰/۱، در $Ru(Gd_{1-x}Pr_x)Ce_{0.5}Sr_4Cu_4O_{1-\delta}$ (نمونه Pr/Ce) و x از ۰ تا ۰/۲ در $Ru(Ce_{0.5-x}Pr_x)Gd_{1/5}Sr_4Cu_4O_{1-\delta}$ (نمونه Pr/Gd)، اندازه‌گیری شد. همان‌گونه که طیفهای XRD مربوط به برخی از این نمونه‌ها در شکل‌های ۲، ۳ و ۴ نشان می‌دهد، این نمونه‌ها تکفاز هستند. مقایسه نتایج XRD با نتایج دیگران نشان می‌دهد که فاز Ru-۱۲۲۲ به خوبی شکل گرفته است [۱۱]، ولی نمونه $x=0$ از کیفیت نازلتری برخوردار است.



شکل ۳. طرح پراش اشعه X نمونه $\text{Ru}(\text{Gd}_{1.47}\text{Pr}_{0.03})\text{Ce}_{0.5}\text{Sr}_2\text{Cu}_2\text{O}_{10-\delta}$.



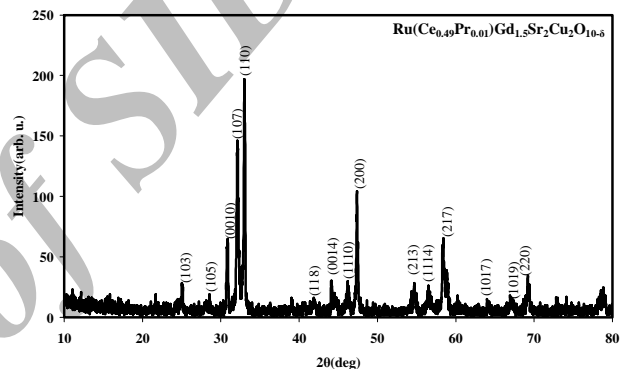
شکل ۲. طرح پراش اشعه X نمونه $\text{RuGd}_{1.5}\text{Ce}_{0.5}\text{Sr}_2\text{Cu}_2\text{O}_{10-\delta}$.

باند باشیم، چرا که به نظر می‌رسد شعاع یونی Pr در این ترکیب نسبت به Gd کوچکتر است. همان‌طور که دیده می‌شود نتایج گویای این مطلب است.

پارامتر c شبکه برای نمونه‌های مختلف Pr/Ce و Pr/Gd با افزایش x به ترتیب کاهش و افزایش را نشان می‌دهند. دلیل این امر ممکن است به کوچک بودن شعاع یونی Pr نسبت به Gd و بزرگتر بودن شعاع آن در مقایسه با Ce مربوط باشد.

پارامتر $a(=b)$ شبکه برای نمونه Pr/Gd با افزایش میزان آلیش Pr کاهش می‌یابد، در حالی که در نمونه‌های Pr/Ce تغییر محسوسی ندارد. این رفتار را می‌توان به حضور اکسیژن بیشتر در ترکیبات Pr/Gd در مقایسه با ترکیبات Pr/Ce نسبت داد. الکترونیهای اضافی که با جایگزینی Pr به جای Gd، به واسطه بیشتر بودن ظرفیت Pr در مقایسه با Gd، وارد سیستم شده‌اند با افزایش میزان اکسیژنی که سیستم جذب می‌کند جبران می‌شوند تا خشی‌ای بار کل سیستم حفظ شود [۱۲].

مقاومت الکتریکی نمونه‌ها در محدوده دمای اتاق تا 10°K برای نمونه‌هایی با مقادیر مختلف جایگزینی Pr به جای Gd و Ce، اندازه‌گیری شده است. همان‌طور که در شکل ۵ نشان داده شده، منحنی مقاومت الکتریکی این نمونه‌ها، مشابه با سایر نمونه‌های Ru-۱۲۲۲، رفتار نیمه هادی از خود نشان می‌دهند (به این معنی که با کاهش دما روند افزایشی دارند). این منحنی شامل چهار دمای مشخصه است که در آن دماها، منحنی تغییر



شکل ۴. طرح پراش اشعه X نمونه $\text{Ru}(\text{Ce}_{0.49}\text{Pr}_{0.01})\text{Gd}_{1.5}\text{Sr}_2\text{Cu}_2\text{O}_{10-\delta}$.

نتایج تحلیل ریتولد روی این طیفها، در جدول ۱ آورده شده‌اند. پارامترهای شبکه و طول باندهای این ساختارها از این نتایج به دست آمده است. افزایش طول باند $\text{Ru-O}(1)$ در نمونه‌های Pr/Gd شاهدی بر کاهش فاصله بین $\text{O}(1)$ و صفحات CuO_4 است. این کاهش فاصله می‌تواند سبب نفوذ الکترون در صفحات CuO_4 شود. همچنین طول باند $\text{Ru-O}(3)$ با افزایش میزان آلیش Pr کاهش می‌یابد که این امر بیانگر قویتر شدن پیوند بین یونهای Ru و اکسیژن ورودی و در نتیجه، شاهدی بر جذب اکسیژن بیشتر در این نمونه‌هاست. افزایش طول باند $\text{Gd-O}(4)$ در نمونه‌های Pr/Ce، بیانگر افزایش فاصله یونها در بلوک $\text{O}-(\text{Ce,Gd,Pr})-\text{O}$ ، می‌تواند به واسطه حضور یون Pr با شعاع یونی بزرگتر نسبت به Ce باشد. بنابراین، انتظار داریم که در جانشانی Pr به جای Gd، شاهد کاهش این طول

