

Superconductivity and magnetic properties of (Ru_{1-x}Nb_x)Sr₂(Sm_{1.4}Ce_{0.6})Cu₂O_z

H. K. Lee*, S.M. Bae, and J.M. Lee

Kangwon National University, Chuncheon, Korea)

(Received 16 July 2013; revised or reviewed 2 September 2013; accepted 3 September 2013)

Abstract

We investigated the effect of Nb substitution for Ru on the structural and magnetic properties of (Ru_{1-x}Nb_x)Sr₂(Sm_{1.4}Ce_{0.6})Cu₂O_z Samples. X-ray diffraction measurements indicated that nearly single-phase samples are formed in the range from x = 0 to 1.0. The superconducting transition temperature determined from the inflection in the field-cooled magnetic susceptibility decreased only slightly from T_c = 25 K for x = 0 to T_c = 22 K for x = 1.0, in consistent with the change in room temperature thermopower of the samples. However, the Nb substitution for Ru above x = 0.25 significantly suppressed the weak ferromagnetic component of the field-cooled magnetic susceptibility. It was also found that the Nb substitution for Ru results in an enhanced diamagnetic susceptibility with Nb content above x = 0.5 in both zero field-cooled and field-cooled magnetization measurements, in contrast to the behavior of the samples with x ≤ 0.5 in which the diamagnetic susceptibility decreases as the Nb content increases.

Keywords : Nb substitution, RuSr₂(Sm,Ce)₂Cu₂O_z, superconductivity, magnetic property

I. 서 론

초전도 특성과 강자성 특성은 상호 배타적인 특성으로 인해 공존하기 어려운 것으로 알려져 왔다[1]. 그러나 RuSr₂(R_{2-y}Ce_y)Cu₂O₁₀ 계[2] 및 RuSr₂GdCu₂O₈ 계[3]에서 임계온도(T_c)가 약 50 K 이하인 초전도 특성과 자기전이온도(T_m)가 100 ~ 180 K 인 약한 강자성 특성이 공존함이 보고된 후 이들 배타적인 두 특성이 공존하는 메커니즘을 이해하기 위해 Ru 계 자성 초전도체에 대한 많은 연구가 수행되어 오고 있다. 이들 자성 초전도체의 구성은 일반적으로 RuSr₂(R_{2-y}Ce_y)Cu₂O₁₀ (Ru-1222) 및 RuSr₂RCu₂O₁₀ (Ru-1212) 로 나타낼 수 있으며, R 은 희토류 원소로서 Sm, Eu 및 Gd 의 경우만 상압에서 단일상이 형성됨이 알려져 왔다[4]. 특히 Ru-1222 계는 Ru-1212 계에 비해 강자성 특성이 크게 관측되어[5] 그 원인을 파악하기 위해 많은 치환연구가 수행되어 왔으며, (Ru_{1-x}M_x)Sr₂(R_{2-y}Ce_y)Cu₂O₁₀ ((Ru,M)-1222) 조성에 대한 연구에서 M = Fe[6], Co[7], Nb[8,9], Mo[10], Sn[11], Sb[12] 등의 원소 치환연구가 수행되었다. 이들 원소 치환연구 결과, 치환량이 증가되면 약한 강자성 모멘트 및 자기전이온도가 급격히 감소하는 특성이 관측됨으로써, 이 계에서 관측되는 약한 강자성 모멘트는 RuO₂ 층에 기인함이 밝혀졌다. 그러나 원소 치환에 따른 임계온도의 변화는 원소에 따라 다르게 보고되고 있다. 가령, Co 치환의 경우 x = 0.1 이상 치환하면 초전도 특성이 관측되지 않으며, Sb 치환의 경우 x = 0 일 때 43 K 에서 x = 0.06 일 때 20 K 로 감소함이 알려져 있다. 한편 Mo 치환의 경우는 x = 0.0, 0.2, 0.4 및 0.6 의 경우 각각 33 K, 37.5 K, 40 K 및 23 K 의 초전도 특성을 보이며 x = 0.8 이상에서는 초전도 특성이 관측되지 않음이 보고되어 있다. 한편 Nb 치환의 경우는 x = 0.5 까지 치환하는 동안 임계온도

