

## دراسة تأثير التعويض الجزئي والتلدين المتكرر في الخصائص الكهربائية للمركب $Tl_{2-x}Ag_xSr_{2-y}Ba_yCa_2Cu_3O_{10+\delta}$ الفائق التوصيل الكهربائي المحضر بتقنية النانو

نهاد علي شفيق

قسم الفيزياء / كلية التربية- طوز خورماتو/ جامعة تكريت

عبد الكريم دهش علي

خالد حمدي رزيح

قسم الفيزياء /كلية التربية للعلوم الصرفة / جامعة تكريت

استلم في: ١١ شباط ٢٠١٥ قبل في: ١٠ اذار ٢٠١٥

### الخلاصة

تم تحضير العينات المركب  $Tl_{2-x}Ag_xSr_{2-y}Ba_yCa_2Cu_3O_{10+\delta}$  بطريقة تفاعل الحالة الصلبة ومن ثم تم تحويل عناصرها الى حجم النانوي بوساطة طاحونة نانوية وبتراكيز مختلفة لـ  $x,y$  اذا  $(x,y=0.1,0.2,0.3,0.4,0.5)$  وتم كيس العينات باستعمال مكبس هيدروليكي  $8 \text{ ton/cm}^2$  ومن ثم تم تلدين النماذج بدرجة حرارة  $850^\circ\text{C}$  لمدة (٧٢) ساعة. لوحظ من خلالها ان افضل نسبة تعويض لـ  $x,y$  هي 0.3 اذ ان افضل درجة حرارة تحول هي  $T_c=(141) \text{ K}$  عند  $x,y=0.3$ ، واطهرت دراسة وفحص النماذج بوساطة مجهر القوة الذرية AFM بان افضل معدل البعد النانوي هي  $91.75 \text{ nm}$  عند نسبة التعويض 0.3 . ومن ثم تم فحص النماذج بوساطة المجهر الالكتروني الماسح و(EDX) لمعرفة نسبة العناصر وتبين من خلال تصوير العينات هنالك مناطق داكنة ومناطق فاتحة يدل على وجود عناصر ثقيلة وعناصر خفيفة على التركيب.

الكلمات المفتاحية : توصيلية فائقة ، درجة الحرارة الحرجة ، نانو تكنولوجيا ، تلدين

## المقدمة

الموصلات فائقة التوصيل سميت هكذا نظرا لانها عند درجة حرارة معينة (منخفضة نسبيا) تصبح مقاومتها للكهرباء مساوية للصفر، وتصبح قدرتها على توصيل فائقة جدا انه اذا ما وجد تيار كهربائي في حلقة متصلة من هذه المادة فانه سوف يسري داخل الحلقة بدون وجود مصدر للجهد الكهربائي .:

قبل عام 1911 كان الاعتقاد السائد ان جميع المواد تصبح فائقة التوصيل الكهرباء فقط عند درجة الحرارة الصفر المطلق اي  $273^{\circ}\text{C}$ . ولكن في تلك السنة لوحظ ان الزئبق النقي تصبح مقاومته مساوية للصفر عند درجة حرارة  $4.2^{\circ}\text{C}$  مطلق اي  $269^{\circ}\text{C}$  [1].

في عام (1994) قام العلماء S.H.Pawar, P.M. Shirage, D.D. Shivagan بجامعة شيفاجي (Shivaji) بالهند بدراسة خواص المركب  $\text{Ti-2223/Ag(Tl-Ba-Ca-Cu-O)}$  المحضر بتقنية نانو وحصلوا على درجة حرارة حرجة  $T_c$   $127\text{K}$  عند بعد نانوي  $35\text{nm}$  [2].

وفي دراسة Yang & Liber (1997) [3] تم تحضير المركب  $\text{Ti}_2\text{Ba}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_z$  فائق التوصيل على هيئة اغشية سميكة وتم اضافة تركيز عال من  $\text{MgO}$  لقضيب نانوي وقد اوضحت الدراسة المجهرية للمركب وجود قضبان نانوية على شكل عيوب من دقائق حبيبات اوكسيد النحاس  $\text{CuO}_2$  وكان لهذه الطريقة دور في تحسين كثافة التيار الحرج كما مبين في الشكل (1).

وقام العالم Przybylski et.al (2007) [4] باستعمال المجهر الالكتروني النافذ (TEM) لدراسة التركيب للمركب  $(\text{Ti}_{0.5}\text{Pb}_{0.5})(\text{Sr}_{0.8}\text{Ba}_{0.2}\text{Ca}_2\text{CuO}_y)$  المحضر على هيئة أغشية رقيقة وظهرت النتائج تحت المجهر الالكتروني الماسح وجود عيوب سطحية وانخلاعات ظاهرة على محور (100).

وقد استنتج Shirag et. Al (2001) [5] في بحثه على  $(\text{Ag/Tl-Ba-Ca-CuO/Cdse})$  ان المعادن شبه موصلة والتوصيل الفائق تشكل معا ثورة في عالم الاجهزة الالكترونية والاجهزة ذات القدرة الانتقالية العالية وذلك باستعمال طريقة dc electro-deposition باستعمال مركبات كيميائية مثل  $\text{KOH}$  بعيارية 1N.

اما دراسة Suzan et.al (2012) [6] فقد شملت تأثير التلدين للاغشية الرقيقة للمركب  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_{2.2}\text{Zn}_{0.8}\text{O}_{10}$  المحضر بطريقة النبضات الليزرية تحت درجات حرارية مختلفة  $^{\circ}\text{C}$  (820,840,860,880) وبتوافر الاوكسجين بمعدل 2liter/min وبمعدل حرارة  $15^{\circ}\text{C}/\text{min}$ ، وتم فحص الاغشية الرقيقة بواسطة XRD(X-Ray defraction) فضلا عن قياسات المقاومة الكهربائية والمقاسة بطريقة Four-Probe Technique.

## الجانب العملي

### تحضير العينات

من اجل تحضير العينات وجب توفير المواد والمستلزمات الاتية :

#### المواد المستعملة في تحضير العينات

1. مواد كيميائية ذات نقاوة تصل الى 99,9% وهي اوكسيد التالوم  $\text{Ti}_2\text{O}_3$  واوكسيد النحاس  $\text{CuO}$  وكاربونات الباريوم  $\text{Ba CO}_3$  وكاربونات الكالسيوم  $\text{Ca CO}_3$  و نترات السنترونيوم  $\text{Sr(NO}_3)_2$  واوكسيد الفضة  $\text{Ag}_2\text{O}_3$  (الماني المنشأ).
2. كحول الايزوبروبانول Isopropanol ( $\text{C}_3\text{H}_7\text{O}$ ) ويسمى ايضا 2-propanol.
3. غاز الاوكسجين  $\text{O}_2$  وقد استخدم لتوفير الجو المشبع بهذا الغاز اثناء عملية التلدين.

#### الاجهزة المستعملة في تحضير العينات :

1. ميزان حساس نوع (G.M.B.A) ذو دقة مقدارها (0.0001).
2. بودقة خزفية Ceramic Boat
3. هاون صغير من العقيق Gate mortar
4. فرن حراري ذو درجة حرارية بحدود ( $1150^{\circ}\text{C}$ ).
5. منظم لدرجات الحرارة العالية (Furnace Controlling)
6. فرن من النوع المبطن بالخرزف والفسخار Furnace.
7. مكبس هيدروليكي (Hydraulic press) ذو مدى من 1 الى 15 طن / سم<sup>2</sup>.

