



## بررسی ابررسانای Bi<sub>1.6</sub>Pb<sub>0.4</sub>Sr<sub>2-x</sub>Ba<sub>x</sub>Cu<sub>2</sub>O<sub>y</sub> ساخته شده به روش سل-ژل

سیدابراهیم موسوی قهفرخی\*, سعیده زمانی، مرتضی زرگرشوشتی

گروه فیزیک، دانشکده علوم، دانشگاه شهید چمران اهواز

(دریافت مقاله: ۹۴/۲/۵ ، نسخه نهایی: ۹۴/۶/۱۰)

چکیده: در این مقاله، تأثیر جانشانی Ba و زمان پخت بر سیستم ابررسانای Bi-Pb-Sr-Ca-Cu-O (BPSCCO) بررسی شده است. ابررسانای Bi<sub>1.6</sub>Pb<sub>0.4</sub>Sr<sub>2-x</sub>Ba<sub>x</sub>Cu<sub>2</sub>O<sub>y</sub> با مقادیر  $0/3$  و  $0/25$ ،  $0/15$ ،  $0/10$ ،  $0/05$ ،  $0/00$ ،  $0/2$ ،  $0/05$  = x در زمان‌های پخت  $16$ ،  $32$ ،  $48$  و  $64$  ساعت به روش سل-ژل ساخته شد. از نمونه‌های تهیه شده تصاویر SEM و الگوی پراش پرتو ایکس (XRD) تهیه شدند. با استفاده از زوایای پراش و شناسه‌های میلر، پارامترهای شبکه‌ی بلوری این ترکیب اندازه‌گیری شدند. چگالی جریان بحرانی، دمای بحرانی و مقاومت در دمای اتاق نمونه‌ها به روش چهارمیله‌ای اندازه‌گیری شدند. نتایج حاصل از اندازه‌گیری‌ها نشان داد، که آلاش Ba موجب بهبود خواص ابررسانایی می‌شود، به طوری که بیشترین درصد فاز Bi-2223، چگالی جریان بحرانی، دمای بحرانی و کمترین مقاومت در دمای اتاق به نمونه‌ی با مقدار باریم  $0/2$  = x و زمان پخت  $32$  ساعت وابسته است. همچنین بررسی‌ها نشان دادند که با افزایش زمان پخت، درصد فاز Bi-2223، چگالی جریان، دمای بحرانی نمونه‌ها کاهش و مقاومت در دمای اتاق افزایش می‌یابد. در بررسی الگوی پراش مشاهده شد که حجم سلول واحد با افزایش مقدار باریم افزایش یافت که بیانگر جانشینی Sr در جایگاه Ba است، زیرا شعاع یونی Ba بزرگ‌تر از Sr است.

**واژه‌های کلیدی:** ابررسانای Bi<sub>1.6</sub>Pb<sub>0.4</sub>Sr<sub>2-x</sub>Ba<sub>x</sub>Cu<sub>2</sub>O<sub>y</sub>؛ سل-ژل؛ باریم؛ چگالی جریان بحرانی؛ دمای بحرانی؛ مقاومت در دمای اتاق.

در ترکیب واحدهای سنگ نمک (نوع NaCl) ساخته شده‌اند. ساختار پرووسکایت بر اساس ساختار ماده‌ی معدنی CaTiO<sub>3</sub> نام‌گذاری شده است، و یک ساختار برای مواد معدنی طبیعی و نیز سرامیک‌های صنعتی است [۵-۷]. خواص فیزیکی ابررسانای پایه‌ی بیسموت تا حد زیادی نه تنها به ترکیب عناصر بلکه به جزئیات روش آماده‌سازی نیز بستگی دارد. خواص ابررسانای پایه‌ی بیسموت بهشدت به نقص‌هایی از قبیل جابه‌جایی‌ها، نقص‌های ریز ترکی بستگی دارد. بنابراین بهبود خواص فیزیکی و ابررسانایی را می‌توان با روش‌های ساخت متفاوت بهینه نمود.

روش‌های ساخت، موضوع پژوهشی بسیار مهمی در ابررساناهاست [۸، ۹]. نزدیک بهدو دهه پس از کشف ابررسانایی

### مقدمه

پدیده‌ی ابررسانایی به از بین رفتن مقاومت الکتریکی مواد در دمای معین (دمای بحرانی، T<sub>c</sub>) اطلاق می‌شود. این پدیده در سال ۱۹۱۱ توسط کامرلینگ اونز کشف شد [۱]. از زمان کشف ابررسانای دمای بالا در خانواده‌ی بیسموت‌ها در سال ۱۹۸۶، تحقیقات گسترده‌ای برای بهبود خواص ابررسانایی آن انجام شده است. چون این ابررساناهای دمای گذار بالاتری نسبت به ازت مایع دارند و کار با ازت مایع راحت‌تر و کم‌هزینه‌تر از کار با هلیوم مایع است. لذا این خانواده همچنان مورد توجه پژوهندگان است [۲-۴]. با توجه به ساختار بلوری، بیشترین پیچیدگی ابررساناهای کوپراتی در سیستم‌های Bi-Sr-Ca-Cu-O یافت شده است. این ساختارها از ساختار پرووسکایت‌ها

\*نویسنده مسئول، تلفن: ۰۹۱۶۶۱۷۵۵۷۰، نمبر ۰۶۱-۳۳۳۳۱۰۴، پست الکترونیکی: musavi\_ebrahim@yahoo.co.uk

