



## بررسی ابررسانای $Bi_{1.6}Pb_{0.4}Sr_{2-x}Ba_xCa_2Cu_3O_y$ ساخته شده به روش سل-ژل

سیدابراهیم موسوی قهفرخی\*، سعیده زمانی، مرتضی زرگرشوستری

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  $Bi_{1.6}Pb_{0.4}Sr_{2-x}Ba_xCa_2Cu_3O_y$  با مقادیر ۰/۳، ۰/۲۵، ۰/۲، ۰/۱۵، ۰/۱، ۰/۰۵، ۰/۰ و ۰/۰ در زمان‌های پخت ۱۶، ۳۲، ۴۸ و ۶۴ 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 آرایش Ba موجب بهبود خواص ابررسانایی می‌شود، به طوری که بیشترین درصد فاز  $Bi_{1.6}Pb_{0.4}Sr_{2-x}Ba_xCa_2Cu_3O_y$  چگالی جریان بحرانی، دمای بحرانی و کمترین مقاومت در دمای اتاق به نمونه‌ی با مقدار باریم  $x = 0.2$  و زمان پخت ۳۲ ساعت وابسته است. همچنین بررسی‌ها نشان دادند که با افزایش زمان پخت، درصد فاز  $Bi_{1.6}Pb_{0.4}Sr_{2-x}Ba_xCa_2Cu_3O_y$  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 Ba در جایگاه Sr است، زیرا شعاع یونی Ba بزرگتر از Sr است.

**واژه‌های کلیدی:** ابررسانای  $Bi_{1.6}Pb_{0.4}Sr_{2-x}Ba_xCa_2Cu_3O_y$  سل-ژل؛ باریم؛ چگالی جریان بحرانی؛ دمای بحرانی؛ مقاومت در دمای اتاق.

### مقدمه

در ترکیب واحدهای سنگ نمک (نوع NaCl) ساخته شده‌اند. ساختار پرووسکایت بر اساس ساختار ماده‌ی معدنی  $CaTiO_3$  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 به شدت به نقص‌هایی از قبیل جابه‌جایی‌ها، نقص‌های ریز ترک ترکیب 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 به دو دهه پس از کشف ابررسانایی

پدیده‌ی ابررسانایی به از بین رفتن مقاومت الکتریکی مواد در دمای معین (دمای بحرانی،  $T_c$ ) 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 ابررساناها، 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 پژوهشگران 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