## طريقة تحضير العينات

تم تحضير العينات بطريقتين طريقة تفاعل الحالة الصلبة وطريقة نانوية باستعمال طاحونة نانوية المطلوبة لهذه الدراسة وذلك باخذ اوزان معينة ومناسبة وحسب الاوزان الذرية من المواد الاتية : مواد كيميائية ذات نقاوة تصل الى ٩٩,٩% وهي اوكسيد التالوم  $Tl_2O_3$  واوكسيد النحاس  $CuO$  وكاربونات الباريوم  $BaCO_3$  وكاربونات الكالسيوم  $CaCO_3$  ونترات السترونيوم  $Sr(NO_3)_2$  واوكسيد الفضة  $Ag_2O_3$  (الماني المنشأ) كما يأتي.

$$W(Tl_2O_3) = ((2-x)/2)[2(204.383) + 3(15.999)] = 456.763 \text{ g/mole}$$

$$W(Ag_2O_3) = x/2[2(107.868) + 3(15.999)] = 263.673 \text{ g/mole}$$

$$W(Sr(NO_3)_2) = ((2-y)/2)[87.62 + 2(14.007) + 6(15.999)] = 211.61 \text{ g/mole}$$

$$W(BaCO_3) = y/2[137.33 + 3(15.999) + 12] = 197.327 \text{ g/mole}$$

$$W(CaCO_3) = 2[40.08 + 12.011 + 3(15.999)] = 200.176 \text{ g/mole}$$

$$W(CuO) = 3[63.546 + 15.999] = 238.635 \text{ g/mole}$$

$$W_1 + W_2 + W_3 + W_4 + W_5 + W_6$$

يتم مزج هذه المساحيق وذلك للحصول على المركبات المطلوبة للدراسة ، ومن ثم وضع هذه المواد داخل بودقة ثم تطحن طحنا جيدا باستعمال طاحونة مصنعة من مادة العقيق (gate mortar) لمدة نصف ساعة لكي يصبح الخليط متجانسا . يتم اضافة كحول الايزوبروبانول ( $C_3H_8O$ ) اثناء عملية الطحن وذلك لتفادي تساقط او فقدان اجزاء من المسحوق اثناء عملية الطحن . وتوضع في داخل فرن كهربائي وبدرجة حرارة تتراوح بين  $50^{\circ}C - 60^{\circ}C$  وذلك للتخلص من كحول الايزوبروبانول ثم توضع داخل بودقة خزفية ويتم وزن المادة اولا ( $WG_1$ ) وتوضع هذه الاقراص في فرن كهربائي منظم حراريا تصل مداها الى  $1100^{\circ}C$  بريطاني الصنع من نوع Carbolite في جو من الهواء وترفع درجة حرارتها الى  $850^{\circ}C$  وبمعدل تسخين ( $120^{\circ}C / hr$ ) يبقى هذا النموذج لمدة (١٢) ساعة عند درجة حرارة ( $850^{\circ}C$ ) ثم ينزل النموذج ليبرد الى درجة حرارة الغرفة وبمعدل ( $30^{\circ}C / hr$ ) .

ويتم السيطرة على درجة حرارة الفرن باستعمال منظم حراري ومن ثم يتم اخراج النموذج من الفرن الحراري ثم يوزن المسحوق ويرمز له بالرمز ( $WH_1$ ).

ان الفرق بين الوزنين قبل التسخين وبعد التسخين يسمى بـ ( $W_1$ ) ويعطى بالصيغة الاتية :

$$W_1 = WG_1 - WH_1 \quad \dots \dots \dots (1)$$

وبعد ذلك يمزج ويطحن المسحوق مرة ثانية ولمدة نصف ساعة متواصلة مع اضافة قطرات من مسحوق الايزوبروبانول وللمحافظة على دقائق وذررات المسحوق من التطاير او الفقدان ومن ثم يتم رفع درجة حرارة المسحوق بواسطة فرن كهربائي الى درجة حرارة من ( $50^{\circ}C$  الى  $60^{\circ}C$ ) ثم يوزن مرة ثانية.

وبعد ذلك يتم وضع المسحوق في بودقة خزفية داخل الفرن الحراري في جو مشبع من الاوكسجين ذي المنظم الحراري ويتم رفع درجة الحرارة الى  $850^{\circ}C$  ( وبمعدل ( $120^{\circ}C / hr$ ) ويبقى النموذج عند هذه الدرجة الحرارية لمدة (١٢) ساعة للتخلص من ثاني اوكسيد الكربون ( $CO_2$ ) الموجود في المركب ومن ثم يترك النموذج ليبرد وبمعدل ( $30^{\circ}C / hr$ ) الى درجة حرارة الغرفة .

بعد ذلك يوزن المسحوق مرة ثانية ( $WH_2$ ) وعلى هذا فان الفقدان الثاني في الكتلة يتمثل بالمعادلة الاتية:

$$W'_2 = WG_2 - WH_2 \quad \dots \dots \dots (2)$$

اما الفقدان الكلي خلال المعاملة الحرارية فتتمثل في المعادلة الاتية:

$$W_{Loss} = W'_1 - W'_2 \quad \dots \dots \dots (3)$$

ان الفقدان في الكتلة  $W_{Loss}$  يتمثل بفقدان غاز ثاني اوكسيد الكربون ( $CO_2$ ) المتحرر من المركب نتيجة التفاعلات الكيميائية التي تحدث اثناء عملية التسخين والتبريد .

وبعدها يطحن مرة ثانية لمدة نصف ساعة ومن ثم يجفف تحت درجة حرارة تتراوح بين  $50^{\circ}C$  الى  $60^{\circ}C$  وبعد ذلك يتم تحضير هذا المسحوق على شكل اقراص تحت ضغط ( $8 \text{ ton} / \text{cm}^2$ ) وكان قطر هذه الاقراص مساويا الى ( $12 \text{ mm}$ ) وبسمك ( $0.8 \text{ mm}$ ) الى ( $1.2 \text{ mm}$ ) . ومن ثم توضع العينات داخل البودقة خزفية وتوضع داخل فرن حراري مبرمج ويتم رفع درجة حرارتها الى ( $850^{\circ}C$ ) وبمعدل ( $60^{\circ}C / hr$ ) وتترك هذه العينة عند هذه الدرجة الحرارية ولمدة (٢٤) ساعة بعد ذلك يتم خفض درجة الحرارة تدريجيا وبمعدل ( $30^{\circ}C / hr$ ) الى ان تصل الى درجة حرارة الغرفة تتم عملية التسخين والتبريد في جو مشبع من الاوكسجين وتسمى هذه العملية بعملية التلييد (sintring) .

## تقنية النانو : Nano technique

بعد تحضير العينات بطريقة تفـاعـل الحالة الصلبة طحن النماذج بواسطة هاون من العقيق (Gate motar) وتلدينها بواسطة فرن حراري وكبس العينات باستخدام مكبس هيدروليكي تم اجراء عملية طحن النماذج بواسطة طاحونة ناوية لكي يتحول جزيئات العناصر الى ابعاد نانوية البعد اي اقل من 100 نانومتر. تم كبس العينات باستعمال مكبس هيدروليكي 8 طن/سم<sup>2</sup> واصبح جاهزا لاجراء الفحوصات .