는 치환하지 않은 경우와 비교하여 약 1-3 K 이내의 적은 감소가 관측됨이 보고되어 있다. 그러므로 Nb 을 Ru 대신 100% 까지 치환했을 때의 특성을 연구하는 것은 흥미있는 일이다. 실제 (Ru_xNb_{1-x})Sr₂(Sm_{1.2}Ce_{0.8})Cu₂O_z[13] 및 (Ru_{1-x}Nb_x)Sr₂(Sm_{1.4}Ce_{0.6})Cu₂O_z[14] 조성으로 고압의 산소 분위기로 열처리하여 Nb 를 100% 까지 치환한 시도가 있었다. 본 연구에서는 상압에서 (Ru_{1-x}Nb_x)Sr₂(Sm_{1.4}Ce_{0.6})Cu₂O_z 조성의 시편을 합성하고 Nb 치환에 따른 구조 및 자기적 특성을 체계적으로 조사했다.

II. 실험방법

시편은 99.9% 이상의 고순도 RuO₂, Nb₂O₅, SrCO₃, Sm₂O₃, CeO₂ 및 CuO 분말을 이용해 고상반응법으로 (Ru_{1-x}Nb_x)Sr₂(Sm_{1.4}Ce_{0.6})Cu₂O_z (x = 0, 0.25, 0.5, 0.75, 1.0) 의 명목구성의 시편을 합성했다. 먼저 혼합된 분말을 마노유발을 이용하여 잘 갈고 960 °C 에서 공기중에서 10 시간 열처리한 후 1010 °C 에서 질소 분위기로 10 시간 열처리했다. 그 후 시편을 다시 갈고 페렛 형태로 만든 후 산소분위기에서 1070 °C 20 시간, 1090 °C 40 시간 열처리했으며, 1090 °C 열처리 후 서냉과정 중 400 °C 에와 200 °C 에서 각각 5 시간 씩 열처리 후 상온으로 온도를 내렸다. 고온의 열처리 과정 중 각 온도에서의 열처리 전 시편은 매번 다시 갈고 페렛 형태로 성형했다.

시편의 상 형성 및 구조는 X-선 회절 장치(CuKα 선 이용)를 이용했다. 상온의 열기전력은 미분 방법[15]으로 측정했으며, 자기 감수율 측정은 Superconducting Quantum Interference Device(SQUID) 장치로 측정했다. 자기적 측정은 두

*Corresponding author: hkleee221@kangwon.ac.kr

가지 측정법으로 수행되었으며, zero-field-cooled (ZFC) 측정에서는 자기장을 가하지 않은 상태에서 먼저 온도를 약 4 K 로 낮춘 후 자기장을 가하여 온도를 올리며 측정되었으며, field-cooled (FC) 측정에서는 상온에서 먼저 자기장을 가한 상태로 온도를 낮춘 후 다시 온도를 올리며 측정했다. 이 때 가해진 자기장은 20 Oe 였다.

III. 실험결과 및 논의

Fig. 1은 $(\text{Ru}_{1-x}\text{Nb}_x)\text{Sr}_2(\text{Sm}_{1.4}\text{Ce}_{0.6})\text{Cu}_2\text{O}_z$ ($x = 0, 0.25, 0.5, 0.75, 1.0$) 구성시편의 X-선 회절 분석 결과를 보여준다. 시편의 X-선 회절 피크는 정방(tetragonal)구조의 밀러지수로 매김할 수 있었으며, Nb을 치환한 X-선 회절 양상은 Nb 을 치환하지 않은 시편의 경우와 거의 유사하게 단일상의 특성을 보여주며, $(\text{Ru}_{1-x}\text{Nb}_x)\text{Sr}_2(\text{Eu}_{1.5}\text{Ce}_{0.5})\text{Cu}_2\text{O}_z$ 계 [8]의 경우처럼 Nb 치환으로 상의 순도가 향상됨을 보여주었다. 최소자승법으로 계산된 격자 상수는 $x = 0$ 의 경우 $a = 3.840 \text{ \AA}$, $c = 28.48 \text{ \AA}$ 이었으며, $x = 1.0$ 의 경우 $a = 3.866 \text{ \AA}$, $c = 28.70 \text{ \AA}$ 으로 Nb 치환량에 따라 거의 선형적으로 증가했다. 이 결과는 Nb^{+5} 의 이온반지름 [16] (0.64 \AA , CN = 6)이 Ru^{+5} 의 이온반지름 (0.565 \AA , CN = 6)보다 크고 Nb 이 Ru 자리에 치환되는 것으로 설명된다.

