

# ẢNH HƯỞNG CỦA Ag LÊN TÍNH CHẤT DIỆN VÀ CẤU TRÚC VI MÔ CỦA GỐM SIÊU DẪN $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$

Trần Minh Thi, Nguyễn Hữu Bách

Trường đại học Sư phạm Hà Nội I

Phạm Tế Thế, Thân Đức Hiền, Nguyễn Phú Thùy

Trường đại học Tổng hợp Hà Nội

## 1. MỞ ĐẦU

Việc đưa mẫu gốm siêu dẫn  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  vào ứng dụng đòi hỏi phải tạo được các mẫu có dòng tới hạn  $J_c$  đủ cao (cỡ trên  $100 \text{ A/cm}^2$ ) và tính chất cơ học tốt. Sự tồn tại những lỗ trống và các biên hạch cách điện trong mẫu gốm siêu dẫn  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  là nguyên nhân chính làm mẫu xốp, dễ vỡ và  $J_c$  thấp [9].

Có nhiều công trình nghiên cứu sự ảnh hưởng tới tính chất siêu dẫn do việc đưa thêm Cu hoặc các oxit kim loại khác vào mẫu gốm  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  hoặc thay thế Cu bởi Ag [3, 4]. Công trình [4] cho thấy với hàm lượng Ag dưới 5% thay cho Cu, nhiệt độ chuyển pha  $T_c$  thay đổi không đáng kể. Pal và cộng sự [3] thu được mẫu siêu dẫn pha thêm Ag với  $T_c$  giảm xuống tới 50K. Gần đây các công trình [5, 6] đã nghiên cứu ảnh hưởng tới tính chất siêu dẫn của việc đưa thêm Ag vào mẫu gốm  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  và nhận thấy rằng khi pha thêm Ag vào mẫu, các hạt được lắp vào các lỗ trống giữa các hạt siêu dẫn [7] đồng thời mật độ dòng tới hạn  $J_c$  tăng đáng kể. Theo Ambegaokar và Baratoff mật độ dòng tới hạn  $J_c$  phụ thuộc  $T$  và  $R_N$  (điện trở tiếp xúc) có dạng [8] sau:

$$J_c = [\pi \Delta T / 2eR_N] \tanh[\Delta(T)/2K_B T]$$

trong đó  $\Delta(T)$ : khe năng lượng

Như vậy, việc làm giảm điện trở tiếp xúc  $R_N$  do Ag lắp đầy vào khoảng trống giữa các hạt siêu dẫn cũng có thể làm tăng  $J_c$  của mẫu.

Trong bài báo này, Ag được đưa vào mẫu gốm  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  không phải để thay thế vị trí của bất kỳ nguyên tố nào, mà tạo thành mẫu gốm dạng  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ , trong đó Ag định sứ ở khoảng giữa các hạt siêu dẫn, làm tăng cường sự liên kết giữa các hạt siêu dẫn, kéo theo sự giảm điện trở ở trạng thái thường và cơ tính mẫu tăng lên.

## 2. THỰC NGHIỆM

Các nguyên liệu ban đầu  $\text{Y}_2\text{O}_3$  (2N),  $\text{BaCO}_3$  (2N),  $\text{CuO}$  (2N) được sử dụng để chế tạo hợp chất  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  bằng phương pháp phản ứng pha rắn. Mẫu siêu dẫn  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  được nghiền trộn với  $\text{AgNO}_3$  (2N) theo hợp phần (với  $x = 0; 0,1; 0,2; 0,3; 0,4$ ) của  $(\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta})_{1-x}\text{Ag}_x$ . Các hỗn hợp bột này được ép thành viên dưới áp suất 4 tấn/ $\text{cm}^2$  và nung ở nhiệt độ  $950^\circ\text{C}$  trong 7 giờ rồi ủ  $500^\circ\text{C}$  trong môi trường oxy thổi 10 giờ.