نسبت‌های وزنی مناسب توزین شدند. با استفاده از جرم مواد اولیه، نخست نیترات بیسموت  $(\text{Bi}(\text{NO}_3)_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O})$  در اسید استیک (۱۰۰ درصد) حل شد. سپس نیترات استرانسیم  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2 \cdot 0.5\text{H}_2\text{O}$ ، نیترات باریم  $(\text{Sr}(\text{NO}_3)_2 \cdot 0.5\text{H}_2\text{O})$ ، نیترات باریم  $(\text{Ca}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot \text{H}_2\text{O})$ ، استات کلسیم  $(\text{Ca}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot \text{H}_2\text{O})$  در آمونیاک ۲۵ استات مس  $(\text{Cu}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot \text{H}_2\text{O})$  در آمونیاک ۲۵ درصد حل و به محلول اولیه اضافه شد. همچنین استات سرب نیز جداگانه در آب حل و به مخلوط قبلی اضافه شد. محلول حاصل بهمنظور همگن شدن به مدت ۳ ساعت با یک همزن مغناطیسی، همزده شد. پس از آن برای جلوگیری از رسوب محلول، با استفاده از آب آمونیاک و یا اسید استیک، pH محلول به مقدار ۵/۵ تنظیم شد. سل بدست آمده طی گرمادهی در گستره‌ی دمایی  $60^{\circ}\text{C}$  تا  $70^{\circ}\text{C}$  چسپناک، و با ادامه‌ی گرما دهی به ژل شفافی تبدیل شد. ژل به دست آمده در کوره‌ی با دمای  $110^{\circ}\text{C}$  قرار داده شد تا پودر خشک به دست آمد. برای از بین بردن آب آمونیاک و گروههای نیترات، به ژل خشک در دمای  $250^{\circ}\text{C}$  با آهنگ  $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$  به مدت ۵ ساعت  $800^{\circ}\text{C}$  به مدت ۱۲ ساعت قرار داده شدند. پودرهای تکلیس شده، بهمنظور همگن شدن به مدت ۲ ساعت آسیا و سپس با اعمال فشاری برابر  $447 \text{ MPa}$  میله‌هایی با طول  $20/4\text{mm}$  و سطح مقطع  $7 \times 2(\text{mm})^2$  ساخته شد. پرس کردن علاوه بر این که باعث بهبود نظم در نمونه و دانه‌بندی ترکیب می‌شود، خواص الکتریکی و مغناطیسی نمونه‌ها را نیز می‌توان اندازه‌گیری کرد. انتخاب دمای پخت از اهمیت ویژه‌ای برخوردار است و معمولاً دمای پخت کمتر از دمای ذوب کامل مواد اولیه انتخاب می‌شود [۱۸]. برای تهیه ابرسانایی  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_{2-x}\text{Ba}_x\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  با مقادیر باریم  $0.3$  و  $0.25$ ،  $x = 0.05$ ،  $0.15$ ،  $0.2$ ،  $0.1$ ،  $0.05$ ،  $0.0$  از هر نمونه، میله‌ای ساخته و در دمای  $845^{\circ}\text{C}$  و زمان‌های پخت مختلف  $16$ ،  $32$ ،  $48$  و  $64$  ساعت درون کوره قرار داده شد. برای اندازه‌گیری دمای بحرانی، چگالی جریان بحرانی و مقاومت در دمای انتقال از روش چهار میله‌ای [۱۹] و الگوهای پراش XRD، پراش‌سنج PW1840 شرکت فیلیپس با آند مسی مورد استفاده قرار گرفتن و برای بررسی ریزساختار

بر پایه‌ی  $\text{Bi}$ ، کارهای زیادی برای بهبود خواص ابرسانایی این دسته از مواد ابرسانا انجام شده است. روش‌های گوناگونی برای ساخت این نوع ابرساناهای پایه‌ی  $\text{Bi}$  انجام شده که به عنوان مثال می‌توان روش حالت جامد [۱۰] و روش سل-ژل [۱۱] اشاره کرد. هرچند عواملی مختلفی به‌طور گسترده برای بهبود خواص ابرسانایی وجود دارد، ولی یکی از این عوامل اثر جانشانی عناصر در این ساختار است [۱۲، ۱۳]. بررسی‌ها نشان داد که یکی از عناصر مهم جانشینی در این ساختار عنصر  $\text{Pb}$  است؛ زیرا جایگزینی  $\text{Pb}$  در جایگاه  $\text{Bi}$  باعث افزایش شکل-گیری و پایداری بیشتر فاز  $\text{Bi}-2223$  می‌شود [۱۴]. معمولاً برای تهیه این ابرسانا بیشتر از روش واکنش حالت جامد است؛ زیرا جایگزینی  $\text{Pb}$  در جایگاه  $\text{Bi}$  باعث افزایش شکل-گیری و پایداری بیشتر فاز  $\text{Bi}-2223$  می‌شود [۱۴]. برای تهیه این ابرسانا در روش سل-ژل ترکیب مواد استفاده شده است [۱۵]، ولی در روش سل-ژل ترکیب مواد در سطح مولکولی شروع می‌شود و انتظار می‌رود که محصول نهایی بسیار همگن باشد. در روش سل-ژل می‌توان اجسامی همگن‌تر در زمان‌های پخت بسیار پایین‌تری نسبت به دیگر روش‌های مرسوم مانند روش واکنش حالت جامد بدست آورد [۱۶]. باریم همانند استرانسیم یک فلز قلیایی خاکی است و شعاع یونی آن از استرانسیم بیشتر است. بنابراین احتمال دارد که با جذب اکسیژن بیشتر، تعداد حفره‌ها روی صفحه‌های  $\text{CuO}_2$  بهینه شده و سازوکار انتقال و سرشتی‌های ابرسانایی مناسب‌تر شود. از طرفی دمای ذوب باریم ( $727^{\circ}\text{C}$ ) از دمای  $845^{\circ}\text{C}$  پایین‌تر است. بنابراین انتظار می‌رود که با کاهش دمای ذوب سیستم در زمان پخت پایین‌تر و در نتیجه سرعت و میزان شکل‌گیری فاز  $\text{Bi}-2223$  افزایش یابد [۱۷]. این کار پژوهشی تلاشی برای تهیه ابرسانایی  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_{2-x}\text{Ba}_x\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  با مقادیر باریم  $0.3$  و  $0.25$ ،  $x = 0.05$ ،  $0.1$ ،  $0.05$ ،  $0.0$  در زمان‌های پخت  $16$ ،  $32$ ،  $48$  و  $64$  ساعت به روش سل-ژل است.