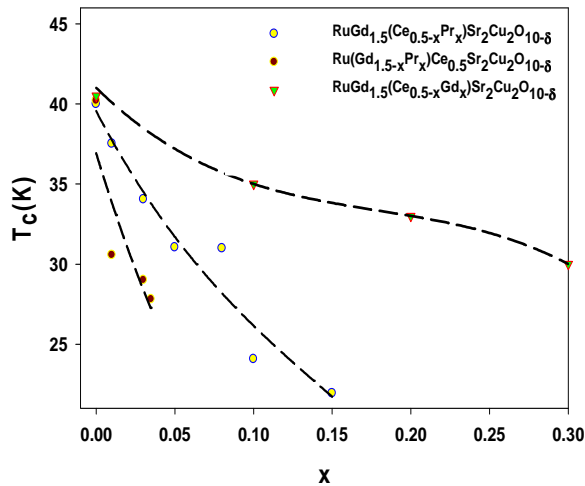
جدول ۱. تحلیل ریتولد ترکیبات Pr/Ce و Pr/Gd برای مقادیر مختلف Pr.

Pr/Gd	X=۰/۰۰	X=۰/۰۱	X=۰/۰۳	X=۰/۰۳۳	X=۰/۰۵
$c(\text{\AA})$	۲۸/۳۷۰	۲۸/۴۰۹	۲۸/۳۴۸	۲۸/۳۳۹	۲۸/۳۳۱
$a, b(\text{\AA})$	۳/۸۲۷	۳/۸۳۷	۳/۸۳۳	۳/۸۳۱	۳/۸۳۰
$V(\text{\AA}^3)$	۴۱۵/۵۲۴	۴۱۸/۳۸۱	۴۱۶/۶۸۳	۴۱۶/۰۲۹	۴۱۵/۶۱۰
Gd-O(۲) (\AA)	۲/۳۷	۲/۱۶	۲/۴۰	۲/۳۳	۲/۴۵
Gd-O(۴) (\AA)	۲/۳۳	۲/۳۶	۲/۳۹	۲/۳۳	۲/۳۲
Cu-O(۱) (\AA)	۱/۷۹	۱/۷۶	۱/۷۶	۱/۷۶	۱/۸۷
Cu-O(۲) (\AA)	۱/۹۴	۲/۰۰	۱/۹۲	۱/۹۴	۲/۰۲
Sr-O(۲) (\AA)	۲/۷۶	۳/۰۰	۲/۶۰	۲/۷۹	۲/۴۲
Ru-O(۱) (\AA)	۲/۹۵	۲/۳۶	۲/۶۷	۲/۳۵	۳/۰۳
Ru-O(۲) (\AA)	۱/۹۷۲	۱/۹۷۷	۱/۹۷۵	۱/۹۷۴	۱/۹۷۴

Pr/Ce	X=۰/۰۰	X=۰/۰۱	X=۱/۰۵	X=۰/۱	X=۰/۱۵
$c(\text{\AA})$	۲۸/۳۷۰	۲۸/۴۲۴	۲۸/۵۱۶	۲۸/۵۴۷	۲۸/۵۵۴
$a, b(\text{\AA})$	۳/۸۲۷	۳/۸۳۲	۳/۸۲۹	۳/۸۳۱	۳/۸۳۱
$V(\text{\AA}^3)$	۴۱۵/۵۲۴	۴۱۷/۵۳۶	۴۱۸/۱۰۲	۴۱۹/۱۰۳	۴۱۹/۱۱۸
Gd-O(۲) (\AA)	۲/۳۷	۲/۲۷	۲/۱۹	۲/۱۰	۲/۱۰
Gd-O(۴) (\AA)	۲/۳۳	۲/۳۵۴	۲/۴۰۱	۲/۴۱۰	۲/۴۵۹
Cu-O(۱) (\AA)	۱/۷۹	۱/۸۸	۱/۷۱	۱/۶۳	۱/۷۷
Cu-O(۲) (\AA)	۱/۹۴	۱/۹۶۳	۱/۹۳	۲/۰۳	۱/۹۹
Sr-O(۲) (\AA)	۲/۷۶	۲/۸۸	۲/۷۹	۲/۸۳	۲/۷۰
Ru-O(۱) (\AA)	۲/۹۵	۲/۲۲	۲/۶۲	۲/۵۴	۲/۵۴
Ru-O(۲) (\AA)	۱/۹۷۲	۱/۹۷۵	۱/۹۷۳	۱/۹۷۴	۱/۹۷۴