Fig. 2의 결과는 $(\text{Ru}_{1-x}\text{Nb}_x)\text{Sr}_2(\text{Sm}_{1.4}\text{Ce}_{0.6})\text{Cu}_2\text{O}_z$ ($x = 0, 0.25, 0.5, 0.75, 1.0$) 시편들의 ZFC 및 FC 자화율 특성을 보여준다. $x = 0$ 인 시편의 경우 ZFC 측정결과와 FC 측정결과 간에 자기이력 특성을 보여주며, FC 측정은 저온에서 약한 강자성과 같은 자기모멘트가 존재함을 보여준다. 이 모멘트가 급격히 증가하는 온도를 보통 자기전이온도로 간주한다. 그러므로 Fig. 2의 결과는 Nb의 치환량이 증가되면 강자성 모멘트의 크기가 감소하며, 자기전이온도도 감소함을 내는데, 이는 Ru 자리에 다른 원소를 치환한 후 시편의 자화율을 측정한 대부분의 연구 [6] - [12]에서 관측되어온 실험결과와 일치한다.

본 연구의 흥미있는 한 결과는 $x = 0.5$ 이상의 경우 FC 측정에서 반자성을 보이는 마이스너(Meissner) 상태가 관측되며, 이 반자성의 크기가 Nb 치환량이 증가될수록 증가된다는 점이다. 또한 이 때 ZFC 측정으로 관측되는 반자성의 크기도 증가됨을 보여주는데 이는 x 가 0.5 이하일 때 Nb 치환량이 증가함에 따라 ZFC 측정으로 관측되는 반자성의 크기는 감소하는 것과 대비된다. 또한 Fig. 2의 결과에서 $x = 0.5$ 이상의 시편에서 명백히 볼 수 있는 바와 같이 ZFC 측정에서 반자성을 보이는 초전도 전이온도는 FC 측정에서 자화를 곡선의 기울기가 급격히 변화되는 변곡점의 온도와 일치한다, 이 변곡점은 Nb의 치환량이 적을 때도 화살표로 나타낸 바와 같이 계속 관측된다. FC 측정의 경우 자화도는 크게 (1)초전도 특성에 의한 반자성 모멘트, (2)희토류원소나 구리에 의한 상자성 모멘트, 그리고(3)Ru에 기인하는 약한 강자성 모멘트에 의해 결정된다고 볼 때 특정온도에서 시편이 초전도체가 되면 초전도체의 반자성 특성에 의해 FC 측정의 자화도가 감소될 수 있고 강자성 모멘트가 매우 크지 않을 경우 FC 측정에서 감소를

