

T.C.
KIRIKKALE ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

FİZİK ANABİLİM DALI
YÜKSEK LİSANS TEZİ

SEZYUM KATKILI YİTRİYUM (1) BARYUM (2) BAKIR (3) OKSİJEN (7-8)
SÜPERİLETKEN BİLEŞİĞİNİN BAZI FİZİKSEL VE YAPISAL
ÖZELLİKLERİNİN ARAŞTIRILMASI

ZEYNEP BOZ

ARALIK 2012

Fizik Anabilim Dalında Zeynep Boz tarafından hazırlanan, Sezyum katkılı yitrium (1) Baryum (2) Bakır (3) Oksijen (7- δ) Süperiletken Bileşiminin Bazı Fiziksel ve Yapısal Özelliklerinin Araştırılması, adlı Yüksek Lisans Tezinin Fizik Anabilim Dalı standartlarına uygun olduğunu onaylarım.

Prof. Dr. Saffet NEZİR
Anabilim Dalı Başkanı

Bu tezi okuduğumu ve tezin **Yüksek Lisans Tezi** olarak bütün gereklilikleri yerine getirdiğini onaylarım.

Prof. Dr. Saffet NEZİR
Danışman

Jüri Üyeleri

Başkan	:	_____
Üye (Danışman)	:	_____
Üye	:	_____

.../.../2012

Bu tez ile Kırıkkale Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Yönetim Kurulu Yüksek Lisans derecesini onaylamıştır.

Prof. Dr. Erdem Kamil YILDIRIM
Fen Bilimleri Enstitüsü Müdürü

ÖZET

SEZYUM KATKILI YİTRİYUM (1) BARYUM (2) BAKIR (3) OKSİJEN (7-δ) SÜPERİLETKEN BİLEŞİĞİNİN BAZI FİZİKSEL VE YAPISAL ÖZELLİKLERİNİN ARAŞTIRILMASI

BOZ, Zeynep

Kırıkkale Üniversitesi

Fen Bilimleri Enstitüsü

Fizik Anabilim Dalı, Yüksek Lisans Tezi

Danışman: Prof. Dr. Saffet NEZİR

Aralık 2012, 54 sayfa

Bu çalışmada, $\text{YBa}_{2-x}\text{Cs}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ($x = 0,075; 0,15; 0,25; 0,35$) numuneli nitratlı bileşikler kullanılarak hazırlandı. Hazırlanan bu bileşikler bazı elektriksel, manyetik ve yapısal özellikleri; taramalı elektron mikroskobu, x ışını toz kırınımı, elektriksel özdirenç ve AC manyetik alınganlık ölçümleri ile incelendi.

Elektron mikroskobu çalışmalarına göre numunelerde Cs katkısının artmasıyla gözenekli yapının azaldığı ve tane boylarının arttığı gözlemlendi.

XRD ölçümleri kullanılarak, numunelerin örgü parametreleri hesaplandı. Elde edilen x ışını kırınım desenlerine göre Cs atomlarının Ba atomlarının yerlerine girdikleri görülür.

10-100 K sıcaklık aralığında yapılan elektriksel özdirenç ölçümlerinde, en yüksek T_C kritik geçiş sıcaklığı değeri 91,5 olarak ölçüldü. Kritik geçiş sıcaklığı katkı miktarının artmasıyla az bir miktar düştüğü görüldü.

AC manyetik alınganlık ölçümleri, $\text{YBa}_{2-x}\text{Cs}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ numunelerinde katkı miktarının artmasıyla süperiletken duruma daha keskin bir geçişin olduğunu gösterdi.

Anahtar kelimeler: Süperiletken, YBCO, XRD, SEM, AC Manyetik Alınganlık, Elektriksel Özdirenç, Cs Katkısı, Kritik Geçiş Sıcaklığı.

ABSTRACT

INVESTIGATION OF PHYSICAL AND STRUCTURAL PROPERTIES OF $\text{YBa}_{2-x}\text{Cs}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ SUPERCONDUCTORS OF CESIUM DOPED

BOZ, Zeynep

Kırıkkale University

Graduate School of Natural and Applied Sciences

Department of Physics, M. Sc. Thesis

Supervisor: Prof. Dr. Saffet NEZİR

December 2012, 54 pages

In this study, $\text{YBa}_{2-x}\text{Cs}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ($x = 0,075; 0,15; 0,25; 0,35$) samples were prepared by using nitrate compounds. Some electrical, magnetic and structural properties of these compounds were examined by using scanning microscope (SEM), x-ray powder diffraction (XRD), electrical resistance and AC susceptibility measurements.

On the basis of the SEM measurements, it would seem that increasing the amount of Cs doping, the porous structure decreases and grains sizes increase.

Unit- cell parameters were calculated by employing XRD measurements. obtained by x-ray diffraction patterns, Cs atoms displaced Ba atoms in the crystal structure.

Measurements of electrical resistivity at 10-100 K temperature, the highest T_C was measured as 91,5 K. The critical transition temperature was decreased by increasing the amount of doping element.

AC susceptibility measurement revolved that by increasing of $\text{YBa}_{2-x}\text{Cs}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ quantity in composite sample, superconductivity state occurs.

Key Words: Superconductor, YBCO, XRD, SEM, AC Susceptibility, Electrical Resistivity, Cs, Critical Transition Temperature.

TEŞEKKÜR

Yüksek-Lisans döneminde ve bu tezin hazırlanmasında, çalışmalarımın her aşamasında bilgi, öneri ve eleştirileriyle beni yönlendiren, tecrübesinden ve engin fikirlerinden yararlanarak yetişmeme ve gelişmeme katkıda bulunan danışman hocam Sayın Prof. Dr. Saffet NEZİR'e sonsuz teşekkürlerimi sunarım.

Kırıkkale Üniversitesi'nde aldığım eğitim süresince verdiği derslerle gelişimime katkıda bulunan Kırıkkale Üniversitesi KÜBTAL Müdürü Sayın Prof. Dr. Sedat AĞAN'a ve Kırıkkale Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Müdürü Sayın Doç. Dr. Erdem Kamil YILDIRIM'a fedakârlıklarından dolayı teşekkürlerimi sunarım. Tez çalışmalarımın deneysel aşamasında bana üniversitelerinin imkânlarını sunan Abant İzzet Baysal Üniversitesi öğretim üyesi Sayın Prof. Dr. Cabir TERZİOĞLU'na teşekkür ederim. Deneysel çalışmalarında ve ölçümlerin alınmasında yardımlarını esirgemeyen Kırıkkale Üniversitesi Arş. Gör. Dr. Mustafa Burak TÜRKÖZ'e ve Uzman Ümit ERDEM'e teşekkürlerimi bir borç bilirim.

Maddi ve manevi her türlü destekle hayatımın her anında yanımda olan aileme teşekkürlerimi borç bilirim. Ayrıca, yüksek lisans çalışmam sırasında bana moral ve motivasyon veren ve yardımlarını esirgemeyen Kırıkkale Üniversitesi Yüksek-Lisans öğrencisi Burcu ERDEN'e ve Kırıkkale Üniversitesi Doktora öğrencisi İsmail Bilican'a teşekkür ederim.

İÇİNDEKİLER

	<u>Sayfa</u>
ÖZET	III
ABSTRACT	V
TEŞEKKÜR	VI
İÇİNDEKİLER	VII
ŞEKİLLER DİZİNİ	IX
ÇİZELGELER DİZİNİ	XII
SİMGE VE KISALTMALAR	XIII
1. GİRİŞ	1
1.1 Süperiletkenliğin Tarihçesi.....	2
1.2 Bazı Temel Kuramlar	6
1.2.1 Kritik Sıcaklık ve Sıfır Direnç	6
1.2.2 Kritik Manyetik Alan ve Kritik Akım Yoğunluğu (J_c)	7
1.2.3 Meissner Etkisi.....	7
1.2.4 I. ve II. Tip Süperiletkenler	8
1.3 Süperiletkenlik Teorileri.....	11
1.3.1 London Teorisi	12
1.3.2 Ginzburg Landau Teorisi	14
1.3.3 BCS Teorisi ve Temel Kavramları.....	15
1.4 Yüksek Sıcaklık Oksit Süperiletkenlerinin Yapısal Özellikleri	19
1.4.1 YBCO'nun Genel Özellikleri.....	20
2. MATERYAL VE YÖNTEM	23
2.1 Giriş.....	23
2.1.1 Katıhal Tepkime Yöntemi.....	23
2.1.2. Eritme-Döküm Yöntemi	24
2.1.3. Nitrat Yöntemi	24
2.2 Deneysel Çalışmalar	25
2.2.1 $YBa_{2-x}Cs_xCu_3O_{7-\delta}$ Bileşiğinin Hazırlanması.....	25
2.2.2 Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM) Çalışmaları.....	29
2.2.3 X-Işını Toz Kırınım Çalışmaları	29