در دمای $T_{\text{irr}} < T_{\text{M}}$ که مقدار آن وابسته به مقدار Pr است، گذار فاز دیگری رخ می‌دهد که ماده را به فاز فرومغناطیسی می‌برد. باید علت این گذار فاز را در زیر ساختار RuO_6 جستجو کرد. در این حالت، گشتاورهای Ru دچار یک کج شدگی می‌شوند و به جای حالت پادفرومغناطیس معمولی در حالت قبل، با یک پادفرومغناطیس کج شده در ماده روبه‌رو هستیم. بر اثر این کج شدن، گشتاورهای Ru دارای یک مؤلفه خالص در جهت محور c می‌شوند و ماده خاصیت فرومغناطیس از خود نشان می‌دهد. این کج شدگی از برهمکنش فوق تبادلی غیر متقارن [5] Dzaloshinski-Moriya (DM) به وجود می‌آید. در این حالت، مقاومت با کاهش دما افزایش می‌یابد و این روند، تا نزدیکی T_c ادامه دارد. افزایش مقاومت نزدیک T_{irr}

شیب ناگهانی دارد. این دماها از بالا به پایین به ترتیب عبارتند از T_{M} ، T_{irr} ، T_c و T_p . بنابراین، بازه دمایی وجود دارد که ماده در هر کدام، در فاز و یا فازهای خاصی به سر می‌برد. از دمای اتاق تا T_{M} ، ماده در حالت پارامغناطیس قرار دارد که نتایج مغناطش در دمای اتاق این موضوع را تأیید می‌کند (حلقه هیستریز فرومغناطیس گونه مشاهده نمی‌شود). در این بازه دمایی قدر مطلق شیب منحنی نسبتاً کم است. در دمای T_{M} یک گذار فاز رخ می‌دهد که ماده را به فاز پادفرومغناطیس می‌برد. در این حالت، یک نظم بلند برد ایجاد می‌شود که مسئول آن، گشتاورهای مغناطیسی Ru هستند که دارای اسپین مخالف می‌شوند [4]. این مسئله تا دمای T_{irr} ادامه دارد. باید توجه کرد که روند افزایش مقاومت برحسب دما در این بازه نسبت به قبل افزایش می‌یابد.

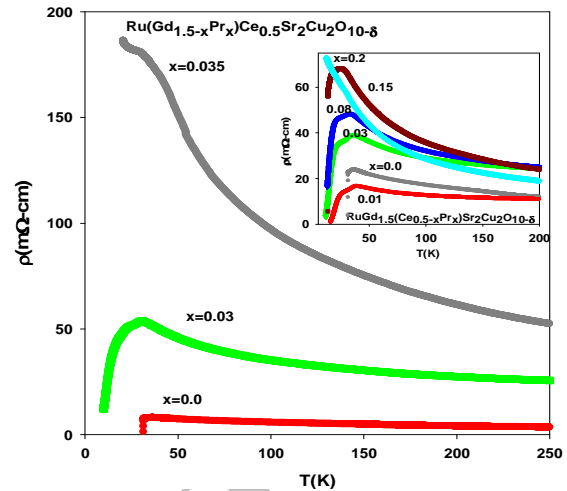


شکل ۶. وابستگی دمای گذار ابررسانایی به میزان آلیش برای سه جایگزینی Pr/Gd و Pr/Ce و Gd/Ce. خطوط رسم شده برای دید بهتر است.

اما، نحوه کاهش (سرعت افت T_c با افزایش x) متفاوت است. در جایگزینی Pr به جای Gd، با جایگزینی از $x=0$ تا $x=0/33$ ، دمای گذار از 40K به 27K افت می‌کند، در حالی‌که، با جایگزینی Pr به جای Ce از $x=0$ تا $x=0/15$ از 40K به 22K نزول می‌کند. بنابراین، همان‌طور که از شکل پیداست، در جایگزینی Pr به جای Ce، ابررسانایی تا میزان $x=0/15$ برای Pr همچنان ادامه دارد. در حالی‌که، فقط $0/35$ آلیش Pr به جای Gd، کل ابررسانایی را در این نمونه از بین می‌برد.

به منظور بررسی اثر افزایش یون مغناطیسی در ترکیب پایه $\text{RuGd}_{1.5}\text{Ce}_{0.5}\text{Sr}_2\text{Cu}_2\text{O}_{10-\delta}$ ، دمای گذار ابررسانایی بر حسب x دو نمونه Pr/Gd و Pr/Ce با دمای گذار ابررسانایی بر حسب x ترکیب $\text{RuGd}_{1.5}(\text{Gd}_x\text{Ce}_{0.5-x})\text{Sr}_2\text{Cu}_2\text{O}_{10-\delta}$ (نمونه Gd/Ce) [۷ و ۸]، در شکل ۶ مورد مقایسه قرار گرفته است. همان‌طور که از شکل پیداست، افت T_c با افزایش x ، در این سه نمونه، با شبیه‌های متفاوتی صورت می‌پذیرد.

افت T_c با افزایش Gd، در نمونه‌ای که Gd به جای Ce جایگزین شده است، (ماده پایه $\text{RuGd}_{1.5}\text{Ce}_{0.5}\text{Sr}_2\text{Cu}_2\text{O}_{10-\delta}$) بسیار کند است. در واقع وقتی Gd به جای Ce جایگزین می‌شود، ابررسانایی به سرعت تخریب نمی‌شود. همان‌طور که در شکل دیده می‌شود، افزایش x از $0/1$ تا $0/3$ ، T_c را به میزان خیلی اندک کاهش داده است در حالی‌که، اگر تمام حاملین بار به صفحات



شکل ۵. مقاومت بر حسب دما برای نمونه‌های Pr/Gd و Pr/Ce به ازای مقادیر مختلف Pr.