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 ( $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2 \cdot 0.5\text{H}_2\text{O}$ )، نیترات باریم ( $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2 \cdot 0.5\text{H}_2\text{O}$ )، استات کلسیم ( $\text{Ca}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ ) و 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 به منظور 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 ۶۰ تا ۷۰ °C چسپناک، و با ادامه‌ی گرما دهی به ژل شفاف تبدیل شد. ژل به دست آمده در کوره‌ی با دمای ۱۱۰ °C قرار داده شد تا پودر خشک به دست آمد. برای از بین بردن آب آمونیاک و گروه‌های نیترات، به ژل خشک در دمای ۲۵۰ °C با آهنگ ۱۰ °C/min به مدت ۵ ساعت گرمادهی شد. برای جلوگیری از تشکیل فازهای ناخواسته و خروج گروه‌های نیترات و استات در نمونه، نمونه‌ی مورد نظر تکلیس شد. بدین ترتیب که نمونه‌ها درون بوته‌هایی از آلومینا ریخته و درون کوره الکتریکی در دمای ۸۰۰ °C به مدت ۱۲ ساعت قرار داده شدند. پودرهای تکلیس شده، به منظور همگن‌تر شدن به مدت ۲ ساعت آسیا و سپس با اعمال فشاری برابر ۴۴۷ MPa میله‌هایی با طول ۲۰٫۴mm 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 تهیه‌ی ابررسانای  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_{2-x}\text{Ba}_x\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  با مقادیر باریم ۰٫۳ و ۰٫۲۵، ۰٫۲، ۰٫۱۵، ۰٫۱، ۰٫۰۵، ۰٫۰۳ و ۰٫۰۱، x از هر نمونه، میله‌ای ساخته و در دمای ۸۴۵ °C و زمان‌های پخت مختلف ۱۶، ۳۲، ۴۸ و ۶۴ ساعت درون کوره قرار داده شد. برای اندازه‌گیری دمای بحرانی، چگالی جریان بحرانی و مقاومت در دمای اتاق 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 Bi، کارهای زیادی برای بهبود خواص ابررسانایی این دسته از مواد ابررسانا انجام شده است. روش‌های گوناگونی برای ساخت این نوع ابررساناهای پایه‌ی Bi انجام شده که به‌عنوان مثال می‌توان روش حالت جامد [۱۰] و روش سل-ژل [۱۱] اشاره کرد. هرچند عواملی مختلفی به‌طور گسترده برای بهبود خواص ابررسانایی وجود دارد، ولی یکی از این عوامل اثر جانمایی عناصر در این ساختار است [۱۲، ۱۳]. بررسی‌ها نشان داد که یکی از عناصر مهم جانمایی در این ساختار عنصر Pb است؛ زیرا جایگزینی Pb در جایگاه Bi باعث افزایش شکل-گیری و پایداری بیشتر فاز  $\text{Bi}_{1-x}\text{Pb}_x$  می‌شود [۱۴]. معمولاً برای تهیه‌ی این ابررسانا بیشتر از روش واکنش حالت جامد 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 ابررسانایی مناسب‌تر شود. از طرفی دمای ذوب باریم (۷۲۷ °C) از دمای کلوخه‌سازی (۸۴۵ °C) پایین‌تر است. بنابراین انتظار می‌رود که با کاهش دمای ذوب سیستم در زمان پخت پایین‌تر و در نتیجه سرعت و میزان شکل‌گیری فاز  $\text{Bi}_{1-x}\text{Pb}_x$  افزایش یابد [۱۷]. این کار پژوهشی تلاشی برای تهیه‌ی ترکیب ابررسانای  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_{2-x}\text{Ba}_x\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  با مقادیر باریم ۰٫۳ و ۰٫۲۵، ۰٫۲، ۰٫۱۵، ۰٫۱، ۰٫۰۵، ۰٫۰۳ و ۰٫۰۱، x در زمان‌های پخت ۱۶، ۳۲، ۴۸ و ۶۴ ساعت به روش سل-ژل است.

#### روش کار و اندازه‌گیری‌ها

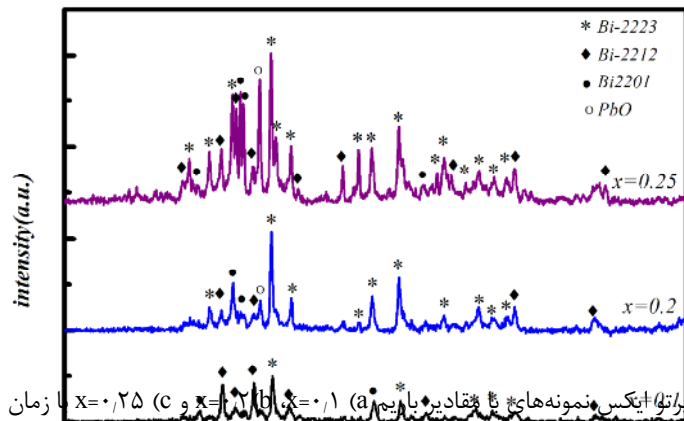
برای تهیه‌ی ترکیب  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_{2-x}\text{Ba}_x\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  از مواد اولیه‌ی شرکت مرک با درجه‌ی خلوص ۹۹٫۹۹ درصد شامل نیترات بیسموت ( $\text{Bi}(\text{NO}_3)_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ )، استات سرب ( $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$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

جدول‌های ۱ و ۲ آورده شده‌اند. بنابر جدول‌های ۱ و ۲ با افزایش مقدار Ba فازهای ناخالصی  $\text{Bi-2201}$  و  $\text{Bi-2201}$  کاهش یافته و فاز  $\text{Bi-2223}$  افزایش می‌یابد، که احتمالاً به علت کاهش نقطه‌ی ذوب، ترکیب به‌صورت فاز مایع در آمده و تشکیل فاز مایع باعث بیشتر شدن همگنی محصولات شده و شرایط برای تشکیل فاز  $\text{Bi-2223}$  فراهم شد [۲۱]. با توجه به جدول‌های ۱ و ۲ مشاهده می‌شود که بیشترین درصد فاز  $\text{Bi-2223}$  وابسته به‌نمونه‌های با مقدار آلیش  $x = 0.2$  است، به‌طوری‌که بهینه‌ی آلیش  $x = 0.2$  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.