2.2.4 Elektriksel Özdirenç Ölçümleri.....	30
2.2.5 Manyetik Alınganlık Ölçümleri	31
3. ARAŞTIRMA BULGULARI VE TARTIŞMA	32
3.1. Giriş	32
3.2. SEM Ölçümleri	32
3.3. XRD Ölçümleri	39
3.4. Elektriksel Özdirenç Ölçümleri	41
3.5. Manyetik Alınganlık Ölçümleri.....	444
4.SONUÇLAR.....	48
KAYNAKLAR.....	50

ŞEKİLLER DİZİNİ

ŞEKİL

Sayfa

1.1 İletkenlerin çok düşük sıcaklıklardaki direnci ile ilgili kuramlar doğrultusunda direncin sıcaklıkla değişim eğrileri	2
1.2 Cıvada kritik sıcaklık ve direncin değişimi	3
1.3 Bazı süperiletkenlerin keşif tarihleri ve kritik geçiş sıcaklıkları	5
1.4 Bir süperiletken için kritik geçiş sıcaklığının gösterilmesi	6
1.5 Manyetik alanın sıcaklıkla değişimi	7
1.6 Manyetik alan içersine konulan bir süperiletkenin manyetik alan çizgilerini dışarlaması	8
1.7 I. ve II. tip süperiletkenlerde uygulanan manyetik alanla mıknatıslanmanın değişimi	9
1.8 Karışık haldeki bir süperiletken için dış manyetik alanın ve uygulanan akımın varlığında girdaplara etki eden Lorentz kuvveti ve girdap hareketi	10
1.9 1967 yılında Esman ve Träuble tarafından elde edilen akı örgüsü	11
1.10 Süperiletkene uygulanan manyetik alanın nüfuz etme derinliği	13
1.11 a) I. ve b) II. tip süperiletkenlerde λ nüfuz derinliği ve ξ eş uyum uzunluğunu değişimi	15
1.12 Cıvanın farklı izotoplarının süperiletkenlik geçiş sıcaklığına etkisi	16
1.13 Cooper çiftlerinin örgü içersindeki hareketi	17
1.14 YBCO'nun kristal yapısı: a) ortorombik b) tetragonal faz	21
2.1 Kalsinasyon süreci.....	26
2.2 13 mm çaplı pres kalıbı	27
2.3 TUMAS marka hidrolik pres.....	27
2.4 Protherm marka silindirik fırın.....	28
2.5 Sinterleme süreci	28
2.6 JSM5600 marka 30 kV'luk Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM)	29
2.7 Standart dört nokta yöntemine göre (a) numunelere yapılan kontaklar ve (b) parametrelerin şematik gösterimi	30
2.8 Elektriksel öz direnç ve manyetik alınganlık ölçümlerinin yapıldığı sıvı helyum kriyostat	31

3.1 Katkısız $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ süperiletken numunesinin 1000 kez büyütme ile elde edilen SEM görüntüsü	33
3.2 Katkısız $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ süperiletken numunesinin 5000 kez büyütme ile elde edilen SEM görüntüsü	34
3.3 Sezyum katkı miktarı $x = 0,075$ için $\text{YBa}_{1,925}\text{Cs}_{0,075}\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ bileşiğinin 1000 ve 5000 kez büyütme ile elde edilen SEM görüntüleri	35
3.4 Sezyum katkı miktarı $x = 0,15$ için $\text{YBa}_{1,85}\text{Cs}_{0,15}\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ bileşiğinin 1000 ve 5000 kez büyütme ile elde edilen görüntüleri	36
3.5 $\text{YBa}_{1,75}\text{Cs}_{0,25}\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ bileşiğinin 5000 kez büyütme ile elde edilen SEM fotoğrafı	37
3.6 Sezyum katkı miktarı $x = 0,35$ için $\text{YBa}_{1,65}\text{Cs}_{0,35}\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ bileşiğinin 1000 kez ve 5000 kez büyütme ile elde edilen SEM görüntüleri	38
3.7 Katkısız ve sezyum katkılı ($x = 0,075$ ve $x = 0,15$) $\text{YBa}_{2-x}\text{Cs}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ numunelerinin x-ışını toz kırınım desenleri	39
3.8 Sezyum katkılı ($x = 0,25$ ve $x = 0,35$) $\text{YBa}_{2-x}\text{Cs}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ numunelerinin x-ışını toz kırınım deseni	40
3.9 $\text{YBa}_{2-x}\text{Cs}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ numunesine yapılan katkı miktarının x-ışını toz kırınım desenindeki (110) pikinin gözlemlendiği açığa etkisi	41
3.10 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ süperiletken numunesinin öz direncinin sıcaklıkla değişimi	42
3.11 Katkısız ve sezyum katkılı ($x = 0,075, 0,15, 0,25, 0,35$) $\text{YBa}_{2-x}\text{Cs}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ numunelerinin öz dirençlerinin sıcaklıkla değişimi	43
3.12 $\text{YBa}_{2-x}\text{Cs}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ numunelerde katkı miktarına göre kritik geçiş sıcaklığının değişimi	43
3.13 $\text{YBa}_{1,75}\text{Cs}_{0,25}\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ bileşiğinin $f = 1000$ Hz 'lik frekanslı farklı alanlarda (2 Oe, 4 Oe, 6 Oe) AC manyetik alınganlığın sıcaklıkla değişimi	44
3.14 $\text{YBa}_{1,75}\text{Cs}_{0,25}\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ bileşiğinin AC manyetik alınganlığın sanal kısmının tepe değerinin, $f = 1000$ Hz 'lik frekanslı farklı alanlarda (2 Oe, 4 Oe, 6 Oe) değişimi	45

3.15 Sezyum katkı miktarı $x = 0,25$ için $\text{YBa}_{1.75}\text{Cs}_{0.25}\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ bileşiğinin sabit 4 Oe'lik alanlı, farklı frekanslı (111, 500, 1000 Hz) AC manyetik alınganlığın sıcaklıkla değişimi	46
3.16 Katkısız ve sezyum katkılı $\text{YBa}_{2-x}\text{Cs}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ numunelerinin (H = 2 Oe, $f = 1000$ Hz) AC manyetik alınganlıklarının sıcaklıkla değişimi...	47
3.17 Katkısız ve sezyum katkılı $\text{YBa}_{2-x}\text{Cs}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ numunelerinin (H = 4 Oe, $f = 1000$ Hz) AC manyetik alınganlıklarının sıcaklıkla değişimi.....	47

ÇİZELGELER DİZİNİ

ÇİZELGE

Sayfa

2.1	$\text{YBa}_{2-x}\text{Cs}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ bileşiğini hazırlamak için kullanılan bileşiklerin saflık dereceleri ve molekül ağırlıkları25
------------	--

SİMGELER VE KISALTMALAR

I	Akım
R	Direnç
H	Manyetik alan
H _C	Kritik Manyetik Alan
M	Manyetizasyon
T	Sıcaklık
T _C	Kritik Sıcaklık
J	Akım Yoğunluğu
J _C	Kritik Akım Yoğunluğu
ξ	Eş Uyum Uzunluğu
λ	London Nüfuz (Sızma) Derinliği
κ	Ginzburg-Landau Parametresi
E _g	Enerji Aralığı
n _s	Süperelektron sayısı
B	Manyetik akı yoğunluğu
θ	X-Işınları yansıma açıları
HTSC	Yüksek Sıcaklık Süperiletkenliği
Å	Angstrom (10 ⁻⁸ cm)

1. GİRİŞ

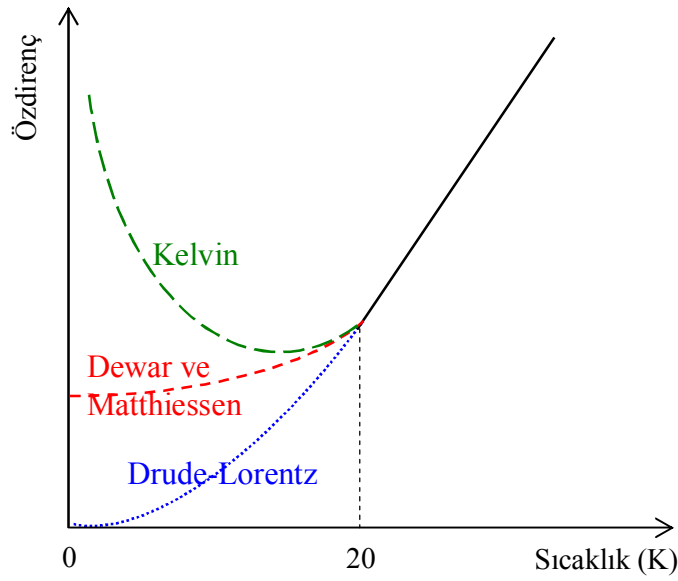
Bir iletkende akım, elektronların kristal örgü boyunca hareketi ile ortaya çıkar. Ancak, kristalde bulunan safsızlıklar ve yapısal kusurlar elektronların serbest hareketini engeller ve bu da akıma karşı bir “direnc” meydana getirir. Bu direncin büyüklüğü, malzemenin iletken, yalıtkan, yarıiletken veya süperiletken olmasına göre değişir. Aslında bu direncin iki temel kaynağı vardır: kristal örgüdeki kusurlar, örgü titreşimleri.