نشان دهنده بی‌نظمی مربوط به کمبود اکسیژن، دانه‌ای بودن (granularity) یا پراکندگی الکترون از ناخالصی‌های مغناطیسی است [۴ و ۱]. از دمای T_c به بعد، در حالی‌که حالت فرومغناطیسی وجود دارد، یک گذار فاز دیگر رخ می‌دهد و ماده به فاز ابررسانایی می‌رود. در این حالت، منحنی مقاومت بر حسب دما که تاکنون با کاهش دما افزایش می‌یافت، با کاهش بیشتر دما شروع به کاهش می‌کند و در نتیجه از این نقطه (T_c) به بعد، شاهد کاهش سریع مقاومت بر حسب دما هستیم [۱۳ و ۱]. در واقع ابررسانایی در ابررساناهای دانه‌ای شامل دو مرحله است. این دو مرحله (T_p و T_c) در روتنوکوپراتها بسیار واضح‌تر و چشمگیرتر است و علت آن، وجود مناطق غیر ابررسانا و مغناطیسی در بین دانه‌های پادفرومغناطیس و ابررساناست و همچنین به ناهمگنی اکسیژن در ساختار نیز مربوط می‌شود. در T_c ، مناطق درون دانه‌ای شروع به ابررسانا شدن می‌کنند. در دمای T_p دانه‌های ابررسانا از طریق اثر جوزفسون با هم زوج می‌شوند [۱۴]. در تمامی این بازه‌های دمایی، صفحه اکسید مس مسئول بروز مقاومت در ماده است. اما، وجود شبکه Ru بر روی حامل‌های جریان در این صفحه شدیداً تأثیر می‌گذارد [۹ و ۱۵].

همان‌طور که در شکل ۵ دیده می‌شود، دمای گذار ابررسانایی با افزایش x (در هر دو سری نمونه) کاهش می‌یابد.

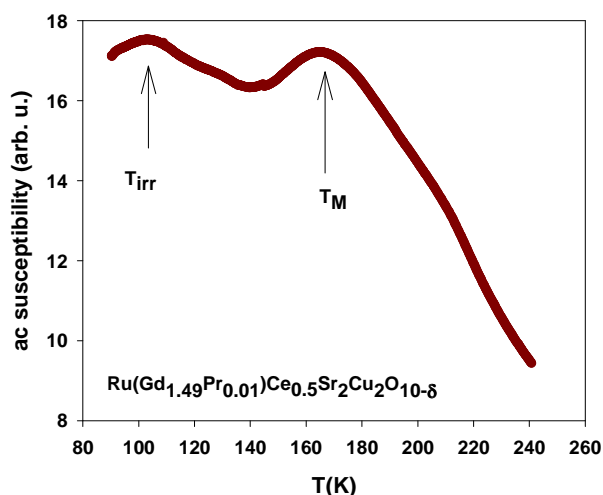
ظرفیت Pr^{3+} با Gd^{3+} جذب اکسیژن در نمونه‌های با Pr بیشتر، اندکی بیشتر است که این امر نیز منجر به تقویت ابرسانی می‌شود. اما، احتمالاً شکست جفتهای کوپر توسط یون مغناطیسی Pr و آرایش الکترون در ترکیب، که دو عامل اساسی در تخریب ابرسانی در این جایگزینی هستند، بر دو عامل اول که تقویت کننده ابرسانی بودند، پیروز شده و در نهایت، کاهش شدید T_c را با افزایش x، در نمونه Pr/Gd خواهیم داشت. از مقایسه عوامل تقویت و تخریب ابرسانی در این سه ماده، به این موضوع می‌توان پی برد که شکست جفتهای کوپر، به واسطه حضور یون مغناطیسی عنصرخاکی کمیاب، مهمترین عامل در تخریب ابرسانی است. اما، عامل کافی برای تخریب نیست چرا که، آرایش حفره به واسطه تفاوت ظرفیت عناصر، تفاوت شعاع یونی و تفاوت در جذب اکسیژن، عوامل دیگری هستند که می‌توانند روی خواص ابرسانی تاثیر گذار باشند.

منحنی مقاومت بر حسب دما برای سه نمونه $\text{Ru}(\text{Gd}_{1/4}\text{Pr}_{3/4})\text{Ce}_{0.5}\text{Sr}_2\text{Cu}_2\text{O}_{10-\delta}$ و $\text{Ru}(\text{Ce}_{1/4}\text{Pr}_{3/4})\text{Gd}_{0.5}\text{Sr}_2\text{Cu}_2\text{O}_{10-\delta}$ در محدوده دمای ۲۵۰K-۱۰ بدون حضور میدان مغناطیسی در شکل ۷، نمایش داده شده است. همان‌طور که از شکل پیداست، در تمامی این نمونه‌ها در ناحیه گذار، پهن شدگی مشاهده می‌شود که این امر در نمونه $\text{Ru}(\text{Ce}_{1/4}\text{Pr}_{3/4})\text{Gd}_{0.5}\text{Sr}_2\text{Cu}_2\text{O}_{10-\delta}$ بارزتر است و به ناهمگنی اکسیژن در ساختار بر می‌گردد که باعث اختلاف بین $T_c^{\text{on}}=34\text{K}$ و $T_c^{\text{R}=\circ}=12\text{K}$ می‌شود. گذار به حالت ابرسانی در دو مرحله انجام می‌پذیرد. یعنی، در نقطه گذار دو پله مشاهده می‌شود که شروع (onset) ابرسانی در T_c اتفاق می‌افتد، جایی که دانه‌ها ابرسانا می‌شوند و در دمای پایین‌تر (T_p) اثر ارتباطات ضعیف بین دانه‌ها کاهش یافته و کل نمونه ابرسانا می‌شود. در این نمونه دو گذار ابرسانی درون دانه‌ای T_c و بین دانه‌ای T_p به وضوح دیده می‌شود. اما در نمونه‌ای که Pr به جای Gd جایگزین شده است، به دلیل کامل‌تر بودن میزان اکسیژن نمونه نسبت به نمونه‌ای که Pr و Gd به جای Ce