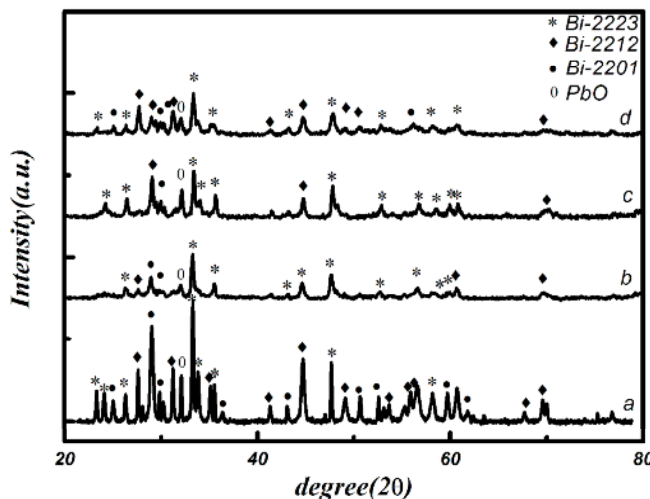
ابرسانای  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_{2-x}\text{Ba}_x\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  SEM مدل S-4160 ساخت شرکت هیتاچی، تصاویری از نمونه‌ها تهیه شدند.

### بحث و بررسی

در بررسی الگوی پراش نمونه‌ها دو پارامتر مهم، میزان آلیش 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 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 ۱ الگوی پراش پرتو ایکس نمونه‌های با مقادیر باریم (a)  $x=0.1$ ، (b)  $x=0.2$  و (c)  $x=0.25$  با زمان پخت ۳۲ ساعت.



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.

مقدار باریم (x)	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	۰	۶,۲۸	۷,۵۵

جدول ۲ نوع و درصد فازهای موجود در نمونه‌ی با مقدار باریم  $x = 0.2$  در زمان‌های پخت مختلف.

زمان پخت (h)	۱۶	۳۲	۴۸	۶۴
Bi-۲۲۲۳	۳۳,۳۵	۶۵,۹۴	۶۴,۰۷	۴۰,۳۴
Bi-۲۲۱۲	۴۵,۰۲	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.

مقدار باریم (x)	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

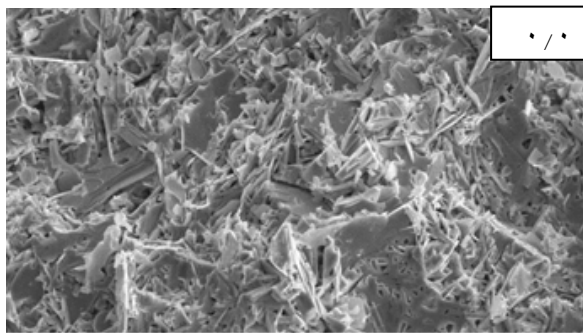
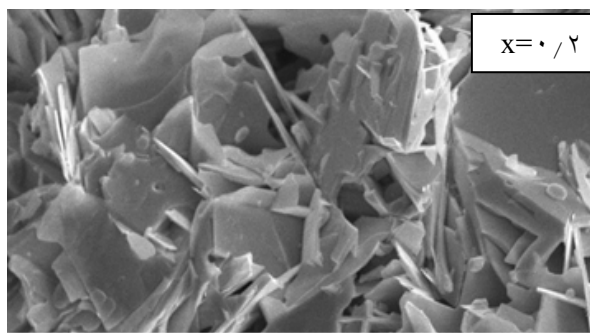
جدول ۴ مقادیر ثابت شبکه‌ی نمونه‌ی با مقدار باریم  $x = 0.2$  در زمان‌های پخت مختلف.