### قياس المقاومة الكهربائية بوصفها دالة لدرجة الحرارة للمركب $Tl_{2-x}Ag_xSr_2$ للمركب $yBa_yCa_2Cu_3O_{10+\delta}$

تم تحضير العينات الخاصة بقياسات المقاومة الكهربائية وذلك بقطع الاقراص على شكل متوازي مستطيلات ذات ابعاد تقريبية (12×3×1) وقبل عملية القياس يتم صقل وتنعيم السطح بواسطة جهاز التنعيم (grinding) ثم يتم عمل اربع نقاط للتوصيلات الكهربائية على سطح العينة باستعمال معجون الفضة (Silverpaste) تستعمل النقطتان في الداخل لقياس فرق الجهد (V) اما النقطتان القريبتان من الحافة فيستعملان لمرار التيار الكهربائي (A). اذ يرتبطان بمجهر قدرة millimeter digital power supply . وتجري عملية القياس تحت ضغط واطى بحدود (10<sup>-4</sup> mbar) والشكل (2) يوضح الدائرة الكهربائية المستعملة في قياس فرق الجهد والتيار الكهربائي . ويمكن ايجاد المقاومة الكهربائية من العلاقة الاتية :

$$R = \frac{V}{I} \quad \dots\dots\dots(4)$$

اما المقاومة النوعية فتعتمد على مساحة المقطع العرضي للعينة وطول العينة كما في العلاقة الاتية :

$$\rho = \frac{RA}{L} \quad \dots\dots\dots(5)$$

اذ ان (R) تمثل مقاومة العينة ، (A) تمثل مساحة المقطع العرضي للنموذج ، (L) تمثل طول العينة الواقعة بين نقطتي قياس فرق الجهد [V] .

## المجهر الإلكتروني الماسح Scanning-electron-microscopic

يعد المجهر الإلكتروني الماسح ذا تقنية عالية جدا في عملية حساب نسبة العناصر الوزنية والذرية في المركبات والسبائك وتحديد نوعية المركبات تحويها من خلال تحليل النتائج وله قدرة على اخذ الصور المجهرية وبتكبير عال جدا ولاي نقطة على سطح النموذج باستعمال تقنيتين هما :

1. الطيف الناتج عن الالكترونات الثانوية المنبعثة

secondary electron emission spectrum

2. الطيف الناتج عن الالكترونات المتشتتة

Back scatter electron spectrum

## النتائج والمناقشة

تتضمن النتائج دراسة الخواص التركيبية والسطحية والكهربائية وكذلك دراسة الخواص النانوية للمركب  $Tl_2$  والذي تم تحضيره عند درجة حرارة تلدين 850 °C وتحسنت ضغط 8 ton/cm<sup>2</sup> بطريقة تفاعل الحالة الصلبة وتم تحويله الى بعد نانوي باستخدام طاحونة .

كذلك تمت دراسة الخصائص النانوية للمركب باستعمال جهاز مجهر القوة الذرية (AFM) وذلك للحصول على افضل بعـد نانوي وللحصول على درجة حرارية حرجة للمركب  $Tl_{2-x}Ag_xSr_2-yBa_yCa_2Cu_3O_{10+\delta}$ .

وايضا تمت دراسة الخصائص السطحية للمركب وتحديد نسب العناصر من خلال استعمال تقنية جهاز المجهر الإلكتروني الماسح (SEM) وذلك لمعرفة المناطق ذات الكثافة العالية والمناطق ذات الكثافة القليلة التي تحتوي على مواد

ذات توصيل الفائق مثل اوكسيد النحاس CuO واوكسيد الثاليوم  $Tl_2O_3$  [8][9] علما ان التوصيل الكهربائي الفائق عادة يحدث عبر السطح وليس في عمق المادة ومن اجل التعرف على قيمة درجة الحرارة الحرجة للمركب . تمت دراسة الخصائص الكهربائية بوصفها دالة لدرجة الحرارة لهذه النماذج وذلك لحساب قيمة درجة الحرارة الحرجة Critical temperature ( $T_c$ ) لها ولمعرفة مدى تأثير التركيب البلوري والبعد النانوي على هذه النماذج في زيادة قيمة درجة الحرارة الحرجة ( $T_c$ ) .

### دراسة الخصائص الكهربائية للمركب $Tl_{2-x}Ag_xSr_{2-y}Ba_yCa_2Cu_3O_{10+}$

تمت دراسة تأثير الخصائص الكهربائية للمركب  $Tl_{2-x}Ag_xSr_{2-y}Ba_yCa_2Cu_3O_{10+}$

بنسب مختلفة لـ  $x, y$  ، بينت الدراسات للنماذج المحضرة بطريقة تفاعل الحالة الصلبة وتحت ضغط هيدروستاتيكي 8 ton/cm<sup>2</sup> ، ودرجة حرارة تليدين 850 °C اذ تبين عند نسبة تعويض لـ  $x, y$  (0.1) بان درجة حرارة التحول  $T_c$  للعينات تساوي ( $T_c=128$  K) كما مبين في الشكل (3) وعند زيادة نسبة التعويض الى (0.2) ازدادت درجة حرارة التحول للعينات الى ( $T_c=135$  K) كما في الشكل (3) كذلك ازدادت درجة الحرارة الحرجة للمركب عند زيادة نسبة التعويض الى (0.3) فاصبحت درجة الحرارة الحرجة تساوي ( $T_c=141$  K). ولكن عند زيادة نسبة تعويض الى (0.4) انخفضت درجة الحرارة الحرجة من ( $T_c=141$  K) الى ( $T_c=131$  K) . ويعود السبب الى عدم الانتظام في البنية البلورية التي ادت بدورها الى انخفاض قيمة محور (c) . وعند زيادة نسبة تعويض الى (0.5) انخفضت درجة الحرارة الحرجة الى ( $T_c=110$  K) وكما مبين في الجدول (1) ويعود السبب الى عدم الانتظام في البنية البلورية التي ادت بدورها الى انخفاض قيمة محور (c) وعدم تطابق قيمة (a) و (b) اذ تحول المركب عندها من التركيب رباعي قائم الى معيني قائم ان هذه الدراسة تتطابق مع دراسات سابقة [11] [10] .

### الخصائص النانوية للمركب $Tl_{2-x}Ag_xSr_{2-y}Ba_yCa_2Cu_3O_{10+}$ باستعمال مجهر القوة الذرية (AFM)

لقد تم تصوير العينات بواسطة المجهر القوة الذرية بعد تحضير العينات بطريقة تفاعل الحالة الصلبة وباستعمال طاحونة نانوية تم تحويل عناصر النماذج الى ابعاد صغيرة ومن ملاحظة الاشكال من (4) الى (8) تم تصوير المركب  $Tl_{2-x}Ag_xSr_{2-y}Ba_yCa_2Cu_3O_{10+}$  بنسبة تعويض  $x=0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5$  نلاحظ ان هنالك تعرجات ومناطق ذات الكثافة العالية ومناطق ذات الكثافة القليلة وابعاد نانوية مختلفة من موقع داخل العينة الى موقع اخر وبشكل واضح ويتحقق من ذلك بواسطة المجهر التحقيقي [6].

نلاحظ عند تعويض الجزئي لـ  $x, y$  بنسبة 0.1 للمركب  $Tl_{2-x}Ag_xSr_{2-y}Ba_yCa_2Cu_3O_{10+}$  ان معدل البعد النانوي باستعمال المجهر التحقيقي هي 139.28 nm كما في الشكل (4) . اما عند تعويض الجزئي لـ  $x, y$  بنسبة 0.2 للمركب  $Tl_{2-x}Ag_xSr_{2-y}Ba_yCa_2Cu_3O_{10+}$  لاحظنا من خلال استعمال المجهر التحقيقي ان معدل البعد النانوي هي 104.58 nm كما في الشكل (5) وهذا يدل على تحسين المركب يعتمد على البعد النانوي بالمقارنة مع نتائج اشعة اكس اذ ادت الى زيادة ثابت الشبكة c والمركب احتفظ بتركيبها الرباعي القائم.