Cu-O مربوط باشند، آنگاه وقتی x به اندازه ۰/۲ تغییر می‌کند، به منزله تغییر ۰/۲ در میزان حفره‌هاست و باید بیشتر از این میزان، منجر به کاهش T_c شود، همان‌طور که در $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ و سایر مواد HTSC دیده می‌شود [۴]. اما، شعاع یونی بزرگتر Gd نسبت به Ce، پارامتر شبکه را افزایش داده و انرژی پرشی (hopping) حاملین را کاهش می‌دهد. افزایش حجم سلول واحد به واسطه این جایگزینی می‌تواند باعث کاهش T_c بر اثر افزایش x شود. به علاوه، حفره‌های اضافی القا شده توسط افزایش Gd، به صورت جزئی، به علت کاهش اکسیژن جبران می‌شوند. اگر اکسیژن بیشتری جذب می‌شد حفره‌ها بیشتر می‌بود. رقابت این دو عامل، یعنی آرایش حفره و کاهش اکسیژن با افزایش Gd، سرعت کاهش T_c را کاهش می‌دهد. این سازوکار آرایش حفره توسط آزمایش پراش نوترون در $\text{Gd}_{1/5}\text{Ce}_{4/5}\text{RuSr}_2\text{Cu}_2\text{O}_{10-\delta}$ تصدیق شده است [۴].

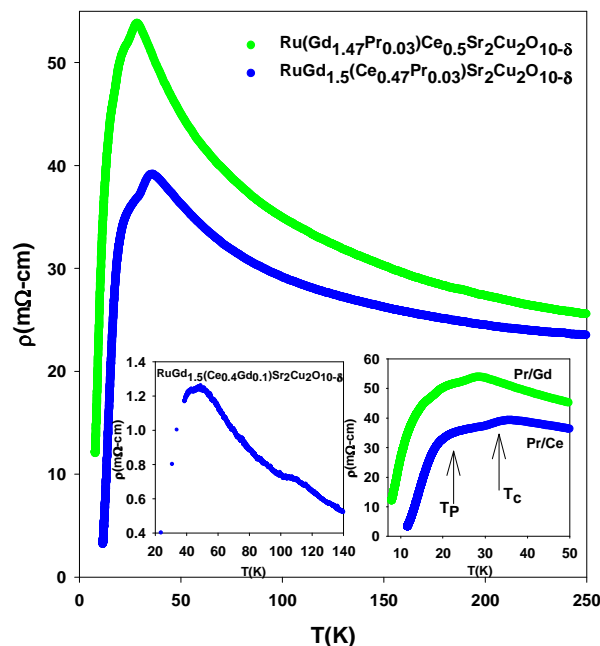
جایگزینی Pr به جای Ce بیشتر از جایگزینی Gd به جای Ce در $\text{RuGd}_{1/5}\text{Ce}_{4/5}\text{Sr}_2\text{Cu}_2\text{O}_{10-\delta}$ ابرسانی را تخریب می‌کند. زوج شدگی تبدیلی قوی گشتاورهای تراز ۴f اتم Pr با اسپین حفره‌ها در صفحات CuO_2 می‌تواند، باعث شکست جفت شود، که این مسئله قبلاً با نظریه Abrikosov-Gor'kov (AG) توضیح داده شده است [۱۵]. اما کاهش T_c با افزایش x، بسیار سریعتر از آن است که نظریه AG پیشگویی می‌کند. تفاوت شعاع یونی Pr و Ce، پارامتر شبکه را افزایش می‌دهد. این فشار شیمیایی منفی انرژی پرشی را تغییر داده و منجر به کاهش ابرسانی می‌گردد. جایگزینی Pr به جای Ce، به دلیل ظرفیت کمتر Pr ($\text{Ce}^{+4}, \text{Pr}^{+3}, \text{Pr}^{+4}$)، منجر به جذب اکسیژن کمتر توسط نمونه می‌گردد. ناکاملی اکسیژن و چرخش کوچک هشت وجهی RuO_6 ، پیش بینی می‌شود که چگالی حفره‌ها را در صفحات CuO_2 کاهش داده، منجر به افت ابرسانی شود.