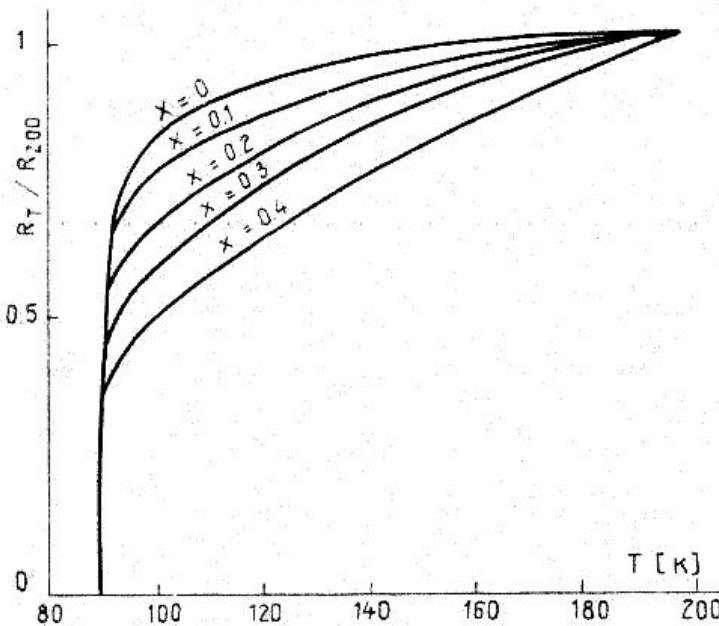
Các mẫu được khảo sát bằng phép đo điện trở ( $R_T/R_{200}$ ) và phép đo hệ số từ hóa xoay chiều  $\chi_{ao}$  tại phòng thí nghiệm nhiệt độ thấp Trường đại học Tổng hợp Hà Nội. Các mẫu được phân tích nhiễu xạ tia X, chụp ảnh hiển vi điện tử quét vi phân tích trên thiết bị SEM-35 tại đại học Bách khoa Hà Nội.

### 3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

Hình 1: Biểu diễn đường cong  $R_T/R_{200}$  phụ thuộc  $T$ . Các đường cong cho thấy, mặc dù hàm lượng Ag pha vào các mẫu tăng đáng kể từ 0% tới 40%, nhiệt độ chuyển pha  $T_c$  thay đổi không đáng kể và có giá trị  $T_c = 90 \pm 1\text{K}$ .

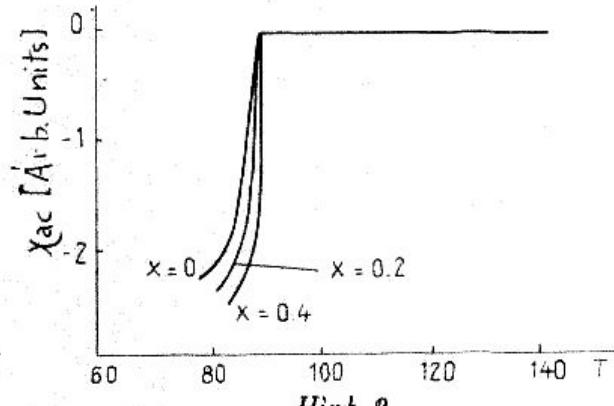
Điện trở của mẫu ở trạng thái thường ở vùng nhiệt độ  $T > T_c$  giảm đi khi tăng Ag. Đường cong điện trở vùng  $T > T_c$  (điểm bắt đầu chuyển pha) của các mẫu có hàm lượng Ag cao thể hiện tính kim loại nhiều hơn so với các mẫu có hàm lượng Ag thấp. Kết quả này phù hợp với các công trình [1, 2].

Hình 2: Biểu diễn sự phụ thuộc nhiệt độ của hệ số từ hóa xoay chiều  $\chi_{ao}$  của các mẫu tiêu biểu  $(\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta})_{1-x}\text{Ag}_x$  với  $x = 0; 0,2; 0,4$ .



Hình 1

Đường cong  $R_T/R_{200}$  phụ thuộc TK



Hình 2

Sự phụ thuộc nhiệt độ của hệ số từ hóa xoay chiều  $\chi_{ao}$

Nhiệt độ chuyển pha siêu dẫn của các mẫu với  $x$  khác nhau xác định từ đồ thị này cũng phù hợp với các kết quả đo điện trở trên. Một điều đáng lưu ý là vùng chuyển pha từ trạng thái thường sang siêu dẫn ( $\Delta T$ ), là khá nhỏ và  $\Delta T$  giảm khi tăng hàm lượng Ag vào các mẫu. Mặt khác, mật độ mẫu được pha Ag tăng lên khi  $x$  tăng (bảng 1) chứng tỏ việc pha thêm Ag vào mẫu  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  đã làm mẫu siêu dẫn đỡ xốp hơn, do đó cơ tính của mẫu tốt hơn.