Örgü içerisindeki atomların mutlak sıfır üzerindeki sıcaklıklarda iyonlaşması, kristal örgü boyunca hareket eden (yayılan) ses dalgalarına benzeyen bir titreşim meydana getirir. Bu dalgalara “fonon” denir [1]. Sıcaklık arttıkça örgüde daha çok fonon oluşur. Bunun sonucunda da iletim elektronlarını saçan ve daha fazla dirence sahip olan bir elektron-fonon etkileşmesi oluşur. Bu yüzden sıcaklık azaldıkça iletkenin elektriksel direnci azalmalıdır. Fakat sıcaklık mutlak sıfır civarında olsa bile kristal kusurlardan dolayı “artık” bir direnc beklenir. Bu beklentiye rağmen bazı katıların elektriksel direncinin yeterince düşük sıcaklıklarda gözlenmemesi olağanüstü görülmektedir.

20. yüzyılın başında mutlak sıcaklığa ulaşmak için girişilen çabaların en başarılı sonucu, 1908 yılında Danimarkalı fizikçi Kamerling Onnes’un helyumu sıvılaştırmasıdır. Onnes, çok saf ince bir civa teli üzerinde ölçümler yaptı. 4,2 K’in hemen üzerindeki bir sıcaklıkta telin direncinin birden neredeyse sıfıra (yaklaşık 0,11 Ohm) düştüğünü gözledi. Onnes, bu yeni keşfettiği duruma “süperiletkenlik” adını verdi [2]. Keşfedildiği andan itibaren yüzlerce malzemede süperiletkenlik gözlenmiş ve halen gözlenmeye devam etmektedir. Yüz yılı aşkın süren çabalara rağmen süperiletkenliğin ortaya çıktığı sıcaklık değeri 158 K’i aşmamıştır [3].

1.1 Süperiletkenliğin Tarihçesi

Süperiletkenlik ilk defa Hollandalı fizikçi Heike Kamerling Onnes tarafından, helyumu sıvılaştırmayı başardıktan üç yıl sonra 1911’de gözlenmiştir. Çok düşük ($T \rightarrow 0$) sıcaklıklarla ilgili çalışmalar, bunun daha öncesine dayanmaktadır.

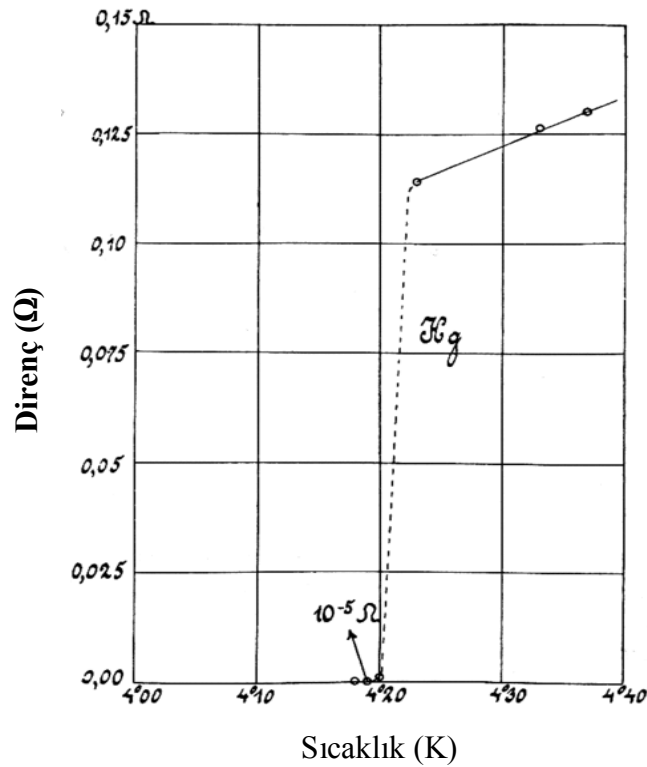


Şekil 1.1 İletkenlerin çok düşük sıcaklıklardaki direnci ile ilgili kuramlar doğrultusunda direncin sıcaklıkla değişim eğrileri [4]

Bu konuyla ilgili ilk kuram, James Dewar tarafından “sıcaklığın mutlak sıfıra yaklaştığı durumlarda iletkenliğin sıfıra yaklaşması gerektiği” şeklinde ifade edilmiştir. Ancak, Dewar’a göre mutlak sıfıra ne kadar yaklaşılsa yaklaşılsın sıfır direnç mümkün değildi. Bir diğer kuram, Kelvin tarafından “sıcaklık azaldıkça direncin artması gerektiği” şeklinde idi. Çünkü, sıcaklık azaldıkça elektronların hareketi azalacak ve böylelikle akım iletimi olmayacaktı. 1900 yılına gelindiğinde Paul Drude ve Hendrik Lorentz, Şekil 1.1’de gösterildiği gibi sıcaklık ve direnç ilişkisine bir başka kuram önerdiler. Bunlara göre, direncin iki temel kaynağı vardı: biri sıcaklık diğeri de kristal yapıdaki kusurlar. Sıcaklık ne kadar yüksekse

kristaldeki atomlar o kadar çok titreşecek ve elektronların hareketi engellenerek daha fazla direnç oluşacaktı. Drude ve Lorentz'e göre, sıcaklık azaldığında, sıcaklığın ve benzer şekilde kristaldeki kusurların neden olduğu direnç de azalacaktı [5].

Bu sırada Hollandalı fizikçi Kamerlingh Onnes, gazları sıvılaştırma ve düşük sıcaklık fiziği çalışmaları ile ilgileniyordu. Sonunda 4,2 K sıcaklığında helyumu sıvılaştırmayı başardı. Amacı, bu sıcaklıktaki malzemelerin davranışlarını gözlemlemektir. Deneyleri sırasında Onnes, bu sıcaklık değerinde cıvanın ilginç bir davranışını keşfetti. Cıva, belli bir sıcaklık değerinin altında elektrik akımına karşı neredeyse tüm direncini kaybediyordu. "Kritik sıcaklık (T_C)" adını verdiği bu eşik değerin altında cıva, yalnızca çok iyi bir iletken değil, elektriğe karşı neredeyse hiçbir direnç göstermeyen bir "süperiletken"e dönüşüyordu.



Şekil 1.2 Cıvada kritik sıcaklık ve direncin değişimi [2].

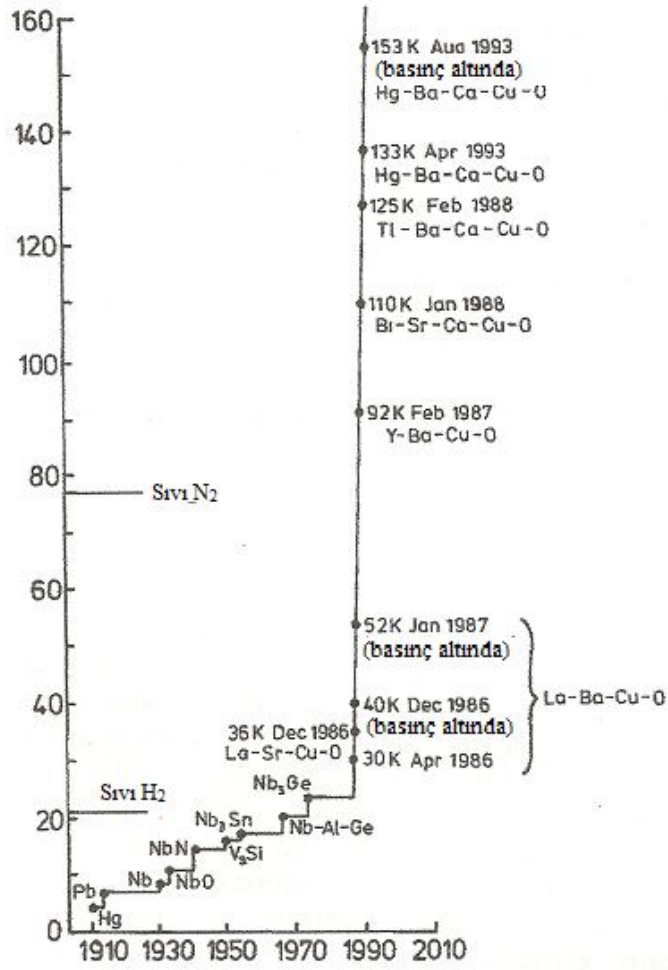
1933 yılında W. Hans Meissner ve Robert Ochsenfeld süperiletkenlerin manyetik özelliklerini incelediler ve manyetik alanda soğutulan bir süperiletkenin kritik

sıcaklık altına inildiğinde, manyetik akıyı dışladığını buldular [6]. Bu olay, “mükemmel diamanyetizma” olarak bilinir ve günümüzde sık sık “Meissner etkisi” olarak isimlendirilir. Bu etki bir mıknatısın, bir süperiletken üzerinde asılı kalabileceğini gösterecek kadar güçlüdür.