برای نمونه‌های Pr/Gd، کاهش T_c با افزایش x بسیار سریعتر از دو نمونه دیگر است. زیرا تفاوت شعاع یونی یونهای Pr و Gd پارامتر شبکه را کاهش داده، انرژی پرشی افزایش یافته و ابرسانی تقویت می‌شود. همچنین، به دلیل تفاوت

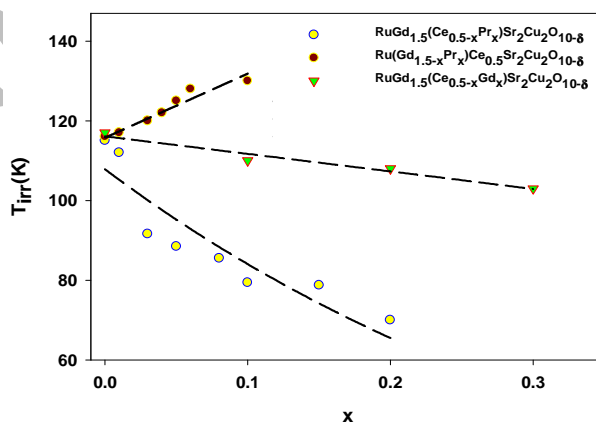


شکل ۸. منحنی پذیرفتاری مغناطیسی متناوب برای ترکیب Pr/Gd به ازای $x=0/01$ در شکل نشان داده شده‌اند.

رفتار دمای گذار مغناطیسی T_{irr} بر حسب x برای سه نمونه Pr/Gd، Pr/Ce و Gd/Ce، در شکل ۹، نشان داده شده است. جایگزینی Pr به جای Gd، دمای گذار مغناطیسی را افزایش می‌دهد. چرا که تفاوت شعاع یونی Pr و Gd باعث کاهش پارامتر $a(=b)$ شبکه می‌شود. بنابراین، با جایگزینی Pr، فاصله گشاورهای Ru-Ru کاهش می‌یابد. در نتیجه، برهمکنش‌های مغناطیسی قویتر می‌شوند و دمای گذار مغناطیسی با افزایش x افزایش می‌یابد. همچنین، دمای گذار مغناطیسی به میزان اکسیژن نمونه بسیار 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 RuO_{7-8} وجود دارد [۱۶]. تغییر چگالی حفره‌ها در صفحات Cu-O توسط اکسیژن، الکترونها را منتقل شونده به باند d اتمهای Ru را افزایش می‌دهد و بنابراین، برهمکنش تبادل زیرشبکه Ru افزایش یافته، T_{irr} بالا می‌رود. در دو جایگزینی دیگر (Pr/Ce و Gd/Ce)، تفاوت شعاع یونی Pr و Gd با Ce منجر به افزایش فاصله ممانهای Ru-Ru و کاهش برهمکنش‌های مغناطیسی می‌شود. همان‌طور که در بررسی نتایج حاصل از تحلیل ریتولد نمونه‌های Pr/Ce گفته شد، پارامتر c شبکه و حجم سلول واحد با افزایش میزان آلیاژ Pr افزایش می‌یابد.



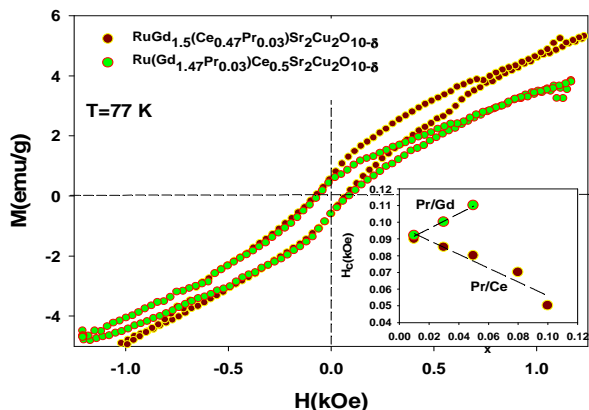
شکل ۷. مقاومت بر حسب دما برای نمونه‌های Pr/Ce و Pr/Gd با $x=0/03$ و Gd/Ce با $x=0/01$ در شکل داخلی نشان داده شده‌اند.



شکل ۹. دمای گذار مغناطیسی بر حسب میزان آلیاژ در سه جایگزینی Pr/Gd، Pr/Ce و Gd/Ce. خطوط رسم شده برای دید بهتر است.

جایگزین شده‌اند، دمای گذار ابررسانایی بین دانه‌های (T_p) به وضوح دیده نمی‌شود.

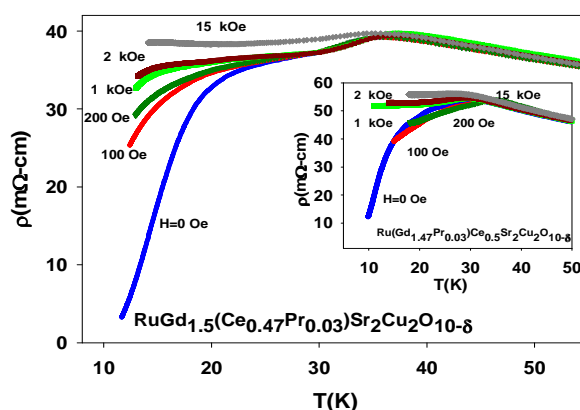
دمای گذار مغناطیسی از تغییرات منحنی مشتق مقاومت الکتریکی بر حسب دما و همچنین از اندازه‌گیریهای پذیرفتاری مغناطیسی متناوب به دست آمده است. همان‌طور که در شکل ۸ نشان داده شده است، از دماهای بالا به پایین دو قله مشخصه در منحنیهای پذیرفتاری مغناطیسی متناوب دیده می‌شود که به ترتیب T_M و T_{irr} هستند.