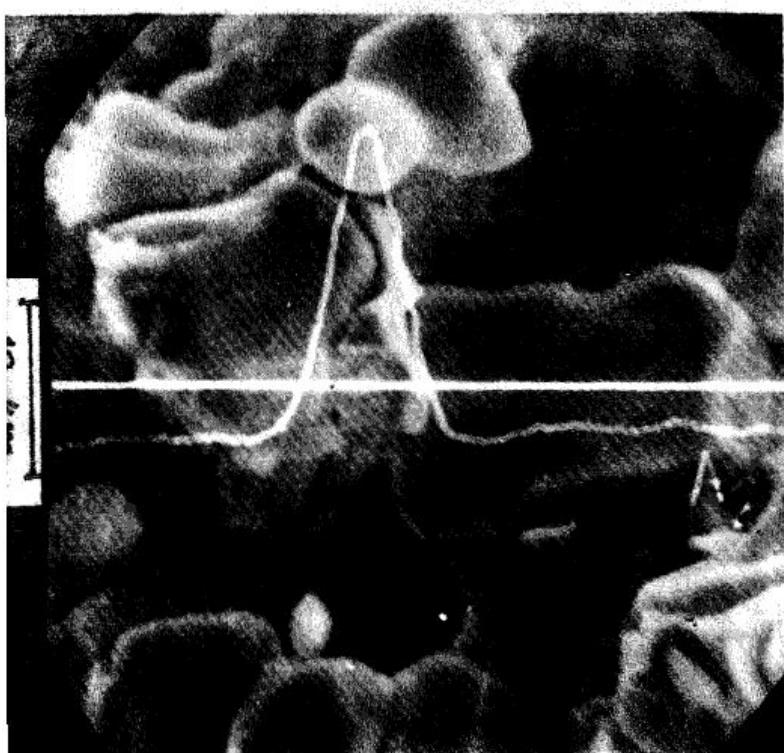
Các kết quả phân tích nhiễu xạ tia X cho 3 mẫu với:  $x = 0; 0,1; 0,3$ ; cho thấy các đỉnh đặc trưng của pha orthorhombic 1-2-3 (pha chính) kèm theo các đỉnh nhiễu xạ của Ag của các góc  $2\theta = 44^\circ 3; 51^\circ 9$  (pha phụ). Hằng số mạng của pha 1-2-3 không thay đổi theo  $x$ , điều này phù hợp với kết quả của [1]. Các đỉnh nhiễu xạ của Ag có cường độ tăng dần khi tăng hàm lượng Ag vào mẫu và cho thấy rằng  $\text{AgNO}_3$  bị phân hủy hoàn toàn sau khi nung và Ag tồn tại trong mẫu như một pha riêng biệt. Kết quả này phù hợp với các kết quả thu được trong công trình [6, 7] khi pha  $\text{Ag}_2\text{O}$  vào gốm  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ .

Bảng 1. Độ rộng chuyển pha  $\Delta T$  trong phép đo  $\chi_{ao}$  và mật độ  $\rho$

Hàm lượng $x$	$\rho$ (g/cm <sup>3</sup> )	$\Delta T$
0	4,648	11
20	5,297	7
40	5,834	5