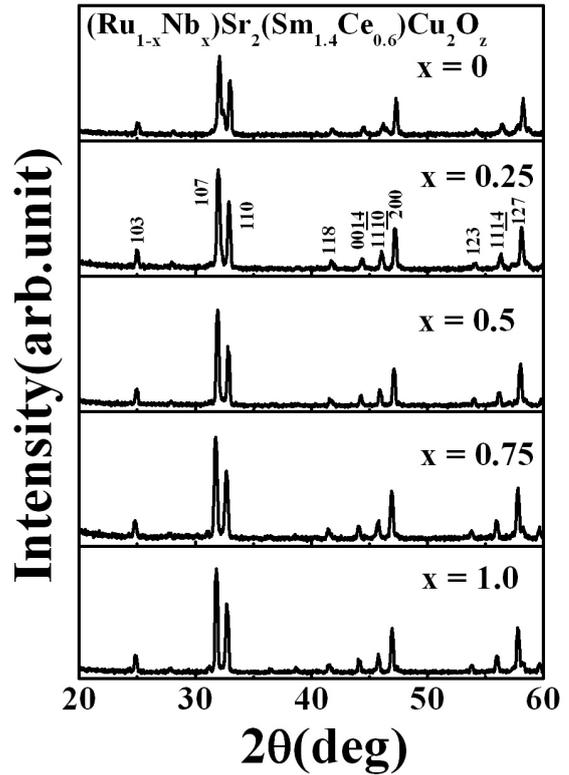


Fig. 1. Powder XRD patterns for $(\text{Ru}_{1-x}\text{Nb}_x)\text{Sr}_2(\text{Sm}_{1.4}\text{Ce}_{0.6})\text{Cu}_2\text{O}_z$ samples.

보이는 굴곡 또는 변곡으로 관측될 수 있으며, 이 변곡점은 초전도 전이온도로 간주될 수 있다 [6], [10]. FC 측정으로 관측된 변곡점의 온도는 $x = 0$ 인 경우 25 K에서 $x = 1.0$ 일 때 22 K로 분석되었으며 이는 측정온도 간격인 3 K 이내이다. 이 결과는 Watanabe 등 [14]에 의해 고압으로 합성된 $(\text{Ru}_{1-x}\text{Nb}_x)\text{Sr}_2(\text{Sm}_{1.4}\text{Ce}_{0.6})\text{Cu}_2\text{O}_{10}$ 계의 경우에도 Nb 치환에 따른 임계온도의 변화가 매우 적다는 결과와 일치하며, 합성 방법의 차이와 무관하게 Nb 치환의 고유 특성으로 볼 수 있다. 본 연구의 결과는 또한 $x = 1.0$ 인 경우도 초전도 특성이 관측되었는데 이는 Ono [13]에 의해 연구된 $\text{NbSr}_2(\text{Sm}_{1.2}\text{Ce}_{0.8})\text{Cu}_2\text{O}_z$ 의 조성의 경우 초전도 특성이 관측되지 않은 것과 대비되며, 시편의 조성이 다른 것과는 연관되는 것으로 보인다.

한편, $x = 0, 0.25, 0.5, 0.75$ 및 1.0 인 시편들의 상온 열기전력은 각각 35.4, 38.4, 46.0, 51.2 및 57.2 μV 였다. P형 구리 산화물의 경우 임계온도 T_c 와 CuO_2 구리평면당의 홀 농도(p) 사이에 경험적으로 역이차함수의 관계가 있음이 밝혀져 있으며, 이 관계는 대부분의 구리 산화물에서 적용됨도 알려져 있다. 이 때 홀 농도와 μV 단위로 표시되는 상온 열기전력(S) 사이에 강한 상관관계가 있음이 알려져 있다. 즉 각 구리 산화물 계에서 최적 임계온도일 경우 약 $2 \mu\text{V}$ 의 열기전력이 관측되며, 최적임계온도 보다 낮을 때는 홀 농도가 최적 상태보다 낮은 상태(underdoped state)이거나 높은 상태(overdoped state)에 해당된다. 홀 농도가 최적상태에 비해 감소할 경우 열기전력은 양의 값으로 증가하며, 반대로 홀 농도가 과잉 상태로 증가할 경우는 열기전력이 음의 값으로 감소하며, 각