اما عند تعويض الجزئي لـ  $x, y$  بنسبة 0.3 للمركب  $Tl_{2-x}Ag_xSr_{2-y}Ba_yCa_2Cu_3O_{10+}$  لاحظنا من خلال استعمال المجهر التحقيقي ان معدل البعد النانوي هي 91.75 nm كما في الشكل (6) وهذا يدل على تحسين المركب يعتمد على البعد النانوي بالمقارنة مع نتائج اشعة اكس اذ ادت الى زيادة ثابت الشبكة c والمركب احتفظ بتركيبها الرباعي القائم.

اما عند تعويض الجزئي لـ  $x, y$  بنسبة 0.4 للمركب  $Tl_{2-x}Ag_xSr_{2-y}Ba_yCa_2Cu_3O_{10+}$  لاحظنا من خلال استعمال المجهر التحقيقي ان معدل البعد النانوي هي 107.70 nm كما في الشكل (7) وهذا يدل على ان البعد النانوي قد ازداد عند زيادة نسبة تعويض وهذا يفسر بان احسن تعويض جزئي لـ  $x, y$  هي 0.3.

وعند تعويض الجزئي لـ  $x, y$  بنسبة 0.5 للمركب  $Tl_{2-x}Ag_xSr_{2-y}Ba_yCa_2Cu_3O_{10+}$  لاحظنا من خلال استعمال المجهر التحقيقي ان معدل البعد النانوي هي 124.96 nm كما في الشكل (8) وهذا يدل على ان البعد النانوي قد ازداد عند زيادة نسبة تعويض وهذا يفسر بان احسن تعويض جزئي لـ  $x, y$  هي 0.3 [12] .

## دراسة الخصائص السطحية للمركب $Tl_{2-x}Ag_xSr_{2-y}Ba_yCa_2Cu_3O_{10+}$ بواسطة المجهر الإلكتروني المساح

لقد تمت دراسة المسح الإلكتروني للمركب تحت ضغط هيدروستاتيكي ٨ طن ودرجة حرارة تليدين ( $850^{\circ}C$ ). إذ لاحظنا من خلال دراسة المسح الإلكتروني للعينة وعند درجة تكبير (100 nm) المناطق المضيئة او الفاتحة والمناطق الداكنة المظلمة ونسبة التجانس بالنسبة لهذا المركب . ان المناطق الداكنة تمثل زيادة نسبة العناصر الثقيلة مثل Tl واوكسيد النحاس اما المناطق الفاتحة تمثل نسبة العناصر الخفيفة مثل Ca ، Ba . والسبب في ذلك يعود الى الوزن الذري لهذه العناصر . لاحظنا من خلال دراسة التركيب البلوري ودرجة الحرارة الحرجة ان زيادة درجة الحرارة لهذا المركب تعود الى زيادة نسبة تركيز العناصر الثقيلة مثل (Tl) واوكسيد النحاس (CuO) وزيادة نسبة الاوكسجين . تمت عملية المسح الإلكتروني للمناطق المظلمة الداكنة والمناطق المضيئة باستعمال المجهر الإلكتروني بقوة تكبير مختلف وتحليل العناصر بواسطة (EDX) وكما مبينة في الاشكال من (9) الى (13) للمركب  $Tl_{2-x}Ag_xSr_{2-y}Ba_yCa_2Cu_3O_{10+}$  عندما  $x=0.1,0.2,0.3,0.4,0.5$  وتبين العلاقة بين شدة الاشعة الساقطة وبين الطاقة للإلكترون فولت (Kev) [١٤] [١٣].

### الاستنتاجات

عند التعويض الجزئي للعنصر Ag في العنصر Tl و Ba في العنصر Sr للمركب  $Tl_{2-x}Ag_xSr_{2-y}Ba_yCa_2Cu_3O_{10+}$  وبنسب مختلفة لـ  $x,y$  لقد ازداد قيمة درجة الحرارة الحرجة من (128 k) الى (135 k) عندما كانت نسبة التعويض لـ  $x=0.1, 0.2$  وتحسن درجة الحرارة الحرجة واصبح 141 K عند نسبة تعويض 0.3 ولكن عند زيادة نسبة التعويض اكثر من ذلك أي 0.5 , 0.4 x انخفضت قيمة درجة الحرارة الحرجة الى 131 K ومن ثم الى 110 K .

- وتم فحص العينات بواسطة المجهر القوة الذرية AFM للمركب  $Tl_{2-x}Ag_xSr_{2-y}Ba_yCa_2Cu_3O_{10+}$  وبنسب مختلفة لـ  $x,y$  وتبين ان معدل البعد النانوي عندما  $x,y=0.1$  باستعمال المجهر التحقيقي هي 139.28 nm . اما عند تعويض الجزئي لـ  $x,y$  بنسبة 0.2 للمركب  $Tl_{2-x}Ag_xSr_{2-y}Ba_yCa_2Cu_3O_{10+}$  لاحظنا من خلال استعمال المجهر التحقيقي ان معدل البعد النانوي هي 104.58 nm وهذا يدل على تحسين المركب يعتمد على البعد النانوي بالمقارنة مع نتائج اشعة اكس اذ ادت الى زيادة ثابت الشبيكة c والمركب احتفظ بتركيبها الرباعي القائم وتحسن قيمة درجة الحرارة الحرجة . اما عند تعويض الجزئي كل من Al و Ba لـ  $x,y$  بنسبة 0.3 للمركب  $Tl_{2-x}Ag_xSr_{2-y}Ba_yCa_2Cu_3O_{10+}$  لاحظنا من خلال استعمال المجهر التحقيقي ان معدل البعد النانوي هي 91.75 nm وهذا يدل على تحسين المركب يعتمد على البعد النانوي بالمقارنة مع نتائج اشعة اكس حيث ادت الى زيادة ثابت الشبيكة c والمركب احتفظ بتركيبها الرباعي القائم وكانت افضل قيمة درجة الحرارة الحرجة عند هذه النسبة .

اما عند تعويض الجزئي لـ  $x,y$  بنسبة 0.4 للمركب  $Tl_{2-x}Ag_xSr_{2-y}Ba_yCa_2Cu_3O_{10+}$  لاحظنا من خلال استعمال المجهر التحقيقي ان معدل البعد النانوي هي 107.70 nm وهذا يدل على ان البعد النانوي قد ازداد عند زيادة نسبة تعويض وهذا يفسر بان احسن تعويض جزئي لـ  $x,y$  هي 0.3 .

وعند تعويض الجزئي لـ  $x,y$  بنسبة 0.5 للمركب  $Tl_{2-x}Ag_xSr_{2-y}Ba_yCa_2Cu_3O_{10+}$  لاحظنا من خلال استعمال المجهر التحقيقي ان معدل البعد النانوي هي 124.96 nm وهذا يدل على ان افضل نسبة تعويض هي 0.3 .

- تم تحديد نسب مركبات العناصر بواسطة المجهر الإلكتروني المساح ومعرفة نسب العناصر في المركب ومدى تأثير درجة حرارة التليدين والضغط المسلط وكذلك مدى تأثير التعويض الجزئي في العناصر في المركب وتحديد نسبة التركيز الكمي للعناصر في المركب . تم فحص النماذج بقوة تكبير مختلف وتبين من خلالها هنالك مناطق داكنة ومناطق فاتحة وهذا يدل على ان المركبات يحتوي على عناصر ذات الكثافة العالية وذات الكثافة المنخفضة .