زمان پخت (h)	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

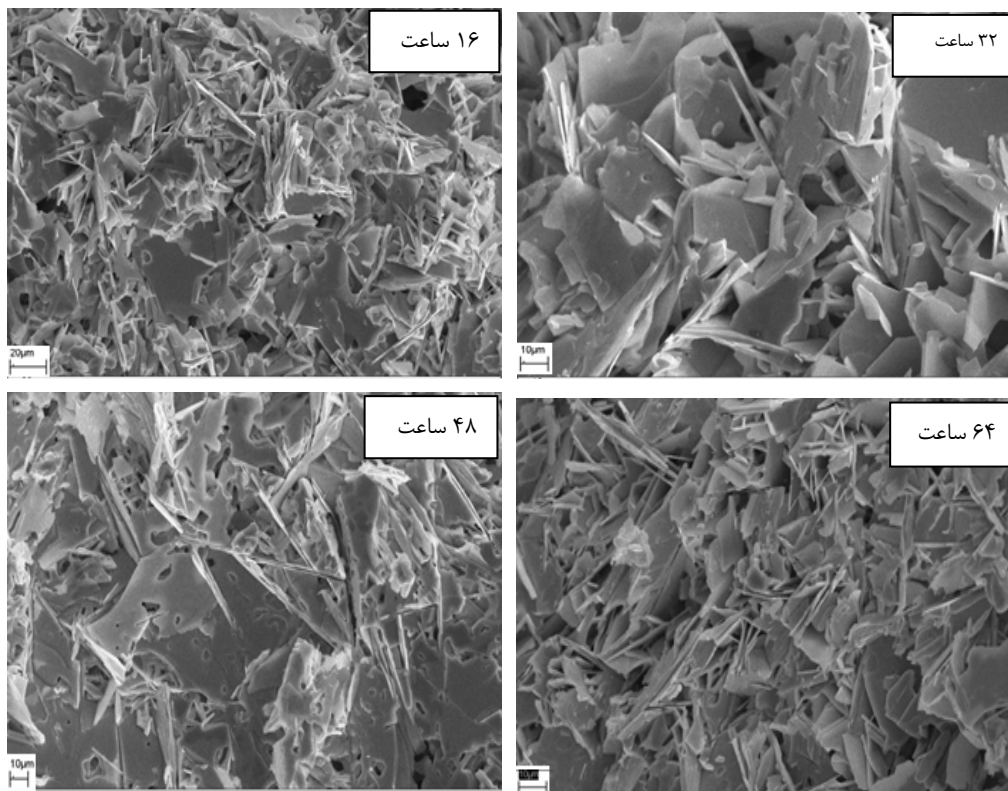
ها بزرگتر شده و ارتباط بین دانه‌ای بهبود یافته است. از تصاویر شکل ۳ مشاهده می‌شود که نمونه‌ی خالص  $x = 0.1$ ، دانه‌ها کوچک و شکل تخلخلی است؛ ولی با افزایش Ba در نمونه‌ی  $x = 0.2$  تصویر SEM حالت ورقه‌ای پیدا کرده و تخلخل نمونه کمتر، شده و پیوند بین دانه‌ای نسبت به نمونه‌ی  $x = 0.1$  بهبود یافته، است. 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 آلیش نشده و نمونه‌های آلیش 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 ۰.۲۵ و ۰.۲،  $x = 0.1$  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 مقادیر مختلف باریم و زمان پخت ۳۲ ساعت.

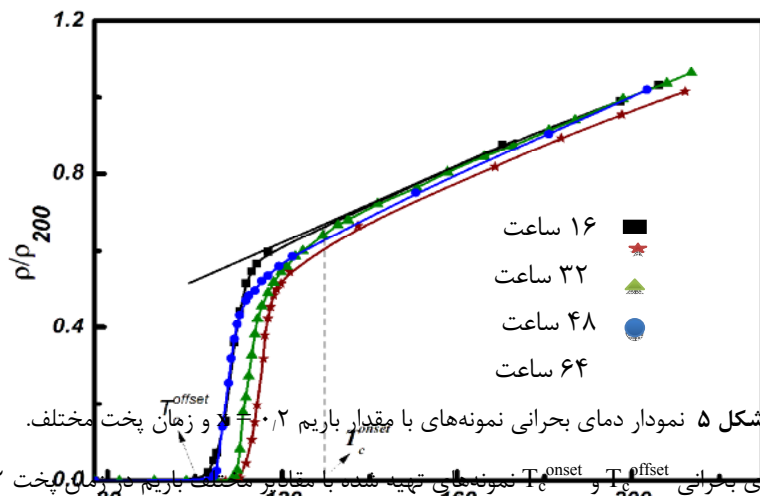
شکل ۴ تصاویر SEM نمونه‌های با مقدار باریم  $x = 0.2$  تهیه شده در زمان‌های پخت مختلف.