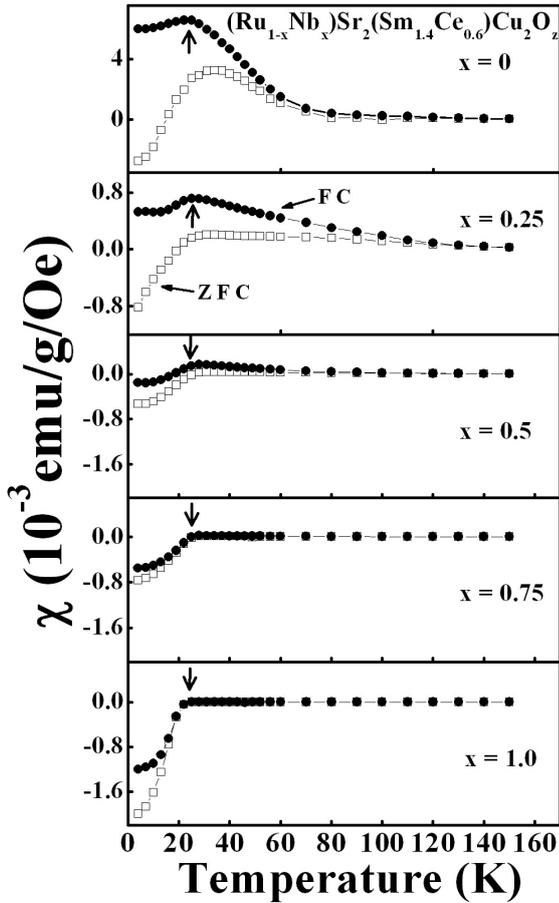


Fig. 2. The zero-field-cooled (ZFC) and field-cooled (FC) dc magnetization curves of $(\text{Ru}_{1-x}\text{Nb}_x)\text{Sr}_2(\text{Sm}_{1.4}\text{Ce}_{0.6})\text{Cu}_2\text{O}_z$ samples.

경우 홀 농도와 상온 열기전력의 관계가 수식적으로 알려져 있다[17]. 그러므로 본 연구의 시편들은 홀 농도가 최적 상태에 비해 결핍한 상태이며,

$$S = 992 \exp(-38.1 p) \quad (1)$$

의 관계식으로 부터 CuO_2 평면당 홀 농도는 $x = 0, 0.25, 0.5, 0.75$ 및 1.0 일 때 각각 $0.088, 0.085, 0.081, 0.078,$ 및 0.075 개 이다. 이 결과는 홀농도의 차이가 최대 0.013 개 이며, Nb 치환에 따른 산소량의 변화는 매우 적음을 고려하고[9], Nb의 가수가 +5일 때 Ru의 원자수가 4.74 이며, Nb치환에 따른 홀이 모두 CuO_2 평면으로 이동했다면 설명된다. 실제 Awana 등[18]은 Ru-1222 계의 Ru 가수가 약 4.74 임을 보고한 바 있다.

Ru-1222계 초전도체의 경우 자기전이온도 및 자기모멘트가 발생하는 구조적 메커니즘에 대해 아직 일정 결론에 이르고 있지 못한 상태이다. 본 연구의 Nb 치환에 따른 임계온도의 변화는 Ru에 의한 약한 강자성 성분은 이 계의 초전도 전이 온도에는 크게 영향을 미치지 않는 것을 보여 주었다. 그러나 Nb 치환량 x 가 0.5 이하인 경우 Nb 치환에 따른 약한 강자성모멘트가 급격히 감소함에도 불구하고 ZFC 자화도 측정결과는 반자성특성이 향상되지 못하고 오히려 감소하였다. 반면에 $x = 0.5$ 이상의 경우에

관측되는 반자성의 크기의 변화는 시편의 구성에서 Ru량이 적을수록 반자성 특성이 향상되어 Ru에 의한 자기모멘트가 시편 전체의 초전도 부피를 감소시키는 효과를 주는 것을 시사하고 있다. 그러므로 Nb 치환량 x 가 0.5 이상인 경우와 0.5 이하인 경우에 Ru 간의 상호작용에 어떤 차이가 있는 것으로 추정되며 국소구조의 변화를 추가적으로 연구할 필요가 있음을 시사한다.