### المصادر

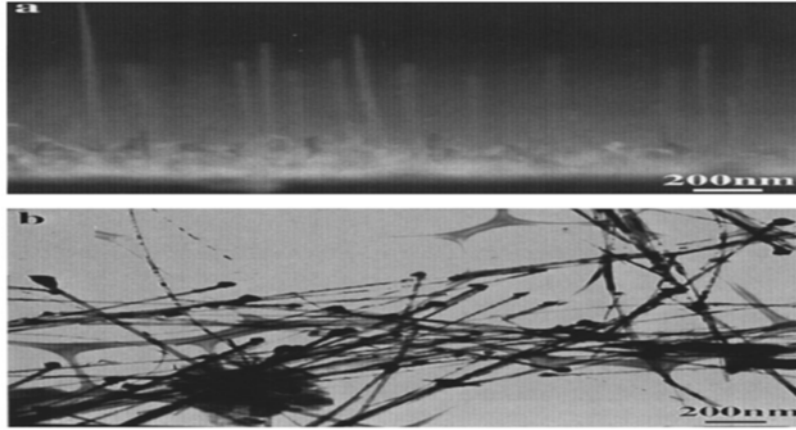
1. Onnes, K. (1911) Further experiments with liquid helium. D. On the charge of electric resistance of pure metals at very low temperature, etc.V. The disappearance of the resistance of mercury. Comm.Phys. Lab. Univ. leiden; No. 122b.
2. Pawar,S.H. ; Ubale, M.J. and Kullcarni, Mater (1994). Lett.20,279.



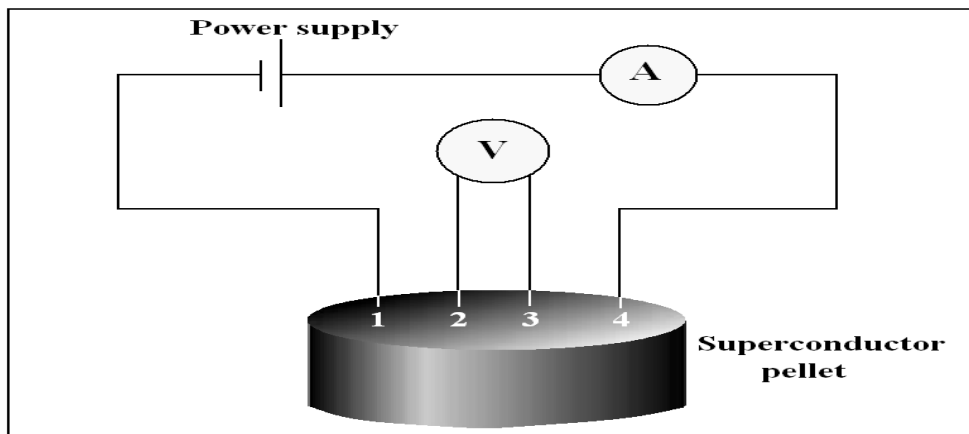
3. Yang,P. and Lieber, C.M.(1997) Colummar defect formation in nanorod/Tl<sub>2</sub>Ba<sub>2</sub>Ca<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>z</sub> superconducting composites, Appl.Phys. Lett. 70(23).
4. Przybylski,K.;Heiml,O.and Gritzner,G.(2007)The irreversibility field of (Tl<sub>0.5</sub>Pb<sub>0.5</sub>)(Sr<sub>0.85</sub>Ba<sub>0.15</sub>)<sub>2</sub>Ca<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>z</sub> film on polished Silver substrate".Act.Phys. Polonica, 111, (737-743).
5. Shirage,P.M.;Shivagan,D.D.;Ekal,L.A.;Desai,N.V.;Mane,S.B.and,Dawar,S.H.(2001)Fabrica tion of (Ag/Tl-Ba-Ca-CuO/Cds)nanostructure by electro-deposition technique.(2001).Appl Surface Science,182,403-406.
6. Suzan, M.;Ghazala, Y.H. and Mahdi, H.S.(2012)Fabrication of Bi<sub>1.6</sub>Pb<sub>0.4</sub>Sr<sub>2</sub>Ca<sub>2</sub>Cu<sub>3-x</sub>Zn<sub>x</sub>O<sub>10+s</sub> superconducting Thin Film prepared by PLd method" University of Baghdad Dep. Of Physics. Iraq Journal of Physics: 328,.
7. Abbass,M.M.(2003)Effect of the electron beam and laser radiation on T<sub>c</sub> of Y<sub>1-x</sub>(Gd,Br)<sub>x</sub>Ba<sub>2-y</sub>Sr<sub>y</sub>Cu<sub>3.7-s</sub> Compound" Ph.D. Thesis,Baghdad University College of Science.
- 8.Kadham,A.M. and Ali,A.D.(2000) study the partial substitution of Au,Sr on the compound YBa<sub>2</sub>Ca<sub>2</sub>O<sub>6-δ</sub> superconducting). Jounal of Kustantina.
- 9.Nazzal,A.L.;Huang,T.C.;Gorman,G.;Savoy,R. and Beyers,R.(1988). Phy. Rev.Lett,60,2539.
10. Purenr P.;Schaf J.;Gusmao, M.A. and Kunzler Physicam, J.V.C.(1991) Resistive transition and fluctuation of the conductivity in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub> Superconductors : Effect of inhomogeneities;176(4),357-367.
11. Chesca, B.(1994). On the theoretical study of an rf-SQUID operation taking into account the noise influnces, J.Low Temp. Phys. 94,515-538.
12. Jannah,A.N.;Halim,S.A. and Abdullah,H.(2009)Superconducting properties of BSCCO thin films by pulsed laser deposition. European J.Scientific research,29(4):438-446.
13. Eliashberg, G.M. (1970), JETP let, 11,114.
14. Wang et al.(2001), Y.Y. Phys. Rev. Lett. 88, 257003 (2002) ; Phy. Rev. B 64, 224519.

جدول رقم (1) : بين نسبة التعويض ودرجة الحرارة الحرجة ونسبة التعويض.

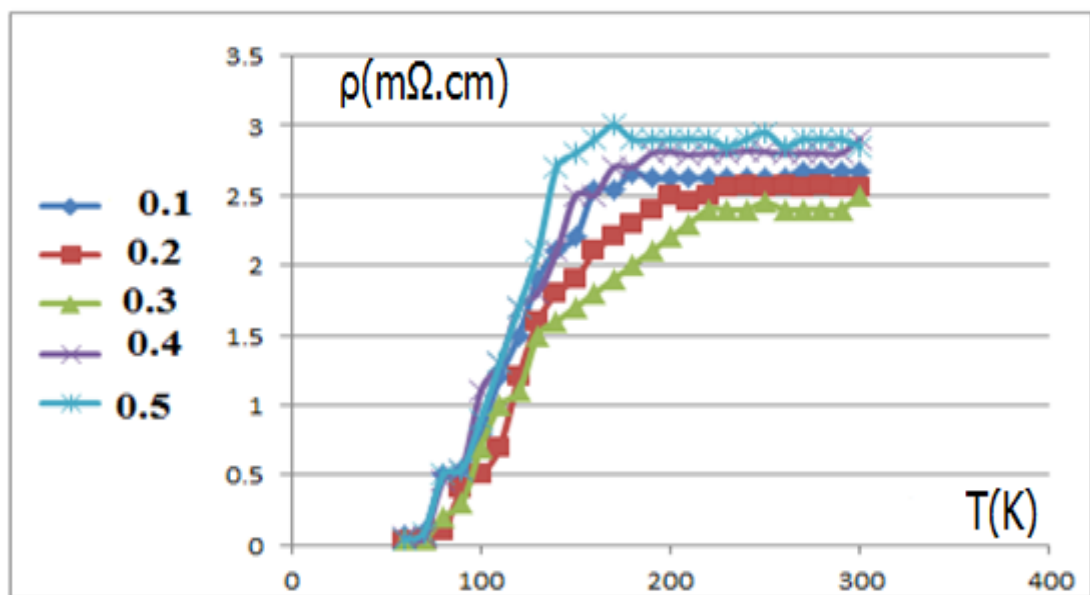
نسبة التعويض لـ x,y	درجة الحرارة الحرجة T <sub>c</sub>
0.1	128 K
0.2	135 K
0.3	141 K
0.4	131 K
0.5	110 K