### روش کار و اندازه‌گیری‌ها

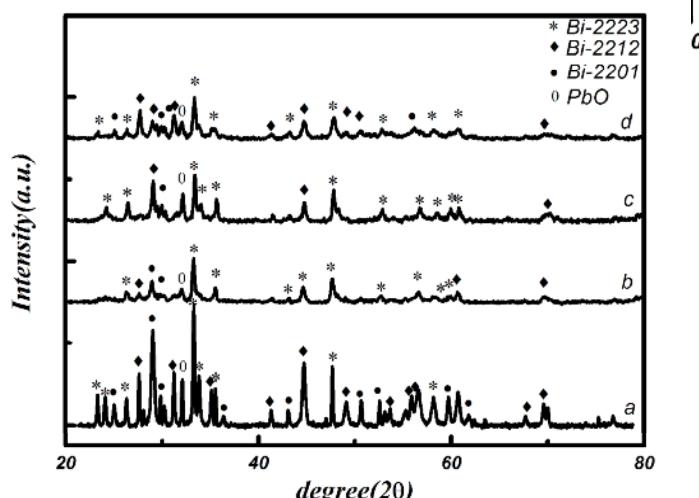
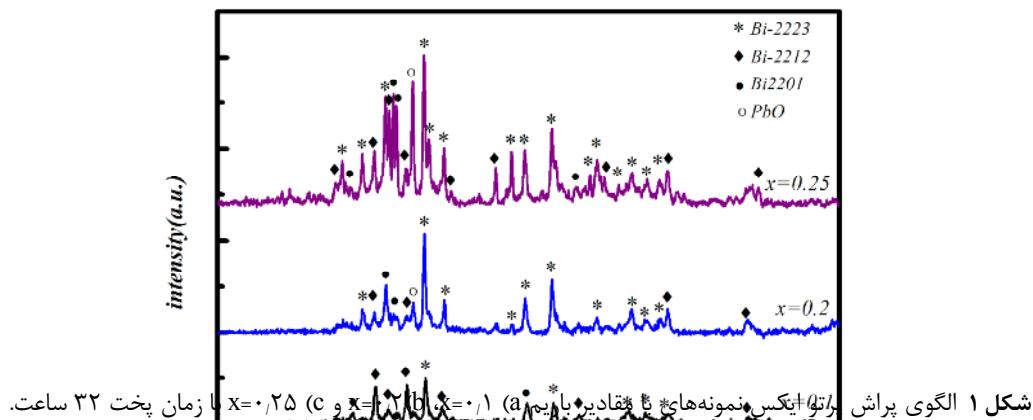
برای تهیه ابرسانایی ترکیب  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_{2-x}\text{Ba}_x\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  از مواد اولیه‌ی شرکت مرک با درجه‌ی خلوص ۹۹/۹ درصد شامل نیترات بیسموت  $(\text{Bi}(\text{NO}_3)_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O})$ ، استات سرب  $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ ،  $\text{Pb}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ ، نیترات استرانسیم  $(\text{Ca}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 0.5\text{H}_2\text{O})$ ، نیترات باریم  $(\text{Ba}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot \text{H}_2\text{O})$  استات مس  $(\text{Cu}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot \text{H}_2\text{O})$  و استات مس  $(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$  پودرهای اولیه با استفاده از یک ترازوی رقمی با دقت  $10^{-4} \text{ g}$  با

جدول‌های ۱ و ۲ آورده شده‌اند. بنابر جدول‌های ۱ و ۲ با افزایش مقدار Ba فازهای ناخالصی Bi-۲۰۱ و Bi-۲۲۱۲ و Bi-۲۲۲۳ کاهش یافته و فاز Bi-۲۲۲۳ افزایش می‌یابد، که احتمالاً به علت کاهش نقطه‌ی ذوب، ترکیب به صورت فاز مایع در آمده و تشکیل فاز مایع باعث بیشتر شدن همگنی محصولات شده و شرایط برای تشکیل فاز Bi-۲۲۲۳ فراهم شد [۲۱]. با توجه به جدول‌های ۱ و ۲ مشاهده می‌شود که بیشترین درصد فاز Bi-۲۲۲۳ وابسته به نمونه‌های با مقدار آلایش  $x = 0.2$  است، به طوری که بهینه‌ی آلایش  $x = 0.2$  در زمان پخت ۳۲ ساعت باشد، که با دمای بحرانی همخوانی دارد. ثابت‌های شبکه شکل‌های ۱ و ۲ با استفاده از شاخص‌های میلر محاسبه شدند، و در جدول‌های ۳ و ۴ درج شده‌اند.

ابرسانانی  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_{2-x}\text{Ba}_x\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  مدل SEM S-4160 ساخت شرکت هیتاچی، تصاویری از نمونه‌ها تهیه شدند.

### بحث و بررسی

در بررسی الگوی پراش نمونه‌ها دو پارامتر مهم، میزان آلایش باریم، و طول زمان پخت، مورد بررسی قرار گرفتند. الگوی پراش نمونه‌های تهیه شده با مقادیر باریم  $x = 0.1, 0.2, 0.25$  و  $0.25$  زمان پخت ۳۲ و الگوی پراش نمونه‌های تهیه شده با مقدار باریم  $x = 0.2$  و زمان‌های پخت ۱۶، ۳۲، ۴۸ و ۶۴ ساعت به ترتیب در شکل‌های ۱ و ۲ نشان داده شده‌اند. همچنین با استفاده از الگوی پراش پرتو ایکس شکل‌های ۱ و ۲، نوع و درصد فازهای موجود در نمونه‌ها تعیین [۲۰] و نتایج در



شکل ۲ الگوی پراش پرتو ایکس نمونه‌های با مقدار باریم  $x = 0.2$  با زمان‌های پخت (a) ۱۶، (b) ۳۲، (c) ۴۸ و (d) ۶۴ ساعت.

جدول ۱ نوع و درصد فازهای موجود در نمونه‌های با مقادیر مختلف باریم در زمان پخت ۳۲ ساعت.

(x) مقدار باریم	۰.۱	۰.۲	۰.۲۵
Bi-۲۲۲۳	۳۹.۸۸	۶۵.۹۴	۵۴.۶۴

Bi-۲۲۱۲	۴۸,۲۶	۱۴,۳۸	۲۱,۷۲
Bi-۲۲۰۱	۱۱,۸۶	۱۳,۴۰	۱۶,۰۹
PbO	.	۶,۲۸	۷,۵۵

جدول ۲ نوع و درصد فازهای موجود در نمونه‌ی با مقدار باریم  $x = 0/2$  در زمان‌های پخت مختلف.

(h) زمان پخت	۱۶	۳۲	۴۸	۶۴
Bi-۲۲۲۳	۳۲,۳۵	۶۵,۹۴	۶۴,۰۷	۴۰,۳۴
Bi-۲۲۱۲	۴۵,۰۳	۱۴,۳۸	۲۱,۹۳	۳۹,۶۹
Bi-۲۲۰۱	۱۷,۲۹	۱۳,۴۰	۴,۷۲	۱۴,۱۱
PbO	۴,۳۳	۶,۲۸	۹,۲۸	۵,۸۶

جدول ۳ مقادیر ثابت شبکه‌ی نمونه‌های با مقادیر باریم مختلف در زمان پخت ۳۲ ساعت.