که به ترتیب  $T_c^{\text{onset}}$  و  $T_c^{\text{offset}}$  مشخص می‌شود. دمای بحرانی  $T_c^{\text{onset}}$  و  $T_c^{\text{offset}}$  نمونه‌های تهیه شده با مقادیر 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 جدول-های ۵ و ۶ آورده شده‌اند. با توجه به نمودارهای 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 تا  $x = 0.05$  زیر  $77\text{ K}$  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 مقادیر باریم  $0.25$ ،  $0.2$ ،  $0.1$ ،  $0.05$  و  $x = 0.2$  با زمان پخت ۳۲ ساعت به ترتیب در شکل‌های ۵ و ۶ نشان داده شده‌اند. بنابر شکل ۵، در منحنی‌های  $\rho$ - $T$  دو مرحله‌ی گذار رخ می‌دهد. مرحله‌ی اول یک افت نسبتاً تیز در مقاومت (که گذار درون‌دانه‌ای) و مرحله‌ی دوم افت نسبتاً آرام (با جفت‌شدگی کامل دانه‌ها و ابرسانی کامل) را نشان می‌دهد

مقدار آرایش باریم این پهنای گذار کاهش می‌یابد. این کم شدن پهنای گذار می‌تواند به دلیل کاهش فازهای ناخالصی و بهبود سطح تماس دانه‌های ابررسانا در نمونه‌ها باشد که با افزایش چگالی جریان بحرانی هم‌خوانی 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 به‌نمونه‌ی با مقدار باریم  $x = 0.2$  وابسته است. علت افزایش دمای بحرانی به دلیل افزایش درصد فاز  $\text{Bi-2223}$  است که از دمای بحرانی بالاتری نسبت به فازهای  $\text{Bi-2201}$  و  $\text{Bi-2212}$  برخوردار است. هم‌چنین این تغییر دمای بحرانی می‌تواند به علت نقش باریم در شکل‌گیری فاز  $\text{Bi-2223}$  باشد [۲۲]. هم‌چنین مشاهده می‌شود که گذار پهنی در دمای بحرانی نمونه با آرایش  $x = 0.1$  با  $T_c = 99 \text{ K}$  و  $T_c^{\text{onset}} = 133.58 \text{ K}$  وجود دارد؛ ولی با افزایش



شکل ۵ نمودار دمای بحرانی نمونه‌های با مقدار باریم  $x = 0.2$  و زمان پخت مختلف. جدول ۵ دمای بحرانی  $T_c^{\text{onset}}$  و  $T_c^{\text{offset}}$  نمونه‌هایی تهیه شده با مقدار مختلف باریم در زمان پخت ۳۲ ساعت.

مقدار باریم (x)	0.0	0.05	0.1	0.15	0.2	0.25
$T_c^{\text{offset}}(\text{K})$	77<	77<	99	103	109	103
$T_c^{\text{onset}}(\text{K})$	77<	77<	133.58	135.89	130.2	125.73

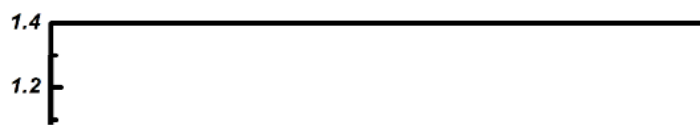
جدول ۶ دمای بحرانی  $T_c^{\text{onset}}$  و  $T_c^{\text{offset}}$  نمونه‌های با مقدار باریم  $x = 0.2$  در زمان‌های پخت مختلف.

زمان پخت (h)	16	32	48	64
$T_c^{\text{offset}}(\text{K})$	101	109	108	103
$T_c^{\text{onset}}(\text{K})$	130.39	130.2	133.87	129.84

با توجه به شکل ۶ نمونه‌های با آرایش باریم  $x = 0.2$  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 ( $727^\circ\text{C}$ ) است، زیرا سرعت و میزان شکل‌گیری فاز  $\text{Bi-2223}$  در زمان پخت پایین‌تر بیشتر شده و در نتیجه دمای بحرانی افزایش می‌یابد [۲۲].