Hình 3. Kết quả phân tích nhiễu xạ tia X cho 3 mẫu  $x = 0; 0,1; 0,3$



Hình 4

Ảnh hiển vi điện tử quét  
phân tích cho mẫu  $x = 0,2$

Để xác định sự phân bố của Ag trong siêu dẫn đã chế tạo, các mẫu đã được chàm hiển vi điện tử quét vi phân tích. Trên hình 4 là ảnh hiển vi điện tử quét vi phân tích cho mẫu tiêu biểu có thành phần  $x = 0$ . Trên ảnh cho thấy một chùm tia điện tử quét thành một đường thẳng nằm ngang trên bề mặt của mẫu gốm được bẻ gãy. Chùm tia này đi qua những hạt còn nguyên vẹn và những hạt gãy đôi (do bẻ mẫu). Định phản của chùm tia cho thấy vị trí của hạt Ag có khoảng trung bình cỡ  $10^{-6}$  m nằm xen giữa hai hạt siêu dẫn. Kết quả phân tích này cho thấy rõ ràng các hạt Ag nhỏ nằm ở bên ngoài làm tăng cường sự liên kết giữa hai hạt siêu dẫn và giảm điện trở tiếp xúc giữa các hạt đó. Các kết quả nghiên cứu trong [9] cũng cho rằng khi pha thêm Ag vào mẫu gốm  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ , Ag đã lấp đầy vào khe trống giữa các hạt siêu dẫn và không thay đổi thành phần.

Từ những kết quả trên có thể thấy rằng nhờ việc pha thêm Ag vào gốm  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  theo chế độ công nghệ nêu trên, đã thu được hệ mẫu siêu dẫn ( $YBa_2Cu_3O_{7-\delta})_{1-x}Ag_x$  trong đó Ag không thay thế bất kỳ vị trí nguyên tố nào trong cấu trúc của  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ . Các hạt Ag có kích

thước cỡ  $10^{-6}$  m xen giữa các hạt siêu dẫn, làm tăng cường sự liên kết giữa các hạt đó và làm giảm điện trở của mẫu khói ở trạng thái thường, nhưng không làm thay đổi nhiệt độ chuyển pha  $T_c$ . Như vậy việc đưa Ag vào mẫu  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  theo chế độ công nghệ nói trên làm giảm điện trở tiếp xúc  $R_N$  có thể là biện pháp nâng cao  $J_c$ . Việc xác định  $J_c$  là nhiệm vụ cần nghiên cứu.

Chúng tôi xin cảm ơn chân thành các đồng chí Nguyễn Thị Loan, Hoa Văn Khánh, Lưu Tuấn Tài, Nguyễn Hữu Đức đã giúp đỡ nhiệt tình trong các phép đo đặc, tạo điều kiện thuận lợi trong quá trình thí nghiệm.

#### TÀI LIỆU THAM KHẢO

1. Su-Zhang-peng, Zao Yong, Sun Shi-fang, Chen Zu-yao, Chen Xian-hui and Zhang Qi-rui, Solid state Commun 69 (1989), 1067.
2. S. Zannella, B. Martini, V. Ottoboni, F. Parmigiani, A. M. Ricon and G. Riparion, Physica C 162-164 (1989), 1179.
3. K. K. Pan, H. Mathias, C. M. Ray, W. G. Moulton, H. K. Ng, L. R. Testardi and Y. L. Wang., Phys. Lett. A. 125 (1987), 147.
4. P. Strobel, C. Paulsen and J. L. Tholence, Solid State Commun 65 (1988), 585.
5. B. D. Wir, Afronte and Pavuna. Physica C 162-164, (1989), 351.
6. D. Pavuna, H. Berger, M. Afronte and J. Vander Mass., Solid State Commun 68 (1988), 535.
7. S. Reich, D. Verenik, I. Felner and U. Yaron., J. Appl Phys 72 (1992), 4085.
8. M. Phalle, W. Boon, E. Osquigil, C. Van Haesendonck and Y. Bruyseraed, Physcia C 185-198 (1991), 2447.
9. B. Ropers, F. Carmona and S. Flandrois, Physica C 204 (1992), 71.

#### THE INFLUENCE OF Ag ON THE ELECTRIC PROPERTIERS AND MICROSTRUCTURE OF THE $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ SUPERCONDUCTING CERAMICS

*Tran Minh Thi, Nguyen Huu Bach*

*Pedagogic University of Hanoi*

*Pham Te The, Tran Duc Hien, Nguyen Phu Thuy*

*Hanoi University*

The research on the electric propertiers and microstructure of the Ag additive  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  superconducting ceramics in presented. The Ag content varies form 0 to 40 w%. It is shown that in the sampl Ag exists in the form of small graules with avege size of about  $10^{-6}$ m, which full the superconducting intergranular space. Upon adding Ag, the  $T_c$  value is not affected within the experiment accuracy, but the intergranular junction resistance drops, that is due to the decrease of the normal state resistance.