شكل رقم (1): قضيب نانوي على شكل عيوب من دقائق حبيبات اوكسيد النحاس  $\text{CuO}_2$

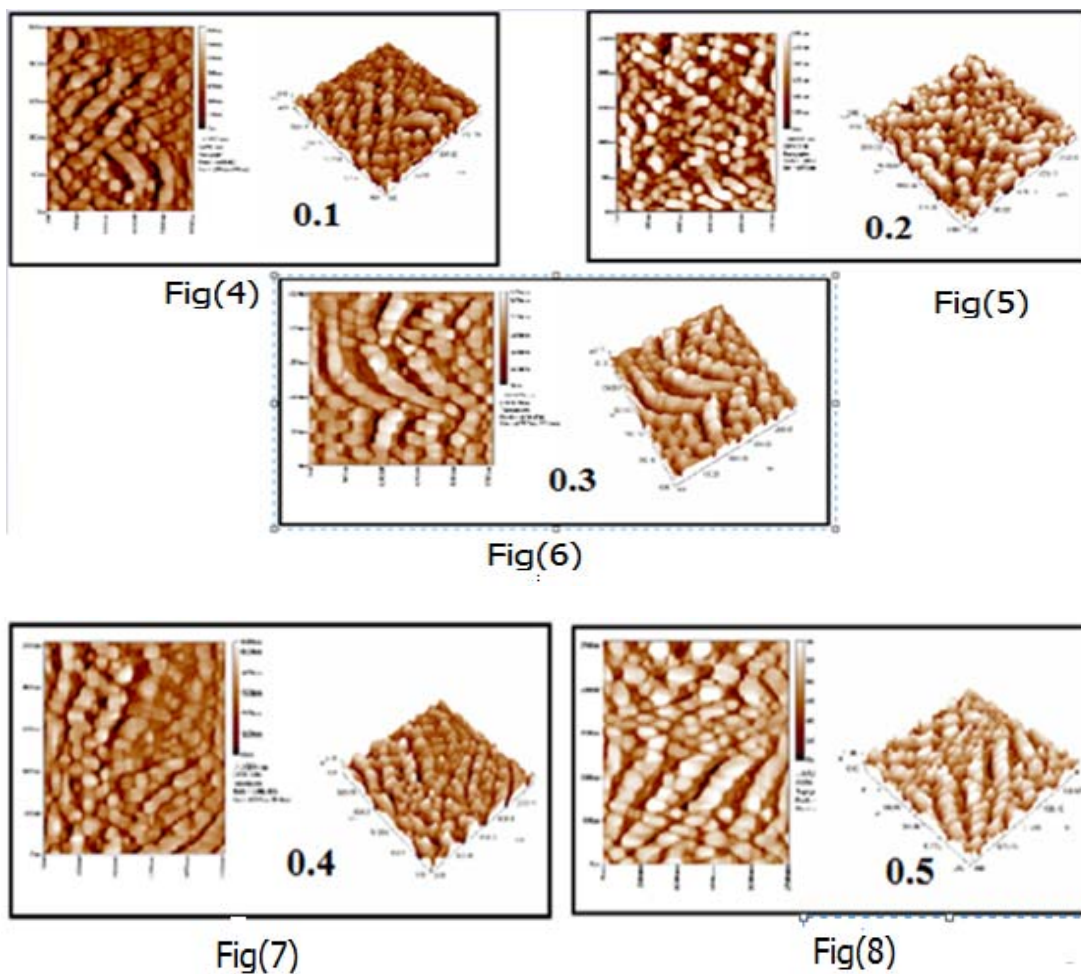


شكل رقم (٢): يبين الدائرة الكهربائية لقياس فرق الجهد والتيار للمركب في الدرجات الحرارية المنخفضة [7].

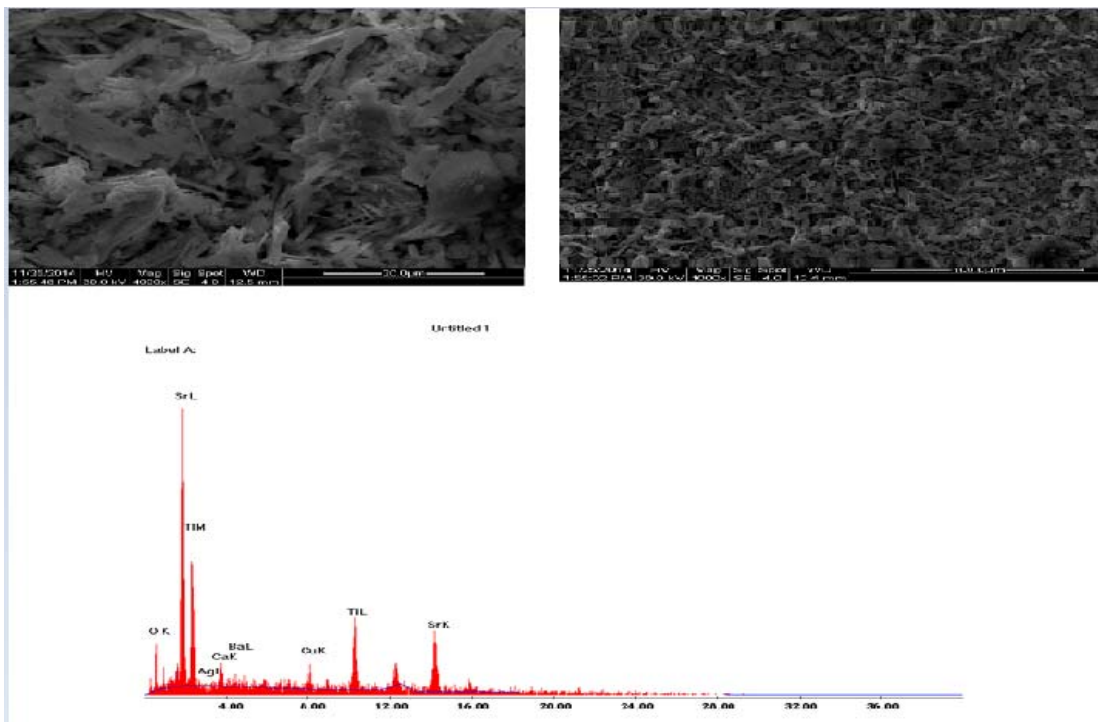


شكل رقم (٣): علاقة بين درجة الحرارة والمقاومية للمركب  $\text{Tl}_{2-x}\text{Ag}_x\text{Sr}_{2-y}\text{Ba}_y\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+&}$