نتایج حاصل از اندازه‌گیری چگالی جریان بحرانی نمونه‌های آرایش داده شده با مقدار باریم  $x = 0.2$  در زمان‌های پخت ۱۶، ۳۲، ۴۸ و ۶۴ ساعت و نمونه‌های با مقادیر باریم

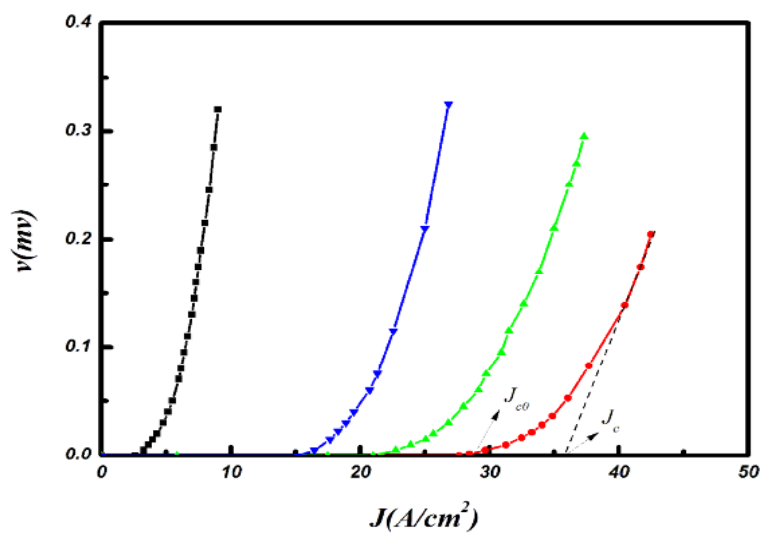
با توجه به شکل ۷ و ۸ نشان داده شده‌اند. در شکل ۷ چگالی جریان بحرانی آستانه ( $J_{c0}$ ) چگالی جریانی است که نمونه از حالت ابررسانایی کامل به حالت مخلوط وارد می‌شود و عادی ( $J_c$ ) چگالی جریانی است که در آن نمونه به حالت معمولی می‌رود) آورده شده‌اند. چگالی جریان بحرانی  $J_{c0}$  و  $J_c$  نمودارهای  $V-J$  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 آرایش باریم موجب افزایش چگالی جریان بحرانی می‌شود. با توجه به نمودارها و جدول‌ها، مشاهده می‌شود که با آرایش‌های مختلف در زمان

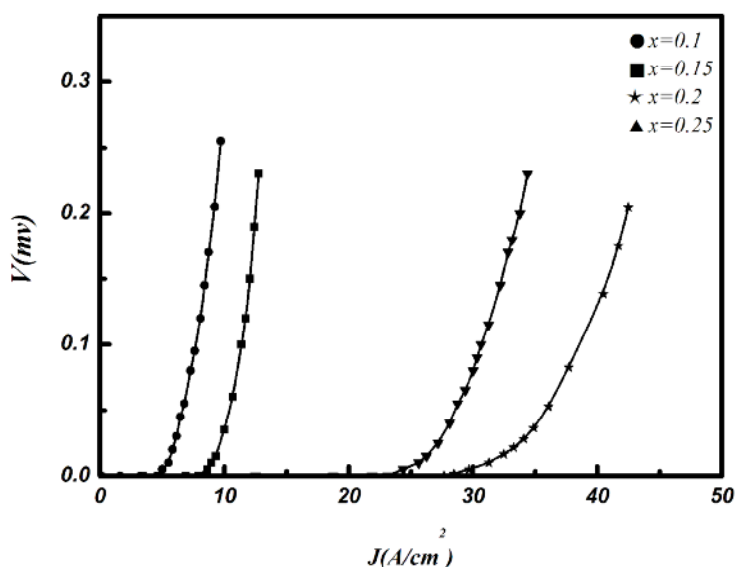


پخت یکسان، چگالی جریان بحرانی نمونه‌های آلیش داده شده، با افزایش مقدار Ba تا  $x = 0.2$  افزایش و برای مقادیر بیشتر Ba،  $x > 0.2$  کاهش می‌یابد.