(x) مقدار باریم	۰/۱	۰/۲	۰/۲۵
a (Å)	۵,۴۱۱۱	۵,۴۲۰۸	۵,۴۰۶۲
b(Å)	۵,۳۹۸۲	۵,۳۷۱۲	۵,۳۷۱۳
c (Å)	۳۰,۴۳۱۴	۳۷,۰۲۵۵	۳۷,۱۶۴۵

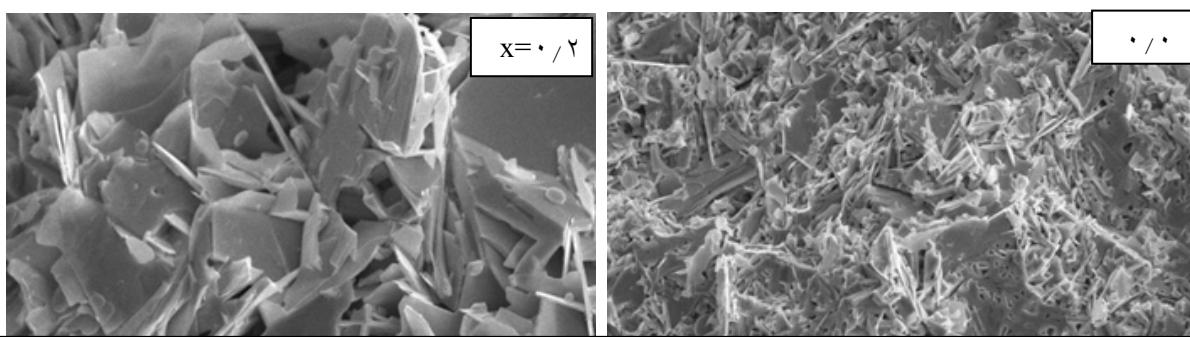
جدول ۴ مقادیر ثابت شبکه‌ی نمونه‌ی با مقدار باریم  $x = 0/2$  در زمان‌های پخت مختلف.

(h) زمان پخت	۱۶	۳۲	۴۸	۶۴
a (Å)	۵,۳۹۱۲	۵,۴۲۰۸	۵,۴۰۶۸	۵,۴۱۷۸
b(Å)	۵,۳۹۹۱	۵,۳۷۱۲	۵,۳۹۴۸	۵,۴۸۲۳
c (Å)	۳۰,۷۳۶۱	۳۷,۰۲۵۵	۳۶,۹۳۹۶	۳۶,۹۰۷۸

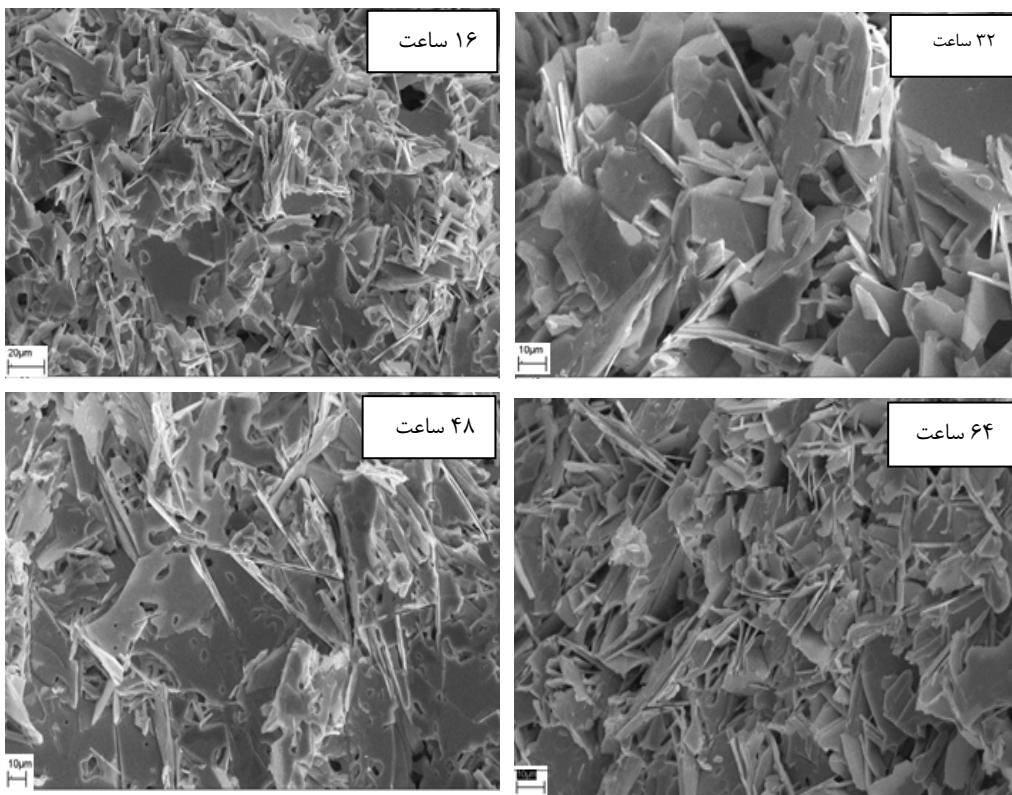
ها بزرگتر شده و ارتباط بین دانه‌ای بهبود یافته است. از تصاویر شکل ۳ مشاهده می‌شود که نمونه‌ی خالص  $x = 0/0$  دانه‌ها کوچک و شکل تخلخلی است؛ ولی با افزایش Ba در نمونه‌ی  $x = 0/2$  تصویر SEM حالت ورقه‌ای پیدا کرده و تخلخل نمونه کمتر، شده و پیوند بین دانه‌ای نسبت به نمونه‌ی  $x = 0/0$  بهبود یافته، است. ولی با افزایش Ba در نمونه‌ی  $x = 0/25$  تخلخل نمونه نسبت به نمونه‌ی  $x = 0/2$  بیشتر شده است؛ لذا چگالی جریان بحرانی دوباره کاهش می‌یابد. از تصاویر شکل ۴ مشاهده می‌شود که با افزایش دمای پخت، نمونه‌ها حالت ورقه‌ای خود را از دست داده و تخلخل در نمونه‌ها افزایش یافته است.

در بررسی نمونه‌ی آلایش نشده و نمونه‌های آلایش شده، مشاهده شد که پارامتر شبکه C با افزایش باریم افزایش می‌یابد. این نشان می‌دهد که باریم در ساختار Bi-۲۲۲۳ جایگزین و چون شعاع یونی آن بزرگتر از استرانسیم است، باعث افزایش پارامتر C شبکه شده است.

برای بررسی ریخت‌شناسی، از برخی نمونه‌ها تصاویر SEM گرفته شد که برای نمونه‌های با مقادیر باریم  $0/25$  و  $0/2$ ،  $x = 0/0$  با زمان پخت ۳۲ و ساعت نمونه‌های تهیه شده با مقدار باریم  $x = 0/2$  در زمان‌های پخت ۱۶، ۳۲، ۴۸ و ۶۴ ساعت به ترتیب در شکل‌های ۳ و ۴ نشان داده شده‌اند. از این تصاویر مشاهده می‌شود که با افزایش مقدار باریم اندازه‌ی دانه-



شکل ۳ تصاویر SEM نمونه‌های تهیه شده با مقدار مختلف باریم و زمان پخت ۳۲ ساعت.