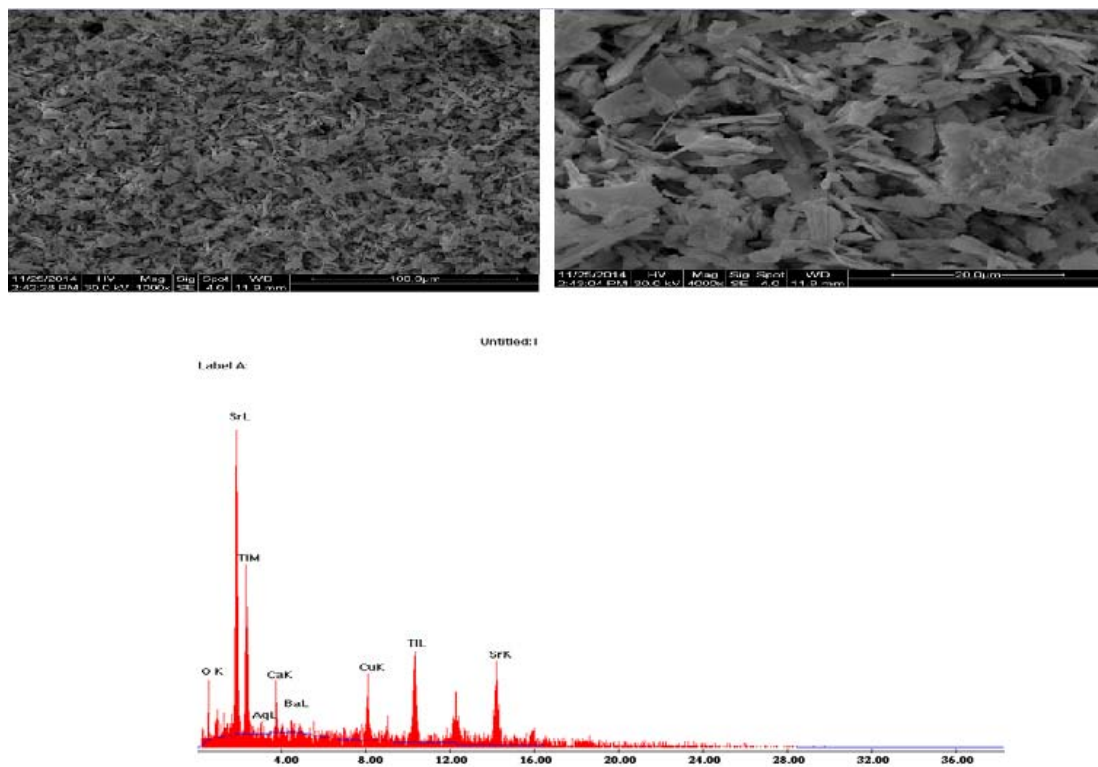




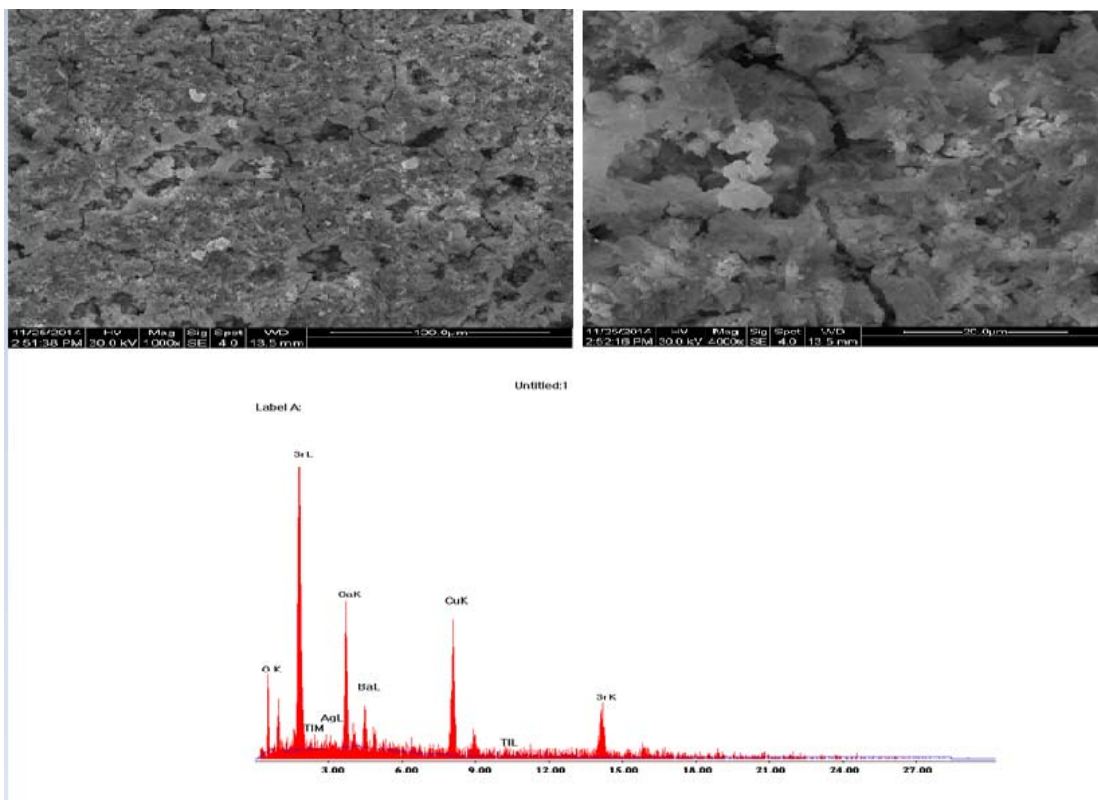
الاشكال ( ٤ ) الى (8) صورة فوتوغرافية للمركب  $Tl_{2-x}Ag_xSr_{2-y}Ba_yCa_2Cu_3O_{10+}$  باستعمال مجهر القوة الذرية (AFM) عندما  $x,y=0.1,0.2,0.3,0.4,0.5$ .



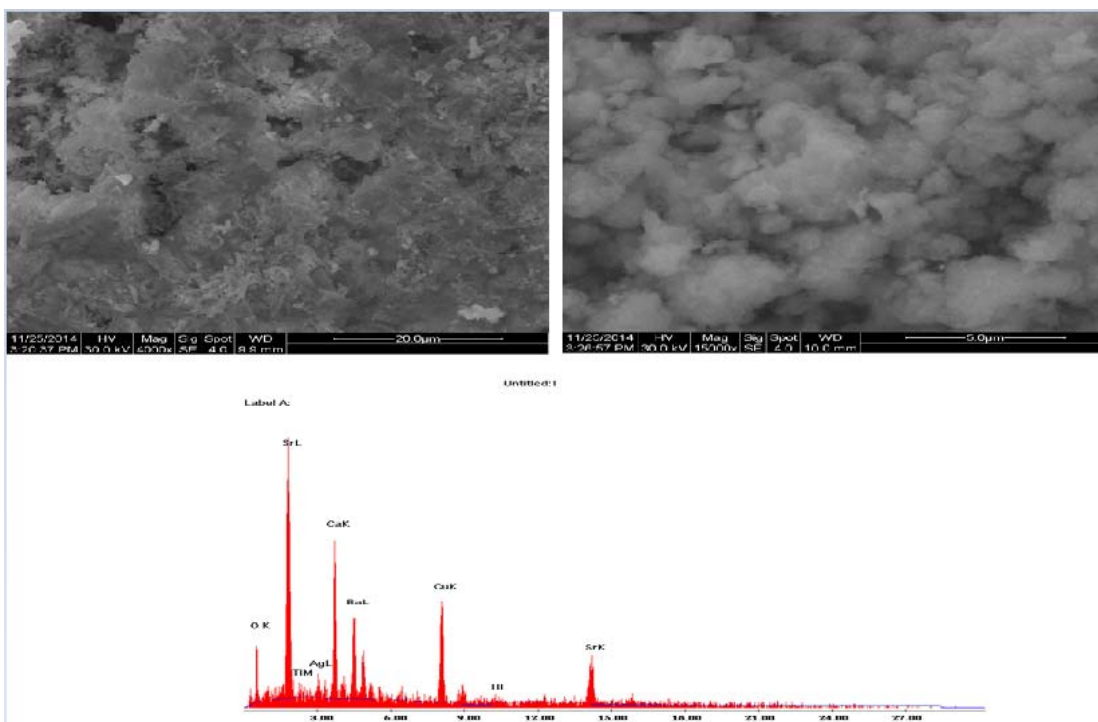
شكل رقم (9): صورة فوتوغرافية للمركب  $Tl_{2-x}Ag_xSr_{2-y}Ba_yCa_2Cu_3O_{10+\delta}$  عندما  $x=0.1$  والعلاقة بين الطاقة والشدة باستخدام (EDX)