شکل ۱۱. حلقه M-H برای $x=0.3$ در دمای ۷۷K برای دو ترکیب Pr/Ce و Pr/Gd. شکل داخلی H_c بر حسب x را برای این دو جایگزینی نشان می‌دهد. خطوط رسم شده برای دید بهتر است.

ابرسانایی در میدانهای مغناطیسی ضعیف شود. همچنین، این پهن شدگی در ناحیه گذار ابرسانایی می‌تواند به واسطه حضور و حرکت شارهای مغناطیسی در ترکیب رخ دهد [۱۵]. پهنای بیشتر ناحیه گذار در ترکیب Pr/Gd در مقایسه با Pr/Ce می‌تواند به دلیل حضور بیشتر اکسیژن در این نمونه‌ها باشد. چرا که حضور بیشتر اکسیژن در نمونه‌هایی که ساختار دانه‌ای دارند، منجر به رشد دانه‌های ابرسانا می‌شود [۶]. 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 کرده‌اند آزادی حرکت بیشتری خواهند داشت و افت مقاومت در ناحیه گذار ابرسانایی در دماهای پایین‌تری اتفاق می‌افتد و گذار ابرسانایی پهن‌تری خواهیم داشت.

مغناطش نمونه‌های Pr/Gd و Pr/Ce در حضور میدان مغناطیسی و در دمای ۷۷K اندازه‌گیری شده است. حلقه M-H برای دو نمونه مذکور به ازای $x=0.3$ در دمای ۷۷K در شکل ۱۱ نشان داده شده است. این ترکیبات، در دماهای پایین زیر T_{irr} ، دارای حوزه‌های فرومغناطیس هستند. بنابراین حلقه پسماند مغناطیسی در این محدوده‌های دمایی قابل مشاهده است. مغناطش باقیمانده (M_{rem}) و میدان وادارندگی (H_c) از این اندازه‌گیریها قابل محاسبه هستند.



شکل ۱۰. مقاومت بر حسب دما برای نمونه‌های Pr/Ce و Pr/Gd با $x=0.3$ در میدانهای مغناطیسی مختلف از ۰ تا ۱۵kOe.

افت بیشتر T_{irr} در نمونه‌های Pr/Ce نسبت به Gd/Ce بیانگر این مطلب است که فاصله ممانهای Ru-Ru در ترکیبات Gd/Ce نسبت به ترکیبات Pr/Ce کوچکتر است. همچنین افزایش میزان آرایش Pr به دلیل تفاوت ظرفیت سه یون Gd^{3+} ، Pr^{3+} و Ce^{4+} باعث کاهش میزان اکسیژن نمونه می‌شود. همچنین میزان جذب اکسیژن کمتر، به دلیل پایین‌تر بودن ظرفیت Pr و Gd نسبت به Ce، باعث کاهش دمای گذار مغناطیسی می‌شود.

شکل ۱۰ وابستگی دمایی مقاومت الکتریکی نمونه‌های Pr/Gd و Pr/Ce با $x=0.3$ را در میدانهای مغناطیسی خارجی مختلف به بزرگی ۱۵-۰ kOe نشان می‌دهد. در هر دو ترکیب شروع ابرسانایی، جایی که درون دانه‌ها ابرسانا می‌شوند، چندان تحت تأثیر میدان مغناطیسی قرار نمی‌گیرد. دمایی که در آن مقاومت مغناطیسی نمونه به طور کامل صفر می‌شود ($T_c^{R=0}$) و T_p ، دمایی که اتصالات ضعیف جوزفسون به هم متصل می‌شوند، شدیداً تحت تأثیر میدان مغناطیسی خارجی هستند. در بسیاری از ابرساناهای با ساختار دانه‌ای که اتصالات ضعیفی بین دانه‌ها برقرار است، دمایی که در آن دما مقاومت نمونه به طور کلی صفر می‌شود، در حضور میدان مغناطیسی خارجی به سرعت کاهش می‌یابد.

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 شدگی ناحیه گذار

Gd به جای Ce در ترکیب $RuGd_{1/5}Ce_{x/5}Sr_4Cu_4O_{10-8}$ سریعتر است. اختلاف شعاع Pr و Gd، فاصله بین یونهای مغناطیسی Pr و صفحات ابررسانای CuO_2 را می‌کاهد و بنابراین تضعیف ارتباطات بین حوزهای فرومغناطیس RuO_2 و Pr/Ce و Gd/Ce است.

پارامترهای مربوط به خواص مغناطیسی این ترکیبها، از جمله T_{irr} و H_c در جایگزینی Pr و Gd به جای Ce با افزایش میزان آلایش کاهش می‌یابند. افزایش فاصله ممانهای Ru-Ru و همچنین کمبود اکسیژن برهمکنش‌های مغناطیسی را در این ترکیبات کاهش می‌دهد. این امر در تطابق کامل با نتایج حاصل از تحلیل ریتولد مبنی بر افزایش پارامتر شبکه c و حجم سلول واحد نمونه‌های Pr/Ce با افزایش میزان آلایش Pr است. افت بیشتر T_{irr} در نمونه‌های Pr/Ce نسبت به نمونه‌های Gd/Ce نشان می‌دهد که فاصله ممانهای Ru-Ru در نمونه‌های Gd/Ce کوچکتر از Pr/Ce است. در جایگزینی Pr به جای Gd اختلاف شعاع یونی Gd و Pr باعث افزایش دمای گذار مغناطیسی می‌شود.