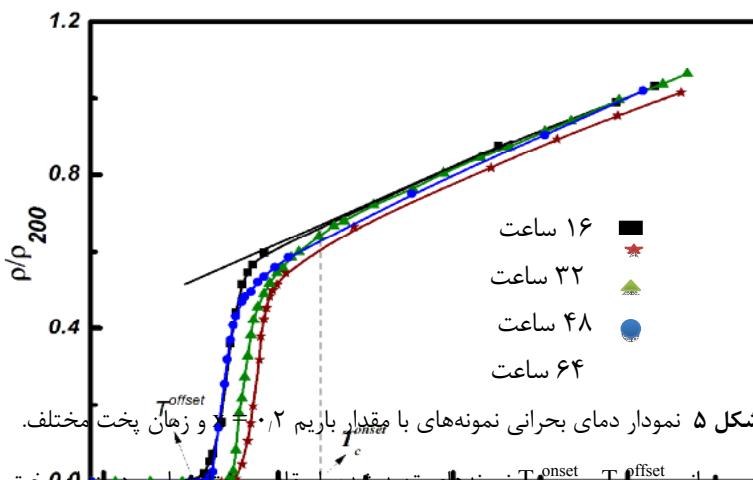
شکل ۴ تصاویر SEM نمونه‌های با مقدار باریم  $x = 0/2$  تهیه شده در زمان‌های پخت مختلف.

که بهترتبیب  $T_c^{\text{onset}}$  و  $T_c^{\text{offset}}$  مشخص می‌شود. دمای بحرانی  $x = 0/2$  نمونه‌های تهیه شده با مقدار مختلف آلایش باریم در زمان پخت ۳۲ ساعت و برای نمونه‌ی با مقدار باریم  $x = 0/2$  با زمان‌های پخت ۱۶، ۳۲، ۴۸ و ۶۴ ساعت، در جدول‌های ۵ و ۶ آورده شده‌اند. با توجه بهنمودارهای دمای بحرانی و نیز نتایج ارائه شده در جدول‌های ۵ و ۶، مشاهده می‌شود که دمای بحرانی نمونه‌ی خالص و آلایش یافته با مقدار باریم  $x = 0/05$  زیر ۷۷ K است، ولی با افزایش آلایش باریم تا

نتایج حاصل از اندازه‌گیری دمای بحرانی نمونه‌های آلایش داده شده با مقدار باریم  $x = 0/2$  در زمان‌های پخت ۱۶، ۳۲، ۴۸ و ۶۴ ساعت و برای مقدار باریم  $x = 0/05$  و ۰/۱۰، ۰/۲۵ و ۰/۳۲ ساعت با زمان پخت ۳۲ ساعت بهترتبیب در شکل‌های ۵ و ۶ نشان داده شده‌اند. بنابر شکل ۵، در منحنی‌های  $\sigma-T$  دو مرحله‌ی گذار رخ می‌دهد. مرحله‌ی اول یک افت نسبتاً تیز در مقاومت (با گذار درون‌دانه‌ای) و مرحله‌ی دوم افت نسبتاً آرام (با جفت‌شدگی کامل دانه‌ها و ابررسانایی کامل) را نشان می‌دهد

مقدار آلایش باریم این پهنهای گذار کاهش می‌یابد. این کم شدن پهنهای گذار می‌تواند به دلیل کاهش فازهای ناخالصی و بهبود سطح تماس دانه‌های ابررسانا در نمونه‌ها باشد که با افزایش چگالی جریان بحرانی هم خوانی دارد. باریم همانند استرانسیم یک فلز قلیایی خاکی است و شعاع یونی آن از استرانسیم بیشتر است بنابراین احتمال دارد که با جذب اکسیژن بیشتر، تعداد حفره‌ها در صفحات  $\text{CuO}_2$  بهینه شده و سازوکار انتقال ابررسانایی مناسب‌تر شود [۲۳].

$x = 0/2$  دمای بحرانی افزایش یافته است. در همهی زمان‌های پخت بیشترین دمای بحرانی به نمونه‌ی با مقدار باریم  $0/2$   $x = 0/2$  وابسته است. علت افزایش دمای بحرانی به دلیل افزایش درصد فاز Bi-۲۲۲۳ است که از دمای بحرانی بالاتری نسبت به فازهای Bi-۲۲۰۱ و Bi-۲۲۱۲ برخوردار است. همچنین این تغییر دمای بحرانی می‌تواند به علت نقش باریم در شکل‌گیری فاز Bi-۲۲۲۳ باشد [۲۲]. همچنین مشاهده می‌شود که گذار  $x = 0/1$  در دمای بحرانی نمونه با آلایش  $T_c^{\text{onset}} = ۹۹\text{ K}$  با وجود دارد؛ ولی با افزایش  $T_c^{\text{offset}} = ۱۳۳/۵۸\text{ K}$  و  $T_c^{\text{onset}} = ۱۳۳/۵۸\text{ K}$  با افزایش



شکل ۵ نمودار دمای بحرانی نمونه‌های با مقادیر باریم  $0/2$  و زمان پخت مختلف.

جدول ۵ دمای بحرانی  $T_c^{\text{onset}}$  و  $T_c^{\text{offset}}$  نمونه‌ی تهیه شده با مقدار باریم  $0/2$  در زمان ۳۲ ساعت.

مقدار باریم (x)	۰/۰	۰/۰۵	۰/۱	۰/۱۵	۰/۲	۰/۲۵
$T_c^{\text{offset}}(\text{K})$	۷۷<	۷۷<	۹۹	۱۰۳	۱۰۹	۱۰۳
$T_c^{\text{onset}}(\text{K})$	۷۷<	۷۷<	۱۳۳/۵۸	۱۳۵/۸۹	۱۳۰/۲	۱۲۵/۷۳

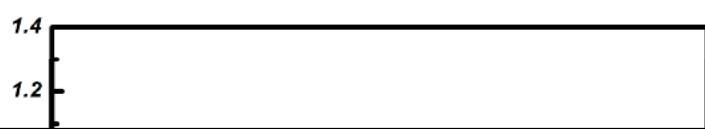
جدول ۶ دمای بحرانی  $T_c^{\text{onset}}$  و  $T_c^{\text{offset}}$  نمونه‌های با مقدار باریم  $0/2$  در زمان‌های پخت مختلف.