IV. 결 론

$(\text{Ru}_{1-x}\text{Nb}_x)\text{Sr}_2(\text{Sm}_{1.4}\text{Ce}_{0.6})\text{Cu}_2\text{O}_z$ ($x = 0, 0.25, 0.5, 0.75, 1.0$) 시편을 상압에서 고상반응법으로 합성하여 Nb 치환에 따른 상형성, 초전도 및 자기적 특성에 대해 조사했다. X-선 회절분석결과는 Ru자리에 Nb이 100% 치환될 수 있음을 보여주었다. Nb 치환에 따른 자기적 특성 분석 결과는 FC 측정으로 관측되는 약한 강자성 특성은 Nb 치환량 x 가 처음 0.25 로 증가될 때 급격히 감소하며 그 이후의 증가에서는 상대적으로 완만한 감소를 보여주었다. 특히 저온부의 FC 측정곡선의 변곡점(inflexion)을 이용해 결정된 임계온도는 3 K 이내로 매우 적음을 보여주었다. 이 결과는 $(\text{Ru}_{1-x}\text{Nb}_x)\text{Sr}_2(\text{Gd}_{1.4}\text{Ce}_{0.6})\text{Cu}_2\text{O}_z$ 및 $(\text{Ru}_{1-x}\text{Nb}_x)\text{Sr}_2(\text{Eu}_{1.5}\text{Ce}_{0.5})\text{Cu}_2\text{O}_z$ 계의 임계온도 변화와 매우 유사하며, 이로서 RuO_2 층의 자기적 특성이 CuO_2 층의 초전도 전이온도특성에 미치는 효과는 매우 적음을 보여 주었다.

특히 $x = 0.5$ 이상의 경우 ZFC 측정으로 관측되는 반자성 특성과 FC로 측정되는 마이스너효과가 모두 증가됨을 보여 주었으며 이는 Nb 치환량 x 가 0.5 이하인 시편의 경우 Nb 치환량이 증가될수록 ZFC로 측정되는 반자성 특성이 감소되는 특성과 대비되며, Nb 치환량에 따라 초전도 부피가 크게 달라짐을 시사하며, 앞으로 그 국소구조 및 전자적 차이를 조사해볼 필요가 있다.

ACKNOWLEDGEMENT

본 연구는 한국연구재단(NRF)의 지원(2007313C00204, 2012R1A1A2042519)을 받았다. X-선 회절 측정에서는 강원대학교 공동실험실습관의 장치가 이용되었다. 또한 SQUID 측정은 한국기초과학지원연구원에서 수행되었다.

REFERENCES

- [1] E. B. Sonin and I. Felner, "Spontaneous vortex phase in a superconducting weak ferromagnet," *Phys. Rev.* B57, pp. R14000-R14003, 1998 and therein references.
- [2] I. Felner, U. Asaf, Y. Levi and O. Millo, "Coexistence of magnetism and superconductivity in $\text{R}_{1.4}\text{Ce}_{0.6}\text{RuSr}_2\text{Cu}_2\text{O}_{10-\delta}$ (R = Eu and Gd)," *Phys. Rev.* B55, pp. R3374-R3377, 1997.
- [3] C. Bernhard, J. L. Tallon, Ch. Niedermayer, Th. Blasius, A. Golnik, E. Brucher, R. K. Kremer, D. R. Noakes, C. E. Stronach and E. J. Ansaldo, "Coexistence of ferromagnetism and superconductivity in the hybrid ruthenate-cuprate compound $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$ studied by muon spin rotation and dc magnetization," *Phys. Rev.* B59, pp.14099-14107, 1999.
- [4] L. Bauerfeind, W. Widder and H. F. Braun, "Ruthenium-based