قدردانی

از همفکرینها و کمکهای سعید فلاحی، مجتبی مظاهری و حمید عباس زاده کمال تشکر را داریم. اندازه‌گیری پذیرفتاری ac مغناطیسی نمونه‌ها در آزمایشگاه ابررسانایی در دانشگاه صنعتی اصفهان صورت گرفته است که از آن بابت سپاسگذاریم. این تحقیق توسط قطب علمی سیستمهای پیچیده و ماده چگال، دانشکده فیزیک دانشگاه صنعتی شریف حمایت شده است (www.cscmi.ir).

روند تغییرات H_c بر حسب میزان آلایش Pr در ترکیبات Pr/Gd و Pr/Ce در شکل داخلی شکل ۱۱ نشان داده شده است. برای نمونه‌های Pr/Ce، با افزایش میزان آلایش Pr میزان H_c رفته رفته کاهش می‌یابد. کمبود میزان اکسیژن در صفحات RuO_2 ، باعث تضعیف ارتباطات بین حوزهای فرومغناطیس می‌شود. بنابراین این مسئله باعث کاهش میزان H_c می‌شود. برای نمونه‌های Pr/Gd، H_c با افزایش آلایش Pr افزایش می‌یابد. دلیل این امر می‌تواند ناشی از تفاوت شعاع یونی Gd و Pr و افزایش میزان اکسیژن جذب شده در این ترکیبات باشد. حضور اکسیژن بیشتر در صفحات RuO_2 منجر به تقویت ارتباطات بین حوزهای فرومغناطیس می‌شود و بنابراین میزان H_c و M_{rem} افزایش می‌یابد.

۴. نتیجه‌گیری

خواص ابررسانایی و مغناطیسی ترکیبات $RuGd_{1/5}(Ce_{x/5}Pr_x)Sr_4Cu_4O_{10-8}$ ، $Ru(Gd_{1/5-x}Pr_x)Ce_{x/5}Sr_4Cu_4O_{10-8}$ و $RuGd_{1/5}(Gd_xCe_{x/5-x})Sr_4Cu_4O_{10-8}$ برای مقادیر مختلف x مورد بررسی قرار گرفته‌اند. دمای گذار ابررسانایی برای هر سه جاننشانی با افزایش میزان آلایش کاهش می‌یابد. جایگزینی Gd به جای Ce در ترکیب $RuGd_{1/5}(Gd_xCe_{x/5-x})Sr_4Cu_4O_{10-8}$ دمای گذار ابررسانایی را کاهش می‌دهد. اختلاف شعاع یونی Gd و Ce به عنوان فشار شیمیایی منفی، ابررسانایی را تضعیف می‌نماید. تخریب ابررسانایی در جایگزینی Pr به جای Ce از جایگزینی

مراجع

1. I Felner, U Asaf, Y Levi and O Millo, *Phys. Rev B*, **55** (1997) R 3374; I Felner, U Asaf, Y Levi and O Millo, *Physica C*, **334** (2000) 141.
2. C Bernhard, J L Tallon, Ch Niedermayer, Th Blasius, A Golnik, E Brücher, R K Kremer, D R Noakes, C E Stronack, and E J Asnaldo, *Phys. Rev. B*, **59** (1999) 14099.
3. M Matvejeffa,b, V P S Awanaa, L Y Jangc, R S Liud, H Yamauchia and M Karppinen, *Physica C*, **392-396** (2003) 87-92.
4. I Felner, U Asaf, U and E Galstyan, *Phys. Rev. B*, **66** (2003) 024503.
5. J Dzyaloshinsky, *J. Phys. Chem. Solids* **4** (1958) 241; T Moriya, *Phys. Rev* **120** (1960) 91.
6. 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.
7. H Hadipour, D Sabri, M Mirzadeh, M Akhavan, *Physica Status Solidi C*, **3** (2006) 2982.
8. D Sabri, H Hadipour, M Mirzadeh, M Akhavan, *Physica Status Solidi C*, **3** (2006) 2964.
9. I Felner, E Glastyan, R H Herber and I Nowik, *Phys. Rev. B*, **70** (2004) 094504.
10. M Akhavan, *Physica B*, **321** (2002) 265; Z Yamani

13. J L Tallon, J W Loram, G V M Williams, and C Bernhard, *Phys. Rev. B*, **61** (2000) R6471.
14. 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.
15. A A Abrikosov and L P Gorkov, *J. Exptl. Theor. Phys.* **39** (1960) 1781 [*Sov. Phys. JETP* **12** (1961) 1243].
16. V P S Awana, M A Ansari, Anurag Gupta, R B Saxena, and H Kishan, *Phys. Rev. B*, **70** (2004) 104520.
- and M. Akhavan, *Phys. Rev. B*, **56** (1997) 7894.
11. 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.
12. A C Mclaughlin, J P Attfield, U Asaf and I Felner, *Phys. Rev. B*, **68** (2003) 014503.

Archive of SID