زمان پخت (h)	۱۶	۳۲	۴۸	۶۴
$T_c^{\text{offset}}(\text{K})$	۱۰۱	۱۰۹	۱۰۸	۱۰۳
$T_c^{\text{onset}}(\text{K})$	۱۳۰/۳۹	۱۳۰/۲	۱۳۳/۸۷	۱۲۹/۸۴

در شکل‌های ۷ و ۸ نشان داده شده‌اند. در شکل ۷ چگالی جریان بحرانی آستانه  $J_{c0}$  چگالی جریانی است که نمونه از حالت ابررسانایی کامل به حالت محلوت وارد می‌شود) و عادی (J<sub>c</sub>) چگالی جریانی است که در آن نمونه به حالت معمولی می‌رود) آورده شده‌اند. چگالی جریان بحرانی  $J_{c0}$  و  $J_c$  نمودارهای V-J شکل‌های ۷ و ۸ محاسبه شد. و نتایج در جدول‌های ۷ و ۸ نشان داده شده‌اند. نمودار چگالی جریان بحرانی نمونه‌ها به روشنی نشان می‌دهد که آلایش باریم موجب افزایش چگالی جریان بحرانی می‌شود. با توجه به ننمودارها و جدول‌ها، مشاهده می‌شود که با آلایش‌های مختلف در زمان

با توجه به شکل ۶ نمونه‌های با آلایش باریم  $0/2$   $x = 0/2$  و زمان پخت متفاوت، مشاهده می‌شود که دمای بحرانی با کاهش زمان پخت به مقدار کمی افزایش می‌یابد به طوری که بیشترین  $T_c^{\text{offset}}$  به نمونه با زمان پخت ۳۲ ساعت وابسته است. افزایش دمای بحرانی در دمای پایین‌تر به دلیل پایین بودن دمای ذوب باریم ( $۷۲۷^{\circ}\text{C}$ ) است، زیرا سرعت و میزان شکل‌گیری فاز Bi-۲۲۲۳ در زمان پخت پایین‌تر بیشتر شده و در نتیجه دمای بحرانی افزایش می‌یابد [۲۲].

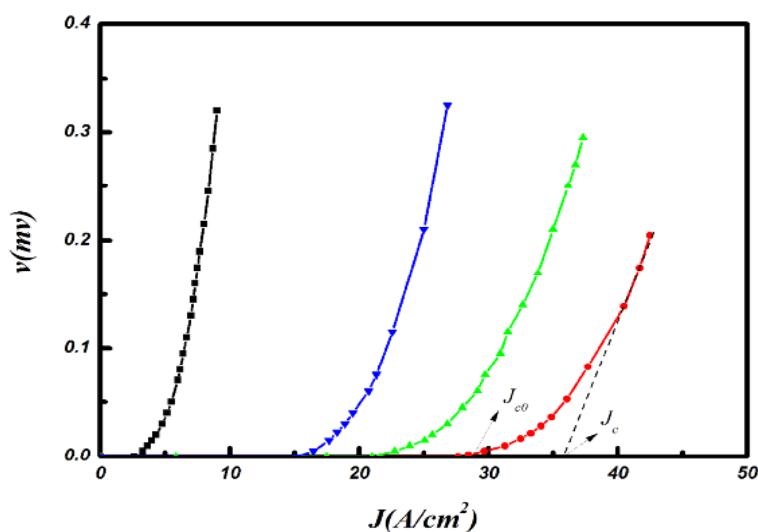
نتایج حاصل از اندازه‌گیری چگالی جریان بحرانی نمونه‌های آلایش داده شده با مقدار باریم  $0/2$  در زمان‌های پخت ۱۶، ۳۲، ۴۸، ۶۴ ساعت و نمونه‌های با مقادیر باریم

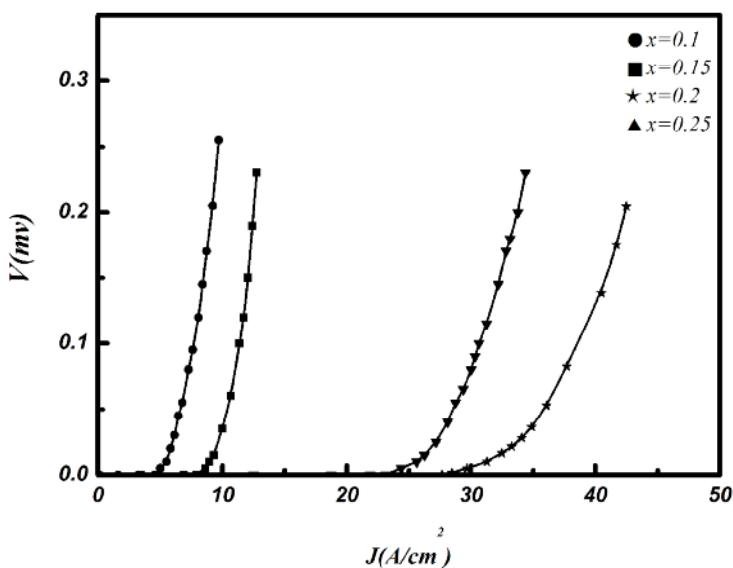


پخت یکسان، چگالی جریان بحرانی نمونه‌های آلایش داده شده، با افزایش مقدار Ba تا  $x = 0.2$  افزایش و برای مقادیر



شکل ۶ نمودار دمای بحرانی نمونه‌های با مقادیر مختلف باریم در زمان پخت ۳۲ ساعت.





شکل ۸ نمودار  $J-V$  نمونه‌های با مقادیر مختلف باریم و زمان پخت ۳۲ ساعت.

جدول ۷ مقادیر چگالی جریان بحرانی  $J_{\infty}$  و  $J_c$  نمونه‌های با مقادیر مختلف باریم در زمان پخت ۳۲ ساعت.

مقادیر باریم (x)	۰/۱	۰/۱۵	۰/۲	۰/۲۵
$J_{\infty} (A/cm^2)$	۴,۵۳	۷,۹۳	۲۷,۶۶	۲۳,۱۲
$J_c (A/cm^2)$	۸,۰۱	۱۱,۳۶	۳۶,۱۹	۲۹,۴۶

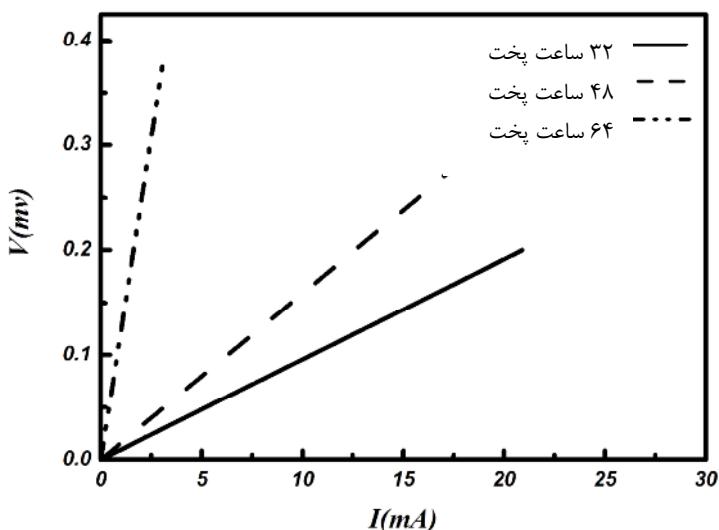
جدول ۸ چگالی جریان بحرانی  $J_{\infty}$  و  $J_c$  نمونه‌های با مقدار باریم  $x = ۰/۲$  در زمان‌های پخت مختلف.