- layered cuprates $\text{RuSr}_2\text{LnCu}_2\text{O}_8$ and $\text{RuSr}_2(\text{Ln}_{1-x}\text{Ce}_{1-x})\text{Cu}_2\text{O}_{10}$ (Ln = Sm, Eu and Gd),” *Physica C*, vol. 254, pp. 151-158, 1995.
- [5] G.V.M. Williams and M.Ryan, “Raman transport and magnetization study of the $\text{RuSr}_2\text{R}_{2-x}\text{Ce}_x\text{Cu}_2\text{O}_{10+\delta}$ (R = Gd, Eu) high-temperature superconducting cuprates,” *Phys. Rev. B* 64, pp. 094515(1)-094515(8), 2001.
- [6] I. Felner and U. Asaf, “Superconductivity and weak ferromagnetism in $\text{Eu}_{1.4}\text{Ce}_{0.6}\text{Ru}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Sr}_2\text{Cu}_2\text{O}_{10-\delta}$,” *Physica C* vol. 292, pp. 97-103, 1997.
- [7] V.P.S. Awana, H. Kishan, O. Eshkenazi, I. Felner, Rajeev Rawat, V. Ganesan and A. V. Narlikar, “Experimental study of magneto-superconductor $\text{RuSr}_2\text{Eu}_{1.5}\text{Ce}_{0.5}\text{Cu}_2\text{O}_{10-\delta}$: peculiar effect of Co doping on complex magnetism and T_c variation,” *J. Phys.: Condens. Matter*, vol. 19, pp. 026203(1)-026203(14), 2007.
- [8] H. K. Lee and Y. C. Kim “Superconducting and magnetic properties of $(\text{Ru}_{1-x}\text{Nb}_x)\text{Sr}_2(\text{Eu}_{1.5}\text{Ce}_{0.5})\text{Cu}_2\text{O}_z$,” *Int. J. Mod. Phys.*, vol. B17, pp. 3682-3687, 2003.
- [9] H. K. Lee and G. V. M. Williams, “Effect of Nb doping on superconducting and magnetic properties of $\text{RuSr}_2(\text{Gd}_{1.5-x}\text{Eu}_x\text{Ce}_{0.5})\text{Cu}_2\text{O}_z$,” *Physica C*, vol. 415, pp. 172-178, 2004.
- [10] V.P.S. Awana, R. Lal, H. Kishan, A. V. Narlikar, M. Peurla and R.Laiho, “Experimental study of the magnetosuperconductor $\text{RuSr}_2\text{Eu}_{1.5}\text{Ce}_{0.5}\text{Cu}_2\text{O}_{10-\delta}$: Effect of Mo doping on magnetic behavior and T_c variation”, *Phys. Rev. B* 73, pp. 014517(1)-014517(6), 2006.
- [11] N. Balchev, K. Nenkov, G. Mihova, B. Kunev and J. Pirov, “Superconducting and magnetic properties of Sn-doped Ru-1222 ”, *Physica C*. vol. 467, pp. 174-178, 2007.
- [12] T.R.Yang, G. Ilonca, F. Beiusan, A.V. Pop, V. Toma, I. Matei and S. Patapis, “Synthesis of $\text{Ru}_{1-x}\text{Sb}_x\text{Sr}_2(\text{Eu}_{0.7}\text{Ce}_{0.3})_2\text{Cu}_2\text{O}_{10-\delta}$ and their magnetic and transport properties,” *Int. J. Mod. Phys.*, vol. B19, pp. 3511-3517, 2005.
- [13] A. Ono, “Preparation of new superconducting cuprates $(\text{Ru,Nb})\text{Sr}_2(\text{Sm,Ce})_2\text{Cu}_2\text{O}_z$,” *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 34, pp. L1121-L1122, 1995.
- [14] Watanabe, D.P.Hai, I.Kakeya and K. Kadowaki, “Physical properties and high-temperature phase analyses in magnetic high- T_c superconductor $\text{RuSr}_2\text{RE}_{2-x}\text{Ce}_x\text{Cu}_2\text{O}_{10}$,” *Physica B*, vol. 359-361, pp. 433-435, 2005.
- [15] H.K. Lee, “Superconductivity in the $(\text{Pb,V})\text{Sr}_2(\text{Ca,Tb})\text{Cu}_2\text{O}_z$ system,” *J. Korean Phys. Soc.*, vol. 36, pp. 384-386, 2000.
- [16] R. D. Shannon, “Revised Effective Radii and Systematic studies of interatomic distances in halides and chalcogenides,” *Acta Cryst.*, vol. A32, pp. 751-767, 1976.
- [17] J. L. Tallon, C. Bernhard, H. Shaked, R. L. Hitterman and J. D. Jorgensen, “Generic superconducting phase behavior in high- T_c cuprates: T_c variation with hole concentration in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ” *Phys. Rev. B* 51, pp. 12911-12914, 1995.
- [18] V.P.S. Awana, M. Karppinen, H. Yamauchi, M. Matvejeff. H.S.Liu and L.-Y. Jang, *J. Low Temp. Phys.*, vol. 131, pp. 1211-1216, 2003.