Süperiletkenlikle ilgili sezgiye dayanan (phenomenological) bir teori, Fritty ve Heide London tarafından 1935 yılında öne sürülmüştür. Ancak, süperiletkenliğin asıl doğası ve kökeni; John Bardeen, Leon N. Cooper ve J. Robert Schriffer tarafından ilk defa 1957’de açıklanmıştır [7]. BCS teorisi olarak bilinen bu teorinin ana teması, iki elektron arasında “Cooper çiftleri” olarak bilinen bağlı bir halin oluşmasıdır.

Brian D. Josephson 1962 yılında, 2 nm kalınlığında yalıtkan bir engel ile ayrılmış iki süperiletken arasında Cooper çiftleri tarafından taşınan tünelleme akımının oluşacağını öngörmüştür [8]. Bu tünelleme olayı günümüzde “Josephson etkisi” olarak bilinir ve çok zayıf manyetik alanları bile algılayabilen bir alet olan SQUID adı verilen elektronik aletlere uygulanabilmiştir.

Şekil 1.3’de süperiletkenliğin keşfinden bu yana yapılan çalışmalar yıllara göre düzenlenmiştir. Süperiletkenliğin keşfinden, 1986 yılına kadar yapılan çalışmalar doğrultusunda “kritik sıcaklık” için ulaşılan en yüksek değer 23 K idi. J. George Bednorz ve Karl Alex Müler 1986 yılında; lantanyum, baryum ve bakırın bir oksidinde (Ba-La-Cu-O) 30 K’ in üzerinde süperiletkenliği gözlediler [10]. Bu buluş “Yüksek Sıcaklık Süperiletkenliği (HTSC)” olarak bilinen bir dönemin başlangıcı olarak kabul edilir. Bu başarılarından dolayı, 1987 yılında Nobel fizik ödülünü kazandılar. 1987 yılında Wu ve arkadaşları Y-Ba-Cu-O sisteminde sıvı azot sıcaklığının üstünde kritik geçiş sıcaklığına sahip (92 K) yeni bir malzeme üreterek süperiletkenlik üzerindeki çalışmaların büyük bir hız kazanması sağladılar [11]. Bu malzemenin keşfi, kritik sıcaklık değerine ulaşmak için helyumla çalışan soğutucular yerine maliyeti daha düşük olan azotla çalışan soğutucuların kullanılmasını olanaklı kılmıştır.



Şekil 1.3 Bazı süperiletkenlerin keşif tarihleri ve kritik geçiş sıcaklıkları [9].

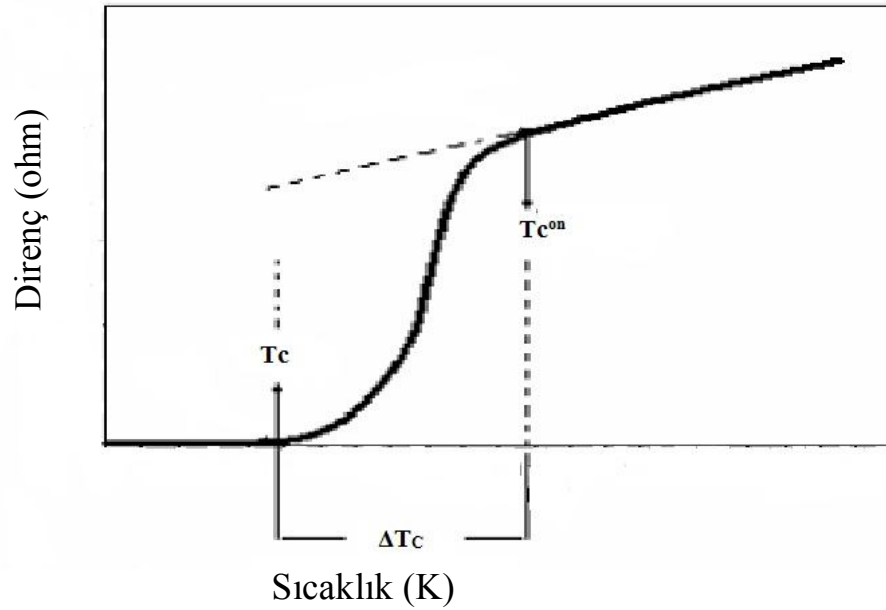
1987 yılında, $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Cu}_2\text{O}_{7+\delta}$ bileşiğinde Michel ve arkadaşları tarafından 22 K’de süperiletkenlik gözlemlendi [12]. 1988 yılında Maeda ve arkadaşları tarafından bu bileşiğe Ca ekleyerek ($\text{BiSrCaCu}_2\text{O}_x$) 105 K’de süperiletkenlik gözlemlendi [13]. Daha sonra Sheng ve Herman tarafından Tl-Ba-Cu-O sisteminde süperiletkenlik gözlemlendi [14]. Parkin ve arkadaşları tarafından üretilen $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10}$ bileşiğinde 125 K’de süperiletkenlik gözlemlendi [15]. 1994 yılında $\text{HgBa}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{8+x}$ bileşiği kullanılarak 135 K’de süperiletkenlik elde edildi. Şu anda bilinen en yüksek kritik sıcaklık değeri ise Hg tabanlı bileşikte çok yüksek basınç altında elde edilen 158 K değeridir [16].

1.2 Bazı Temel Kuramlar

Süperiletkenlerle ilgili kritik sıcaklık, sıfır direnç, kritik manyetik alan, kritik akım yoğunluğu, Meissner olayı, I. ve II. tip süperiletkenler arasındaki temel farklar gibi bazı temel kavramları sırasıyla inceleyelim.

1.2.1 Kritik Sıcaklık ve Sıfır Direnç

Her süperiletkenin kendine has bir T_C değeri vardır. Genellikle geçiş sıcaklığı, malzemenin çok küçük miktarda da olsa safsızlık içermesine duyarlıdır. T_C , Şekil 1.4'te gösterildiği gibi süperiletkenler için iki farklı karakteristik kritik sıcaklık ile tanımlanır: geçişin başladığı sıcaklık, T_C^{on} ve geçişin tamamlandığı sıcaklık T_C^0 . T_C^0 sıcaklığı, direncin sıcaklıkla değişim eğrisinde metalik davranıştan (ohmik davranış) sapmanın gözlemlendiği sıcaklık olarak tanımlanır. Offset sıcaklığı (ya da yalnızca kritik sıcaklık olarak adlandırılır), direncin yaklaşık sıfır olduğu sıcaklık olarak tanımlanır. Bu değerden, direncin sıfır değerine düştüğü T_C^0 değerine kadar olan bölge ise geçiş aralığıdır (ΔT_C). Bölgenin genişliği, numunenin saflığına ve ölçüm sırasında uygulanan akımın büyüklüğüne bağlıdır.



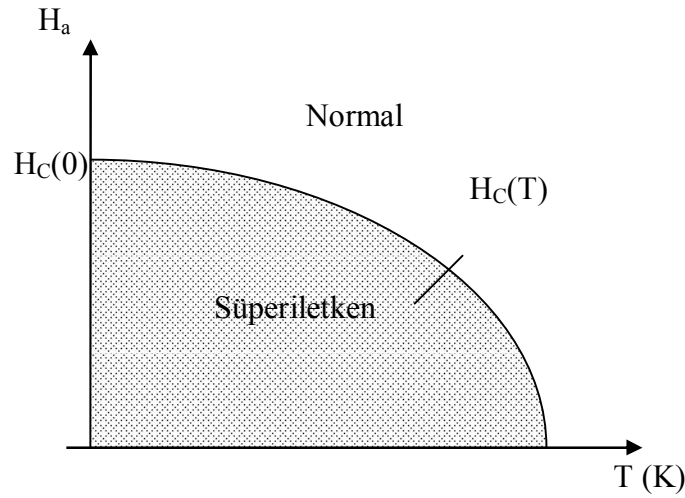
Şekil 1.4 Bir süperiletken için kritik geçiş sıcaklığının gösterilmesi

1.2.2 Kritik Manyetik Alan ve Kritik Akım Yoğunluğu (J_c)

Süperiletken haldeki bir malzeme ısıtılarak tekrar “normal” hale dönebileceği gibi üzerine bir değerden fazla manyetik alan uygulanarak da normal hale geçebilir. Alan uygulandığında, alanın belirli bir değerine kadar malzeme süperiletkenliğini korurken yeteri kadar güçlü bir manyetik alan süperiletkenliği yok edebilir ve normal direnç tekrar ortaya çıkabilir. Bu alan, “kritik manyetik alan (H_c)” olarak tanımlanır ve sıcaklığa;

$$H_c(T) = H_c(0) \left(1 - \left(\frac{T}{T_c} \right)^2 \right) \quad (1.1)$$

şeklinde bağlıdır [17]. Burada $H_c(0)$, Şekil 1.5’te görüldüğü gibi her malzeme için farklı bir değere sahip olacak şekilde mutlak sifıra ekstrapole edilen (uzanan) manyetik alan değeridir.