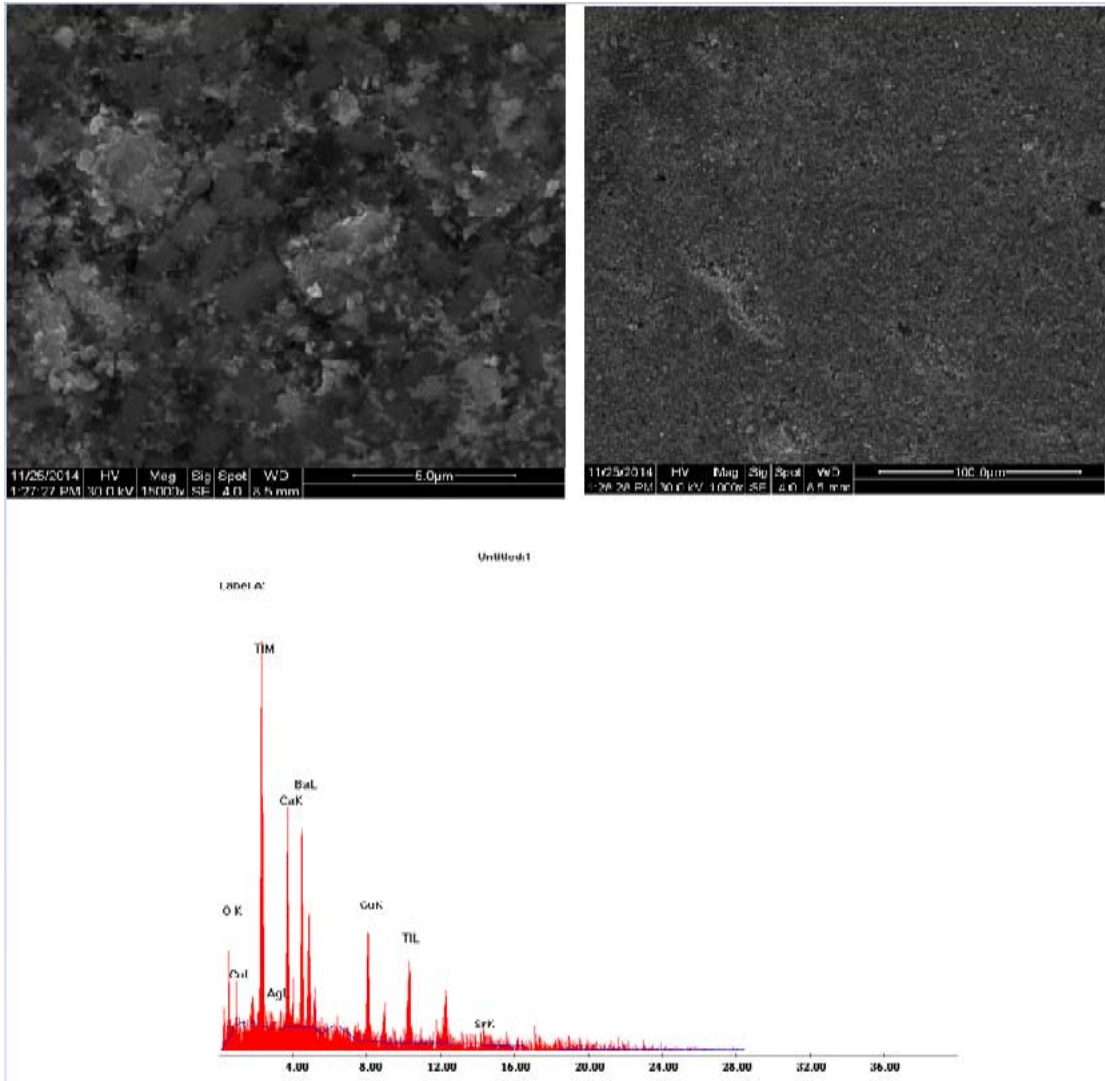
شكل رقم (10): صورة فوتوغرافية للمركب  $Tl_{2-x}Ag_xSr_{2-y}Ba_yCa_2Cu_3O_{10+\delta}$  عندما  $x=0.2$  والعلاقة بين الطاقة والشدة باستخدام (EDX)



شكل رقم (11): صورة فوتوغرافية للمركب  $Tl_{2-x}Ag_xSr_{2-y}Ba_yCa_2Cu_3O_{10+}$  عندما  $x=0.3$  والعلاقة بين الطاقة والشدة باستخدام (EDX)



شكل رقم (12): صورة فوتوغرافية للمركب  $Tl_{2-x}Ag_xSr_{2-y}Ba_yCa_2Cu_3O_{10+}$  عندما  $x=0.4$  والعلاقة بين الطاقة والشدة باستخدام (EDX)



شكل رقم (13): صورة فوتوغرافية للمركب  $Tl_{2-x}Ag_xSr_{2-y}Ba_yCa_2Cu_3O_{10+}$  عندما  $x=0.5$  والعلاقة بين الطاقة والشدة باستعمال (EDX) .

# Study the Partial Substitution and Annealing on Electrical Properties of Compound $Tl_{2-x}Ag_{2-y}SryBayCa_2Cu_3O_{10}$ & Superconductor Fabricated by Nano Technique

**Nihad A. Shafeek**

Dept. of Physics /College of Education – Tuzkhurmatu/  
University of Tikrit

**Abdul Kareem D. Ali**

**Khalid H. Razzeg**

Dept. of Physics/College of Education for Pure Science/  
University of Tikrit

**Received in:11February 2015,Accepted in:10June2015**

## Abstract

The crystal compounds  $Tl_{2-x}Ag_{2-y}SryBayCa_2Cu_3O_{10}$  & are successfully prepared in different concentrations ( $x, y=0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5$ ) by solid state reaction process. The samples were then subjected to Nano technique under hydrolic pressure 8 ton/cm<sup>2</sup>. samples have been annealed in (850 C<sup>0</sup>) for 72 hours.

The results show a best value at  $x, y=0.3$  ratio of Ag, Ba. Electrical resistivity at  $x, y= 0.3$  of Ag, Ba are obtained when the best value of  $T_c= 141$  K. Samples morphology were also observed by AFM (in three dimensions), the best value of Nano is 91.74 nm at  $x, y= 0.3$ . Morphological structures of the surface were also observed by (SEM) and (EDX) show that there are dark regions and light which indicate the presence of heavy elements and light elements on the installation.

**Keywords** : Superconductor,Critical temperature,Nano technique,Annealing