(h)	۱۶	۲۲	۴۸	۶۴
$J_{\infty} (A/cm^2)$	۲,۶۱	۲۷,۶۶	۲۱	۱۵,۲۴
$J_c (A/cm^2)$	۵,۸۵	۳۶,۱۹	۲۱,۴۱	۲۱,۱۹

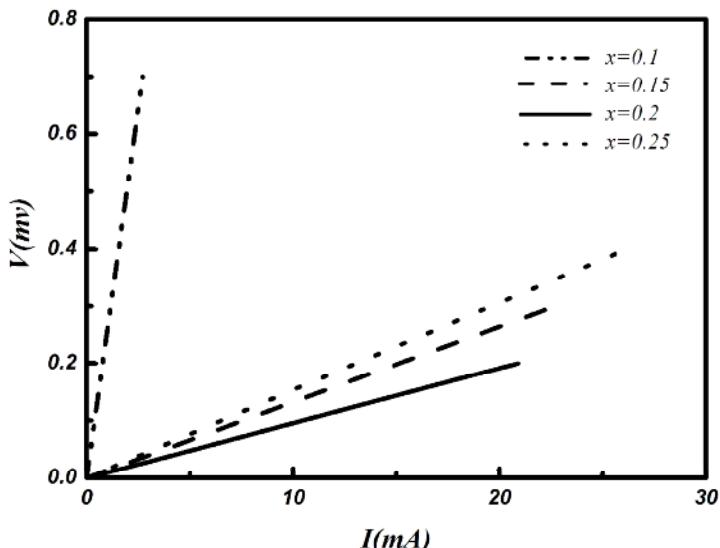
بهینه در زمان پخت بسیار پایین‌تری نسبت به روش واکنش حالت جامد به دست آمده است [۱۷].

برای اندازه‌گیری مقاومت در دمای اتاق، نمونه‌های آلایش داده شده با مقدار باریم  $x = ۰/۲$  در زمان‌های پخت ۳۲، ۴۸ و ۶۴ ساعت و نمونه‌های با مقادیر باریم  $۰/۲۵, ۰/۲, ۰/۱۵, ۰/۱$  در زمان پخت ۳۲ ساعت نمودار  $V-I$  آن‌ها در دمای اتاق رسم شدند و نمودارها به ترتیب در شکل‌های ۹ و ۱۰ نشان داده شده‌اند. از شکل‌های ۹ و ۱۰ مشاهده می‌شود که نمونه‌ها در دمای اتاق رفتاری کاملاً فلزی دارند. در شکل ۹ وابسته به نمونه‌های با مقدار باریم  $x = ۰/۲$  و با زمان‌های پخت متفاوت مشاهده می‌شود که زمان پخت ۳۲ ساعت دارای کمترین مقاومت در دمای اتاق است که به دلیل پیوند بهتر بین دانه‌ای است. همچنین از شکل ۱۰ پیداست که نمونه‌ی با مقدار باریم  $x = ۰/۲$  کمترین مقاومت را در دمای اتاق دارد.

علت افزایش چگالی جریان بحرانی به دلیل آن است که با افزایش مقدار باریم اندازه دانه‌ها بزرگتر شده به طوری که در نمونه‌ی با مقدار باریم  $x = ۰/۲$  تصویر SEM آن حالت ورقه‌ای پیدا کرده و تخلخل نمونه کمتر شده و ارتباط بین دانه‌ای بهبود یافته است. با افزایش زمان پخت، چگالی جریان بحرانی کاهش می‌یابد زیرا با توجه به تصاویر شکل ۴ مشاهده می‌شود که با افزایش دمای پخت نمونه‌ها حالت ورقه‌ای خود را از دست داده و تخلخل در نمونه‌ها افزایش یافته است. افزایش چگالی جریان بحرانی با زمان پخت کمتر می‌تواند به دلیل پایین بودن دمای ذوب باریم ( $۷۲۷^{\circ}\text{C}$ ) باشد، زیرا سرعت و میزان شکل‌گیری فازهای ابررسانایی در زمان پخت پایین‌تر بیشتر شده و در نتیجه چگالی جریان بحرانی افزایش یافت [۲۲, ۲۱]. چون نمونه‌ها به روش سل-ژل ساخته شده‌اند، لذا چگالی جریان



شکل ۹ نمودار V-I نمونه‌های با مقدار باریم  $x = 0.2$  و زمان‌های پخت مختلف.



شکل ۱۰ نمودار V-I نمونه‌های با مقادیر مختلف باریم در زمان پخت ۳۲ ساعت.

اتصال بین دانه‌ای در این زمان پخت است. مقایسه‌ی دما و چگالی جریان بحرانی نمونه‌های آلایش شده و بدون آلایش نشان می‌دهند که نقش باریم در بهبود خواص ابررسانایی بسیار مهم است. نتایج حاصل از اندازه‌گیری‌ها نشان می‌دهد که بهبود خواص ابررسانایی در روش سل-ژل (روش ساخت نمونه‌های این پژوهش) در مقایسه با روش واکنش حالت جامد در نمونه‌های آلایش شده و بدون آلایش، در زمان‌های پخت خیلی پایین‌تری رخ می‌دهد.

#### مراجع

- [1] Onnes H. K., Akod J. B., "Futher experiments with liquid helium", vetenschffen, 14, 818 (1911).