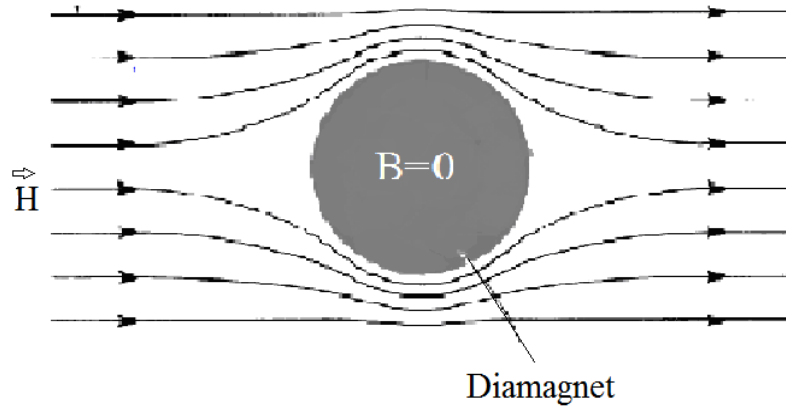
Şekil 1.5 Manyetik alanın sıcaklıkla değişimi [18].

1.2.3 Meissner Etkisi

Süperiletkenliğin keşfinden sonra, 22 yıl boyunca bir süperiletkenin yalnızca “ideal” bir iletken, yani sıfır dirençli bir metal olduğuna inanıldı. Aslında mükemmel bir iletken, dış manyetik alan sıfır iken, kritik sıcaklığın altına kadar soğutulup daha

sonra bir manyetik alan içine konulduğunda, manyetik alanı dışarılar. Bunun nedeni, alanın iletken yüzeyine nüfuz etmesiyle birlikte, Lenz kanunu gereği uygulanan alana zıt yönde bir manyetik alanın ortaya çıkmasıdır.

Diğer taraftan normal bir iletken manyetik alana konulup, soğutulduğunda alanı dışarlayamaz. Süperiletkenlerin de manyetik alana karşı böyle bir davranış sergileyeceği sanılıyordu. Fakat W. Meissner ve R. Oshensfeld bunun böyle olmadığını, zayıf bir manyetik alanda bir metal süperiletken olduğunda, madde içinde her noktada $B = 0$ olacak şekilde alanın dışarılandığını keşfettiler. Böylece alan, ister madde kritik sıcaklığın altına soğutulmadan önce, ister soğutulduktan sonra uygulanmış olsun, aynı $B = 0$ durumuna erişilmiş olur. Bu olay “Meissner etkisi” olarak adlandırılır ve Şekil 1.6’da gösterildiği gibi gerçekleşir.



Şekil 1.6 Manyetik alan içerisine konulan bir süperiletkenin manyetik alan çizgilerinin dışarlaması [18].

1.2.4 I. ve II. Tip Süperiletkenler

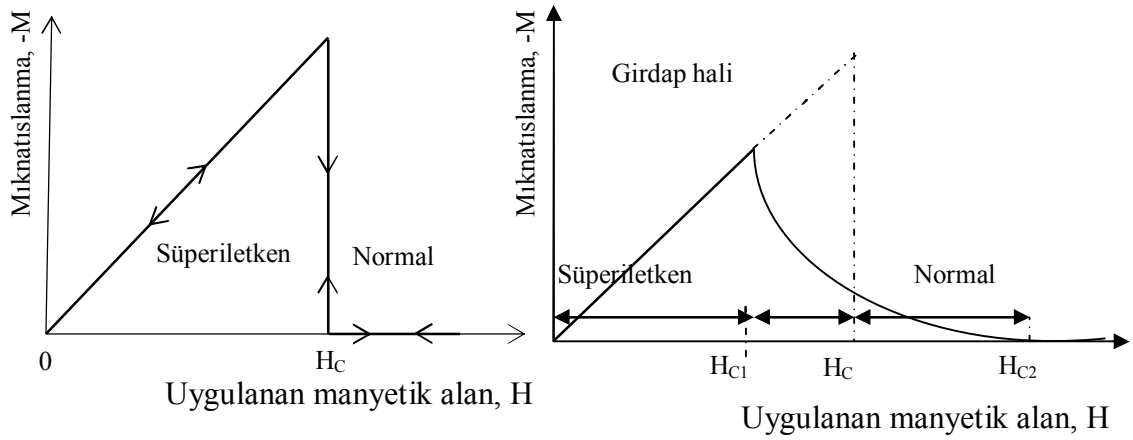
Süperiletken malzemeler, uygulanan manyetik alandaki davranışlarına göre Şekil 1.7’ de görüldüğü gibi I. tip ve II. tip süperiletken olmak üzere iki sınıfa ayrılırlar.

H gibi bir dış manyetik alana konulan numune malzeme süperiletken halde iken içinde $B = 0$ olduğundan,

$$\vec{B} = \mu_0 (\vec{M} + \vec{H}) = 0 \quad (1.2)$$

$$\vec{M} = -\vec{H} \quad (1.3)$$

şeklinde negatif yönde M mıknatıslanmasını kazanır [19]. Bu Şekil 1.7’de I ve II tip süperiletkenler için gösterilmiştir.



Şekil 1.7 I. ve II. tip süperiletkenlerde uygulanan manyetik alanla mıknatıslanmanın değişimi [20].

I. tip süperiletkenlerde kritik manyetik alan değerine kadar mıknatıslık negatif yönde hemen hemen lineer olarak artar, ancak kritik manyetik alan değerinde keskin bir şekilde düşerek ölçülemeyecek kadar küçük değerlere gider ve neredeyse sıfır olur. I. tip süperiletkenlerde normal-süperiletken geçişi keskindir. Bu tip süperiletkenlerin kritik manyetik alan değerleri çok düşük olduğundan mıknatıs yapımında kullanışlı değildir.

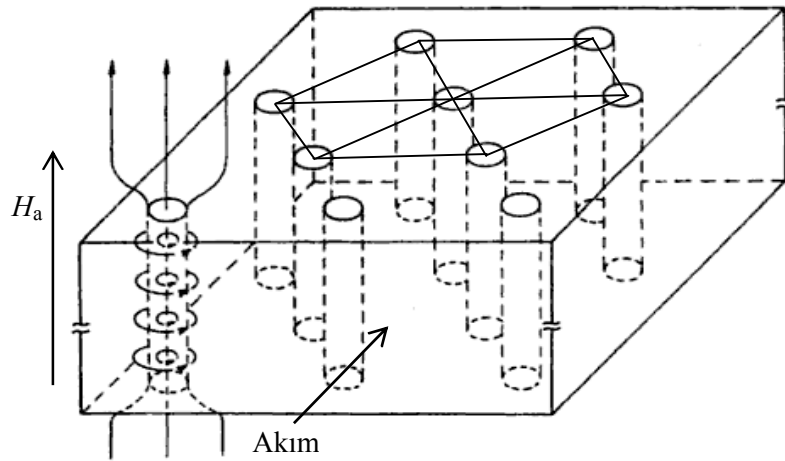
II. tip süperiletkenler, H_{C1} kritik manyetik alan değerine kadar I. tip süperiletkenlerin özelliğini gösterirler. Yani H_{C1} değerine kadar alanı dışarılar ve negatif yönde mıknatıslanırlar. Bu kritik manyetik alan değerine “alt kritik manyetik alan” denir. Bu değer üstünde uygulanan alanlarda alanın bir kısmı dışlanmakta ve bir kısmı da

malzemeye nüfuz edebilmektedir. Malzeme, bu durumda süperiletkenliğini sürdürmeye devam etmektedir. Ancak, manyetik alan H_{C2} olarak ifade edilen “üst kritik manyetik alan” değerine ulaştığında alan tümüyle malzemeye nüfuz eder ve süperiletkenlik yok olur.

Madde H_{C1} ve H_{C2} değerleri arasında ‘karışık halde’ olur. Bu durumda manyetik alan süperiletken malzemeye Şekil 1.8’de görüldüğü gibi girer. Süperiletken bölgeler tarafından sarılmış çok sayıdaki küçük silindirik normal bölgelerin girdap etrafında akımları dolanır. Her bir girdabın taşıdığı manyetik akı

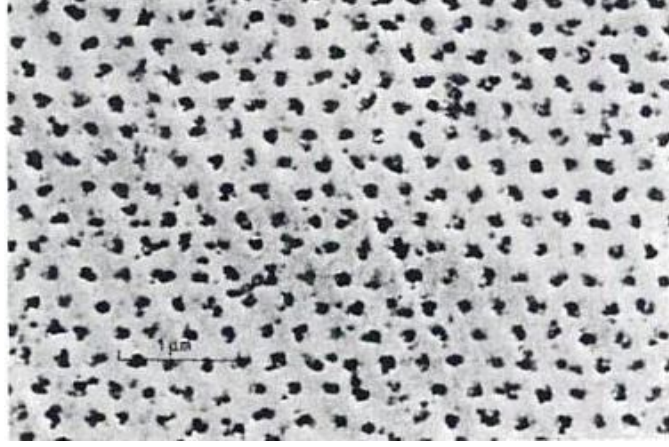
$$\Phi_0 = \frac{h}{2e} = 2,067 \times 10^{-15} \text{ Weber} \quad (1.4)$$

kadardır.