- $x=0/0$
- $x=0/1$
- ◆  $x=0/2$
- ▲  $x=0/25$

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





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

جدول ۷. مقادیر چگالی جریان بحرانی  $J_{c0}$  و  $J_c$  نمونه‌های با مقادیر مختلف باریم در زمان پخت ۳۲ ساعت.

مقدار باریم (x)	۰٫۱	۰٫۱۵	۰٫۲	۰٫۲۵
$J_{c0}$ (A/cm <sup>2</sup> )	۴٫۵۳	۷٫۹۳	۲۷٫۶۶	۲۳٫۱۲
$J_c$ (A/cm <sup>2</sup> )	۸٫۰۱	۱۱٫۳۶	۳۶٫۱۹	۲۹٫۴۶

جدول ۸. چگالی جریان بحرانی  $J_{c0}$  و  $J_c$  نمونه‌های با مقدار باریم  $x = 0.2$  در زمان‌های پخت مختلف.

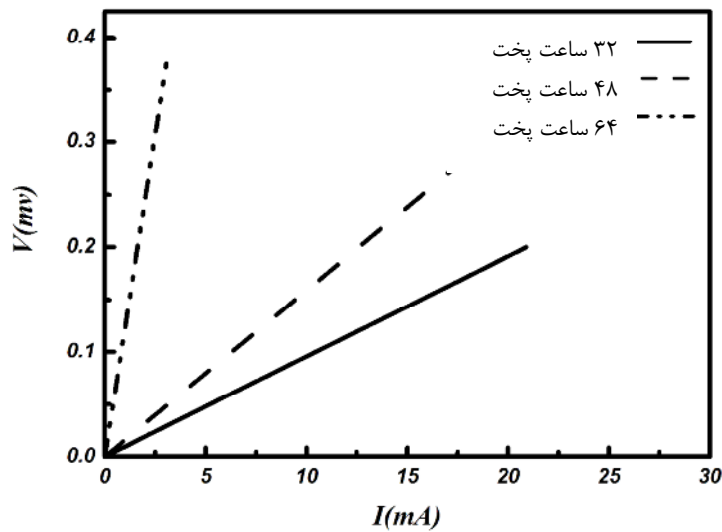
زمان پخت (h)	۱۶	۳۲	۴۸	۶۴
$J_{c0}$ (A/cm <sup>2</sup> )	۲٫۶۱	۲۷٫۶۶	۲۱	۱۵٫۲۴
$J_c$ (A/cm <sup>2</sup> )	۵٫۸۵	۳۶٫۱۹	۳۱٫۴۱	۲۱٫۱۹

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

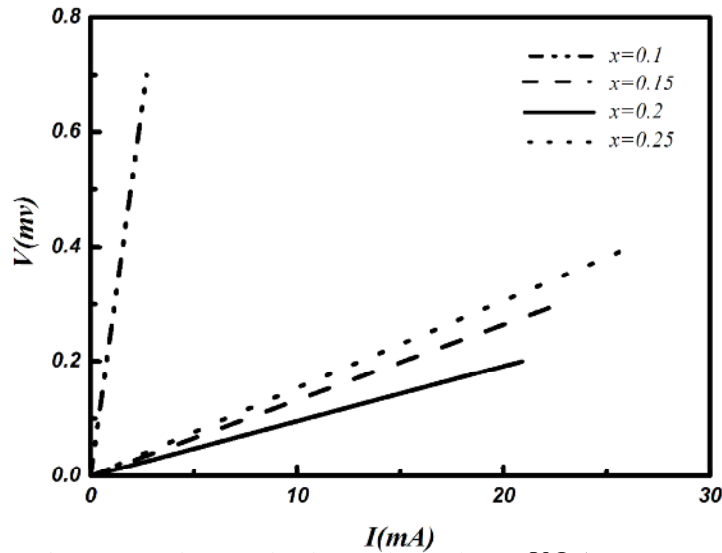
برای اندازه‌گیری مقاومت در دمای اتاق، نمونه‌های آرایش داده شده با مقدار باریم  $x = 0.2$  در زمان‌های پخت ۳۲، ۴۸ و ۶۴ ساعت و نمونه‌های با مقادیر باریم ۰٫۲۵، ۰٫۲، ۰٫۱۵، ۰٫۱ و  $x = 0.1$  در زمان پخت ۳۲ ساعت نمودار V-I آن‌ها در دمای اتاق رسم شدند و نمودارها به ترتیب در شکل‌های ۹ و ۱۰ نشان داده شده‌اند. 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  $x = 0.2$  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 دانه‌های است. همچنین از شکل ۱۰ پیداست که نمونه‌ی با مقدار باریم  $x = 0.2$  کمترین مقاومت را در دمای اتاق دارد.