برداشت سیستم ابررسانای Bi-Pb-Sr-Ca-O(BPSCCO) به روش سل-ژل ساخته شد و تأثیر آلایش Ba با مقادیر  $0.05, 0.1, 0.15, 0.2, 0.25$  و  $0.3$  در جایگاه Sr در زمان‌های پخت  $16, 32, 48$  و  $64$  ساعت مورد بررسی قرار گرفت. نتایج حاصل از الگوهای پراش پرتو ایکس نشان می‌دهد که درصد فاز Bi-۲۲۲۳ در نمونه با میزان آلایش باریم  $0.2$  در زمان پخت  $32$  و  $48$  ساعت بیشترین مقدار را دارد. همچنین بررسی‌ها نشان می‌دهد که بیشترین چگالی جریان بحرانی و کمترین مقاومت در دمای اتناق به نمونه‌ی با میزان آلایش باریم  $0.2$  و زمان پخت  $32$  ساعت وابسته است که نشان دهنده‌ی بهبود

- محله بلورشناسی و کانی شناسی ایران، سال بیست و سوم، شماره‌ی اول، بهار ۹۴ در حال چاپ.
- [14] Shi F., Rong T. S., Zhou S. Z., Wu X. F., Du J., Shi Z. H., Cui C. G., Jin R. Y., Zhang J. L., Ran Q. Z., Shi N. C., "Preparation process crystal structure and physical properties of the 110 K single phase Bi-Pb-Sr-Ca-Cu-O superconductor", Phys. Rev. B 41, 6541 (1990).
- [15] موسوی قهفرخی س.ا.، زرگر شوشتاری م.، "ساخت و بررسی تأثیر نانوذرات  $Sb_2O_3$  بر ابررسانای  $Bi$ -۲۲۲۳"، مجله بلورشناسی و کانی شناسی ایران، سال هجدهم، شماره ۲، تابستان ۱۳۸۹، از صفحه ۲۸۷ تا ۳۰۰.
- [16] Brinker C.J., Scherer G.W., "The Physics and Chemistry of Sol-Gel Processing", Academic Press. Sol-Gel Science, ISBN 0-12-134970-5 (1990).
- [17] سلامتی، م.، مرشدلو، ت.، کاملی، پ.، باقی، م.، احمدلو، ح.ا. ع.، سهرابی، د.، "اثر جانشینی  $Ba$  در جایگاه  $Sr$  در ابررسانای  $Bi$ -۲۲۲۳"، مجله پژوهش فیزیک ایران، جلد ۱۰، اخوان پلا، ۱۳۸۹.
- [18] زمانی، س.، موسوی قهفرخی س.ا.، زرگر شوشتاری م.، "تأثیر آلایش  $Ba$  بر ساختار و چگالی جریان بحرانی فاز ۲۲۲۳ تهیه شده به روش سل-زل"، بیست یکمین همایش بلور شناسی و کانی شناسی ایران، بهمن ماه ۱۳۹۲.
- [19] Mousavi Ghahfarokhi, S.E., Zargar Shoushtari M., "Structural and Physical Properties of Cd-doped  $Bi_{1.64}Pb_{0.36}Sr_2Ca_{2-x}Cd_xCu_3O_y$  superconductor", Physica B 405, 4643 (2010).
- [20] Zargar Shoushtari M., Mousavi Ghahfarokhi S.E., "A Study of the Magnetic Properties of  $Bi_{1.64-x}Pb_{0.36}Cd_xSr_2Ca_2Cu_3O_y$  superconductor", J. Supercond Nov Magn, 24, 1505 (2011).
- [21] Maqsood A., Khaliq M., Maqsood M., "Role of barium addition on the properties of bismuth-based superconductors", Journal of materials science 27, 5330 (1992).
- [22] Gul I. H., Rehman M. A., Ali M., Maqsood A., "Effect of vanadium and barium on the Bi-based (2223) superconductors", Physica C 432, 71 (2005).
- [23] Salamat H., Kameli P., Morshedloo T., Abdolhosseini I., Ahmadv H., Baghi M., H., Koohani, Beirami H., "The Effect of Barium Doping on the Selective Structure of Bi-2223Phase", J Supercond Nov Magn 24, 1267 (2011).

- [2] Parinov I. A., "Parinov, Microstructure and properties of high-temperature superconductor", Springer-Verlag Berlin Heidelberg (2012).
- [3] Michel C., Herriau M., Borel M. M., Grandin A., Deslandes F., Provost J. and Baveau B., "Superconductivity in the Bi-Sr-Cu-O system", Z. Phys. B 68, 421 (1987).
- [4] Sastry P. V. P. S. S., Gopalakrishnan I. K., Sequeira A., Rajagopal H., Gangadharan K., Phatak G. M. Iyer R. M., "On the preparation and structure of the 81 K single phase superconductor in the Bi-Ca-Sr-Cu-O", Physica C 156, 230 (1988).
- [5] Mamalis A. G., Manolakos D. E., szalay A., pantazopoulos G., "processing of High-temperature superconductors at high strain rates", INC.851, New Holland Avenue, (2000).
- [۶] اخوان، م.، یمنی ز.س.، "پیشرفت‌های ابررسانای دمای بالا"، انتشارات دانشگاه صنعتی شریف (۱۳۸۱).
- [7] Wida M., Saiwan K. J., "Enhanced superconducting properties of the Pb doped trilayer high-temperature ( $Bi_2Sr_2Ca_{n-1}Cu_nO_{2n+4\delta}$ ) cuprate superconductor", Physical Sciences 7, 171 (2012).
- [8] Yurchenko I. A., Alekseev A. F., Yurchenko D. O., Badica P., Gridasova T. Ya., Morozov V. V., Nemirovsky A. V., Peklun V. F., "Intensification of synthesis and examination of technological parameters influence on the properties and structure of Bi-(Pb)-Sr-Ca-Cu-O ceramics", Physica C 348, 111 (2003).
- [9] Sotelo A., Szillat H., Majewski P., Aldinger F., "Rapid synthesis of the Bi-2212 phase by a polymer matrix method", Supercond. Sci. Technol. 10, 717 (1997).
- [10] Mousavi Ghahfarokhi, S. E., Zargar Shoushtari M., "The effect of Sb and Pb doping on the critical temperature of the  $Bi_{1.6}Pb_xSb_ySr_2Ca_2Cu_3O_z$  superconductor", J. Supercond Nov Magn. 27, 1153 (2014).
- [11] Tanaka K., Nozue A., Kamiya K., "Preparation of (Bi,Pb)-Sr-Ca-Cu-O superconductor by the sol-gel method", J. Mater. Sci. 25, 3552 (1990).
- [12] Ghattas A., Annabi M., Zouaoui M., Ben Azzouz F., Ben Salem M., "Flux pinning by Al-based nano particles embedded in polycrystalline (Bi, Pb)-2223 superconductors", Physica C 468, 31 (2008).
- [۱۳] موسوی قهفرخی س.ا.، زرگر شوشتاری م.، حسینزاده ن.، "بررسی ابررسانای  $Bi$ -۲۲۲۳ آلتیده با نانوذرات  $CdO$ "،