Şekil 1.8 Karışık haldeki bir süperiletken için dış manyetik alanın ve uygulanan akımın varlığında girdaplara etki eden Lorentz kuvveti ve girdap hareketi [21]

Süperiletken malzemeye uygulanan alan H_{C2} değerine kadar artırılırken girdapların sayısı da artar ve bunlar birleşerek malzemeyi normal hale geçirirler.



Şekil 1.9 1967 yılında Esman ve Träuble tarafından elde edilen akı örgüsü [22].

Girdapların varlıkları manyetik dekorasyon tekniği ile elektron mikroskopuyla görülebilir. Numune yüzeyine dik olarak uygulanan manyetik alanın varlığında, yüzeye ferromanyetik çok ince tozlar döküldüğünde bunlar akı çizgilerinin merkezlerine doğru hızlanırlar. Malzeme, oda sıcaklığına ısıtıldığında bu tozlar yerlerinde kalırlar ve böylece Şekil 1.9’da görülen hekzagonal örgü ortaya çıkar [21].

1.3 Süperiletkenlik Teorileri

Üzerinde çalışılan süperiletken malzemelerin karmaşık fiziksel yapıları, manyetik ve termodinamik özellikleri nedeniyle tek bir teori bulmak zordur. Bundan dolayı süperiletkenlik, bilim adamlarına araştırma yapabilecekleri geniş bir alan sağlamıştır. Deneyciler, bir taraftan sürekli araştırmalar yaparak süperiletken malzemelerin fiziksel ve kimyasal özelliklerini belirlemeye çalışmaktadırlar. Diğer yandan teorisyenler de anlaşılması zor olan bu problemin nasıl çözüleceği konusunda çalışmalarına devam etmektedirler. Süperiletkenliğin anlaşılması için ortaya bir takım teoriler sunulmuştur. Bunlardan en yaygın olarak bilinenleri şunlardır. 1935 yılında ortaya atılan London teorisi, 1950 yılında ortaya atılan Ginzburg-Landau teorisi ve 1957 yılında sunulan I. tip süperiletkenlerin pek çok özelliğini başarılı bir şekilde açıklayan BCS teorisi.

1.3.1 London Teorisi

Fritz ve London, mükemmel iletkenlik ve Meissner etkisi gibi süperiletkenliğin iki temel özelliğini teorik olarak açıklamaya çalışmışlardır. Bir süperiletkenin bir elektromanyetik alan içindeki davranışını anlamak için, “iki sıvı modeli” olarak adlandırılan modeli kullanmışlardır. Fritz ve London, süperiletkenlik elektron yoğunluğu üzerinde fark edilebilir derecede bir etkiye sahip olmayacak kadar zayıf elektrik ve manyetik alanların varlığında, n_s yoğunluğunun her yerde aynı olduğunu kabul etmişlerdir. Bu modele göre, süper elektronlar ve normal elektronlar olmak üzere iki tip elektron vardır ve toplam serbest elektron yoğunluğu Eşitlik 1,3’teki gibidir.

$$n = n_s + n_n \quad (1.3)$$

Süperelektronların sayısı;

$$n_s = n \left[1 - \left(\frac{T}{T_c} \right)^4 \right] \quad (1.4)$$

sıcaklığa Eşitlik 1,4’teki gibi bağlıdır. Buna göre sıcaklık; $T=0$ ’ dan $T=T_c$ ‘ye doğru arttırıldığında, n_s yoğunluğu n ’ den 0’a doğru azalır [23]. $T = T_c$ olduğunda; normal hale geçiş olduğundan; $n_s = 0$ olur. Sonuç olarak; akım ile elektrik ve manyetik alan arasında ilişki lineerdir ve “London eşitlikleri” olarak tanımlanır.

Özdirenç sıfır iken, dışarıdan bir E elektrik alanı uygulandığında, serbest elektron için hareket denklemi (1.5) bağıntısında gösterilmiştir.

$$m \frac{dV_s}{dt} = -eE \quad (1.5)$$

Süperelektronlar bir saçılmaya maruz kalmadıklarından dolayı, saçılma ile ilgili terimler yoktur.

Süperakım yoğunluğu;

$$J_s = n_s e V_s \quad (1.6)$$

şeklinde yazılıp, bu eşitliğin zamana göre türevi alınırsa; elektrik alan ve akım yoğunluğu arasında;

$$\frac{dJ_s}{dt} = n_s e \frac{dV_s}{dt} \quad (1.7)$$

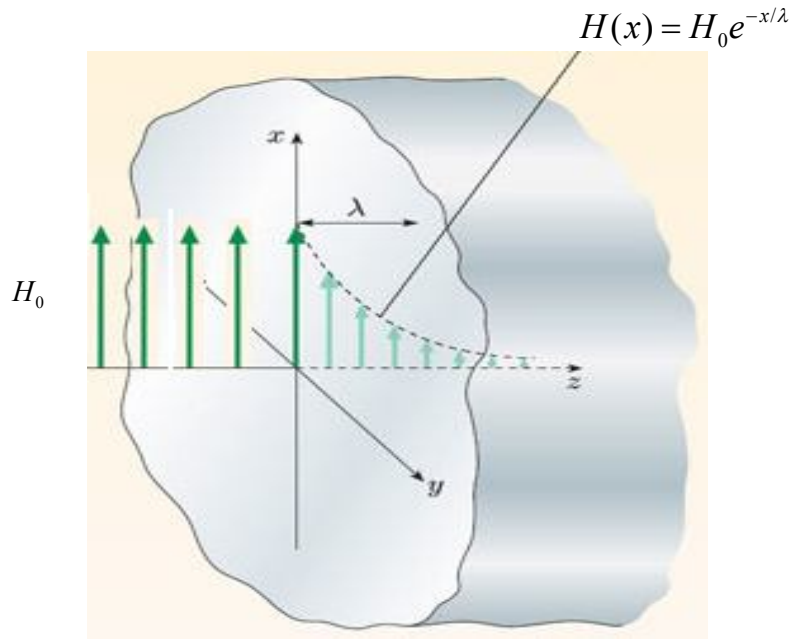
$$\frac{dJ_s}{dt} = \frac{n_s e^2}{m} E \quad (1.8)$$

bağıntıları elde edilir. Denge durumunda akım yoğunluğu J_s sabit olacağı için, değişim sıfıra eşit olacaktır. O halde; malzeme içindeki elektrik alan sıfır olmalıdır. Yani;

$$\frac{dJ_s}{dt} = 0 \Rightarrow E = 0 \quad (1.9)$$

$$\nabla \times \mathbf{J}_s = -\frac{1}{\lambda_L^2} \mathbf{H} \quad (1.10)$$

$$H(x) = H(0)e^{-x/\lambda} \quad (1.11)$$



Şekil 1.10 Süperiletkene uygulanan manyetik alanın nüfuz etme derinliği [24].

Burada H_0 ; uygulanan manyetik alanın tam yüzeydeki değeri, x ; numune yüzeyinden içe doğru uzaklık, λ ; nüfuz derinliğini ifade eder. Eşitlik 1.11’den anlaşılacağı gibi London girme (nüfuz) derinliği λ , manyetik alanın şiddetinin başlangıçtaki değerinin

$1/e$ 'sine düřtüğü deęerdir. Eřitlięin ifade ettięi dięer bir sonu; manyetik alanın malzemeye üstel olarak azalarak girmesidir.

Nüfuz derinlięi sıcaklık ile ;

$$\lambda_{(T)} = \lambda_{(0)} \sqrt{1 - \left[\frac{T}{T_c} \right]^4} ; \quad \lambda_{(0)} = \sqrt{\frac{m}{\mu_0 n e^2}} \quad (1.12)$$

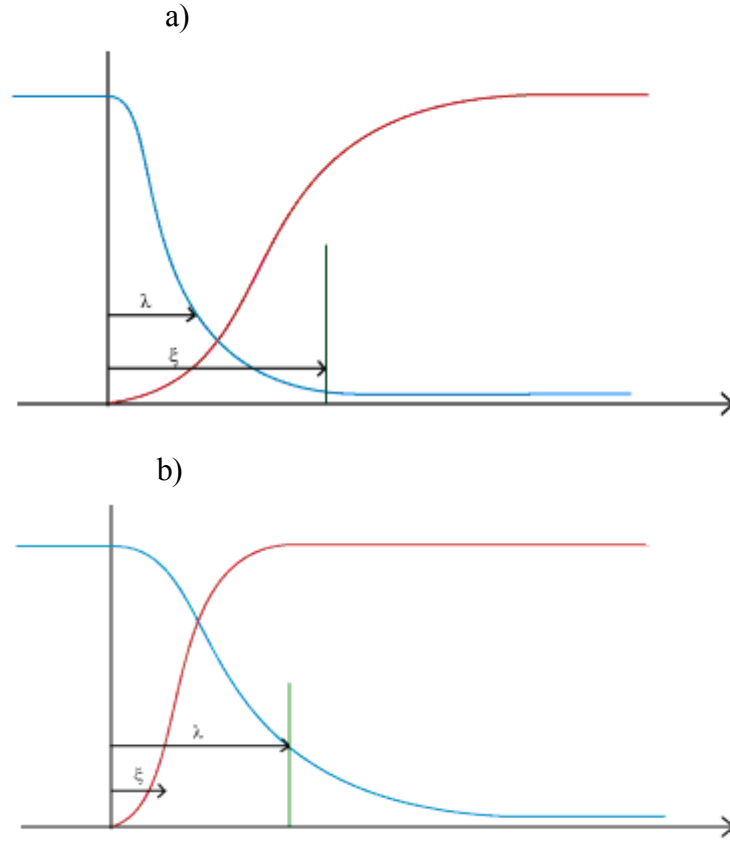
řeklinde deęiřir [1]. Nüfuz derinlięi, düřük sıcaklıklarda hemen hemen sıcaklıktan bağımsız olup sıcaklık T_c ' ye doęru yaklařtıķa sonsuza doęru ulařır. Bu; $T = T_c$ durumunda uygulanan manyetik alan malzemeye kayıpsız olarak girebileceęi anlamına gelir. Bu beklenen bir olgudur, ünkü malzeme $T \geq T_c$ durumunda normal hale geer.