علت افزایش چگالی جریان بحرانی به دلیل آن است که افزایش مقدار باریم اندازه‌دانه‌ها بزرگتر شده به طوری که در نمونه‌ی با مقدار باریم  $x = 0.2$  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 ( $727^\circ\text{C}$ ) باشد، زیرا سرعت و میزان شکل‌گیری فازهای ابررسانایی در زمان پخت پایین‌تر بیشتر شده و در نتیجه چگالی جریان بحرانی افزایش یافت [۲۱، ۲۲]. 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 آلاینش شده و بدون آلاینش نشان می‌دهند که نقش باریم در بهبود خواص ابرسانایی بسیار مهم است. نتایج حاصل از اندازه‌گیری‌ها نشان می‌دهد که بهبود خواص ابرسانایی در روش سل-ژل (روش ساخت نمونه‌های این پژوهش) در مقایسه با روش واکنش حالت جامد در نمونه‌های آلاینش شده و بدون آلاینش، 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 ابرسانای  $\text{Bi-Pb-Sr-Ca-Cu-O}$  (BPSCCO) به روش سل-ژل ساخته شد و تأثیر آلاینش Ba با مقادیر ۰،۰۵، ۰،۱، ۰،۱۵، ۰،۲، ۰،۲۵ و ۰،۳ در جایگاه Sr در زمان‌های پخت ۱۶، ۳۲، ۴۸ و ۶۴ ساعت مورد بررسی قرار گرفت. نتایج حاصل از الگوهای پراش پرتو ایکس نشان می‌دهد که درصد فاز  $\text{Bi-}2223$  در نمونه با میزان آلاینش باریم ۰،۲ در زمان پخت ۳۲ و ۴۸ ساعت بیشترین مقدار را دارد. همچنین بررسی‌ها نشان می‌دهد که بیشترین چگالی جریان بحرانی و کمترین مقاومت در دمای اتاق به نمونه‌ی با میزان آلاینش باریم ۰،۲ و زمان پخت ۳۲ ساعت وابسته است که نشان دهنده‌ی بهبود

مجله بلورشناسی و کانی شناسی ایران، سال بیست و سوم، شماره ۱، 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).

[۱۵] موسوی قهفرخی س.ا.، زرگر شوشتری م.، "ساخت و بررسی تأثیر نانوذرات  $Sb_2O_3$  بر ابررسانای  $Bi-2223$ "، 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).

[۱۷] سلامتی ه.، مرشدلو ت.، کاملی پ.، باقی م.، احمدلو ح.ا. ع.، سهرابی د.، "اثر جاننشینی  $Ba$  در جایگاه  $Sr$  در ابررسانای دمای بالا  $Bi-2223$ "، مجله پژوهش فیزیک ایران، جلد ۱۰، تابستان ۱۳۸۹.

[۱۸] زمانی س.، موسوی قهفرخی س.ا.، زرگر شوشتری م.، "تأثیر آرایش  $Ba$  بر ساختار و چگالی جریان بحرانی فاز  $2223$  -  $Bi$  تهیه شده به روش سل - ژل"، 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] Salamati H., Kameli P., Morshedloo T., Abdolhosseini I., Ahmadv H., Baghi M., H., Koochani, Beirami H., "The Effect of Barium Doping on the Selective Structure of  $Bi-2223$  Phase", 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., Herrieu 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 شوشتری م.، حسینزاده ن.، "بررسی ابررسانای  $Bi-2223$  آلاییده با نانوذرات  $CdO$ "،