1.3.2 Ginzburg-Landau Teorisi

Pippard, 1935 yılında London eřitliklerini deęiřtirerek “eř uyum uzunluęu” olarak adlandırdıęı bir uzunluktan bahsetti [25]. Buna göre; eř uyum uzunluęu, üzerinde süperiletkenlięin yaratılabildięi veya yok edilebildięi en küük boyut olarak tanımlandı. Daha sonra 1950 yılında Ginzburg ve Landau'nın ortaya koyduęu teoriye göre Ginzburg – Landau Parametresi

$$\kappa = \frac{\lambda}{\xi} \quad (1.13)$$

olarak ifade edildi.



Şekil 1.11 a) I. ve b) II. tip süperiletkenlerde λ nüfuz derinliği ve ξ eş uyum uzunluğunun değişimi [24].

κ değerinin birden büyük veya birden küçük olması malzemenin süperiletkenlik tipinin belirlenmesinde önemli rol oynamaktadır. Şekil 1.11’de görüldüğü gibi, normal durumdan süperiletken duruma geçiş aniden olmaz. Bu geçişte bir ara yüzey ortaya çıkar ve geçiş sırasında bu yüzeyde bir enerji oluşur. Yüzey enerjisinin pozitif ya da negatif olması süperiletkenliğin tipini belirler. Pozitif ise I. tip, negatif ise II. tip süperiletkendir.

1.3.3 BCS Teorisi ve Temel Kavramları

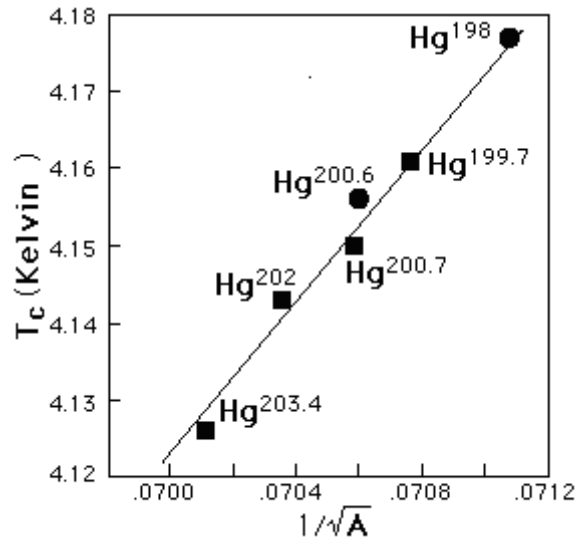
Barden, Cooper ve Schrieffer tarafından geliştirilen BCS teorisini izotop etkisi, yasak enerji aralığı, Cooper çiftleri gibi kavramları açısından özet olarak inceleyelim.

1.3.3.1 İzotop Etkisi

Kızılötesi spektroskopisindeki bilgiler, bir atomun titreşim frekansının, ağırlığının karekökü ile ters orantılı olduğunu göstermektedir. Buna dayanarak 1950 yılında Herbert Frohlich, süperiletkenlerde izotop etkisinin araştırılmasının, örgü titreşimlerinin süperiletkenliğe etkisini araştırmada kullanılabileceğini söylemiştir. Aynı yıl içerisinde Rutgers Üniversitesinden C. A. Reynolds, B. Serin, W. H. Wright ve Z. B. Nesbit tarafından cıvanın farklı izotoplarının süperiletkenlik geçiş sıcaklığına etkisi incelenmiştir. Sonuç olarak; Şekil 1.12’de de gösterildiği gibi geçiş sıcaklığının cıva atomunun ağırlığının artmasıyla azaldığı bulunmuştur. Buradaki değişimin ise spektroskopide olduğu gibi atomun ağırlığının karekökü ile ters orantılı olduğu görülmüştür. Bu matematiksel olarak;

$$\frac{T_c}{T_c'} = \left(\frac{M'}{M} \right)^\alpha \quad (1.14)$$

şekilde yazılabilir. Burada $\alpha=0$ olduğunda izotop etkisinin olmadığı görülmektedir [26].



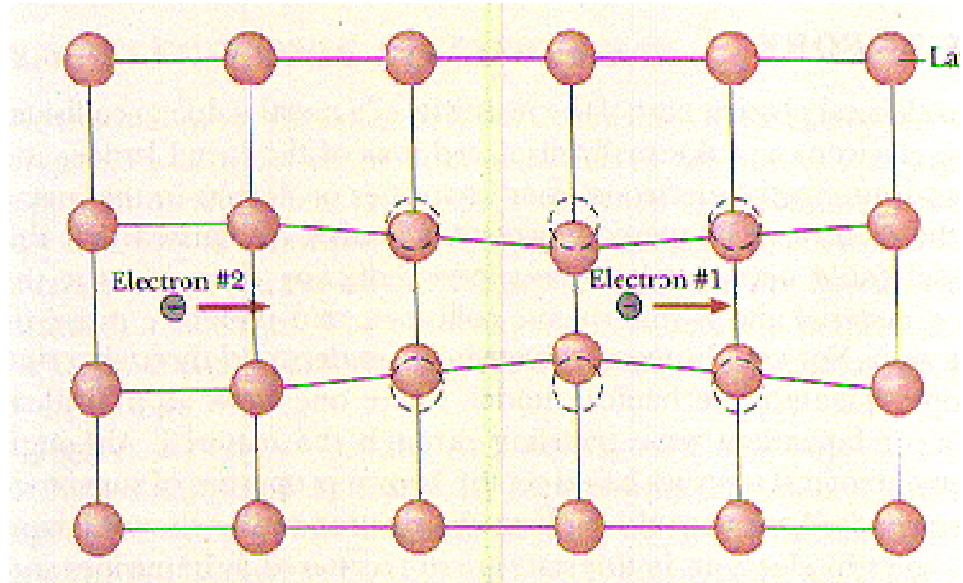
Şekil 1.12 Cıvanın farklı izotoplarının süperiletkenlik geçiş sıcaklığına etkisi [27].

- C. A. Reynolds, Phys Rev. 78,487 (1950)
- E. Maxwell, Phys Rev. 78,477 (1950)

Bu sonuçlar göstermiştir ki süperiletkenliğin mikroskopik teorisi, izotop etkisini açıklayabilmesi açısından, elektron-fonon etkileşmesini içermelidir. 1956 yılında Leon Cooper, çok zayıf elektron-fonon etkileşmesi altındaki iki iletkenlik elektronunun, “Cooper çiftleri” olarak adlandırılan kararlı çiftlenmiş durumu oluşturabileceğini göstermiştir. Bu gelişmeden sonra Cooper’a, Bardeen ve Schrieffer da katılmış ve bir yıl içerisinde teori son halini alarak “BCS teorisi” olarak adlandırılmıştır.

1.3.3.2 Cooper Çiftleri

BCS teorisi, katı içerisindeki elektronlar arasında, normalde aralarında olan elektrostatik itmeyi yenen çekici bir etkileşimi önermiştir. Bu etkileşme ile oluşan Şekil 1.13’ te gösterilen elektron çiftleri “Cooper çiftleri” olarak adlandırılmıştır.



Şekil 1.13 Cooper çiftlerinin örgü içerisindeki hareketi [28].

BCS teorisi, örgüdeki titreşen atomların nasıl olup da elektronların bağlı çiftler oluşturmasını sağladığını açıklar. Cooper çiftlerinin oluştuğu fonon mekanizmasında, fonon örgü boyunca hareket eden bir örgü titreşimidir. Metal örgünün atomları, dış

değerlik elektronları ayrılmış ve yer değiştirmiş oldukları için pozitif yüklüdür. Böylelikle, iletim işleminin bir parçası olurlar. Elektronlar pozitif yüklü atomların yanlarından geçtiklerinde, atomlar elektronlara doğru çekilirler. Dolayısıyla hızla hareket eden her iletim elektronunun çevresindeki örgüde hafif bir bozulma meydana gelir [28]. Bozulmaya uğrayan bu bölge, şimdi daha fazla pozitif yüklenmiştir. Diğer yandan bozulmaya uğramış bu atomların, komşu atomlarla aralarındaki etkileşim kuvveti değişmiştir. Bozulma bölgesi, örgü boyunca hareket eden iletim elektronunu takip eder. Bu şekilde oluşan daha pozitif olan bölge, uzaktaki bir elektron tarafından görülür ve çekici bir etkileşim başlar. Bu etkileşim sonucunda elektron uzaktaki örgüde bozulmaya sebep olan elektronun hareketini takip eder. Sonuç Cooper çifti olarak adlandırılan elektron çiftinin oluşmasıdır. Bir araştırmacı bu durumu “önde giden elektronun yarattığı örgü dalgasında, arkadan gelen elektron sörf yapmaktadır.” şeklinde yorumlamaktadır [29].

1.3.3.3 Yasak Enerji Aralığı

Bağlı elektron çiftlerinin yapıda bulunması örgü bant yapısını etkiler. Bir metalde en üst bant elektronlar tarafından kısmen doludur ve bu banttaki elektronun en yüksek enerjisine “Fermi enerjisi” denir. Örgüde bağlı Cooper çiftlerinin oluşu fermi seviyesinde küçük bir enerji aralığına sebep olur. Bu enerji aralığına “yasak enerji aralığı” denir. Bu aralığın enerjisi çiftleri, bir arada tutan enerjiye karşılık gelir.

Yasak enerji aralığının varlığı, kızılötesi ışığın ya da mikrodalga radyasyonunun kullanımı ile deneysel olarak ispatlanır. Dalga boyu monokromatör denilen cihazla ayarlanabilen kızılötesi ışık demeti, metal süperiletken fazda iken üzerine düşürülür. Yasak enerji aralığına karşı gelen dalga boyunda, metal yüzeyi üzerinden yansıyan ışığın bir kısmı soğurulur. Yansıyan ışığın miktarının ilk azalmaya başladığı dalga boyu, ‘yasak enerji aralığının değerini’ verir [26].

Ayrıca, enerji aralığı ve geçiş sıcaklığı arasındaki ilişki;

$$\frac{E_g}{k_B T_C} = 3,53 \quad (1.15)$$

şeklinde olup, boyutsuz bir büyüklüktür [30].

BCS teorisi; düşük sıcaklık süperiletken malzemelerin (I. tip) büyük bir kısmına başarıyla uygulanmış olmasına karşın, yüksek sıcaklık süperiletken malzemeler (II. tip) için geçerli değildir. *BCS* teorisinin başarılı olduğu yönleri şu şekilde sıralayabiliriz:

- Elektronlar arasındaki çekim etkileşmesi, taban durumu uyarılmış durumdan ayıran bir enerji aralığı oluşturur. Kritik alan, termal özellikler ve elektromanyetik özelliklerin çoğu enerji aralığının sonuçlarıdır.
- Eş uyum uzunluğu ve sızma derinliği *BCS* teorisinin doğal bir sonucudur. London denklemi uzayda çok yavaş değişen manyetik alanlar için elde edilirken, süperiletkenlerde ise Meissner olayı doğal yolla elde edilir.
- Bir süperiletken halkadan geçen akım kuantumlanmıştır ve etkin yük, $2e$ 'dir.

1.3 Yüksek Sıcaklık Oksit Süperiletkenlerinin Yapısal Özellikleri

BCS teorisinin öngörüsüne göre 30 K'in üstünde kritik geçiş sıcaklığına sahip süperiletkenler "Yüksek Sıcaklık Süperiletkenleri" olarak adlandırılmaktadır ve en iyi örnekleri 1986 yılında ortaya çıkmıştır. Yüksek J_C ve H_C değerlerine sahip olmaları nedeniyle teknolojik olarak yüksek kullanım potansiyeline sahiptirler. Ayrıca, uygulamalarda geleneksel süperiletkenlerin aksine, üretimi ucuz ve kolay olan sıvı azot sıcaklığında kullanılabilirler.

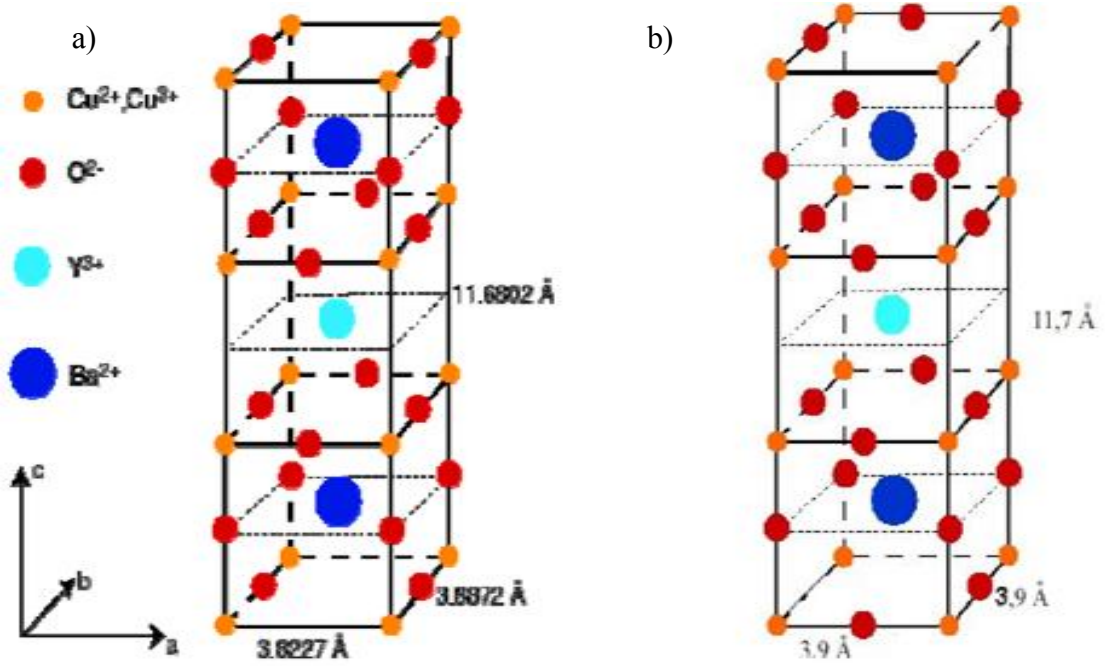
Şu ana kadar, La-Ba-Cu-O, Y-Ba-Cu-O, Bi-Sr-Ca-Cu-O, Tl-Ba-Ca-Cu-O ve Hg-Ba-Ca-Cu-O olmak üzere beş temel yüksek sıcaklık oksit süperiletkenleri keşfedildi ve çalışıldı [31].

Yeni yüksek T_C 'li malzemelerinin birçoğu bakır oksit bileşikleridir. Şu ana kadar ayrıntılı olarak incelenen değişik süperiletken bileşikler, “perovskit” olarak adlandırılan kristal yapı cinsinden sınıflandırılırlar. İlk sınıf $BaPb_{1-x}Bi_xO_3$ kübik perovskitlerdir ($a=b=c$). Bu malzeme ilk yüksek T_C 'li malzemelerden birisi olup, geçiş sıcaklığı 10 K'dir. $KNiF_4$ yapısı olarak bilinen ikinci sınıf ise, tetragonal yapıya sahip ($a=b \neq c$) tek tabakalı perovskitlerdir. Buna bir örnek T_C 'si yaklaşık olarak 38 K olan $La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_4$ 'tür. Üçüncü sınıf ise, ortorombik yapıya sahip ($a \neq b \neq c$), $YBa_2Cu_3O_7$ gibi ($T_c \approx 92$ K) çok tabakalı perovskitlerdir.

1.4.1 YBCO'nun Genel Özellikleri

YBCO, II. tip süperiletken sınıfına girer. Normal bölge ile süperiletken bölge arasındaki ara yüzey enerjisi negatiftir ve bundan dolayı eş uyum uzunluğu (ξ), nüfuz derinliğinden (λ) daha küçüktür. YBCO için $\lambda_{ab}=300$ Å, $\lambda_c=5000$ Å ve $\xi_{ab}=30$ Å ve $\xi_c=4$ Å olarak bulunmuştur [32]. Buna göre; tanecik sınırlarının zayıf bağlantılar gibi davranabilmeleri için boyutlarının yeterli büyüklükte olması gerekir. Bu da; yüksek sıcaklık seramik bulk (katı) süperiletkenlerde akım yoğunluğunun nispeten daha küçük olmasının nedenini açıklamaktadır.

1987 yılında Wu tarafından bulunan YBCO, 77 K sıvı azot sıcaklığını aşan ilk süperiletken malzemedir [33]. Saf ve tek fazlı olarak elde edilmesi kolay olup kristalografik açıdan da diğer süperiletkenlere kıyasla daha düzenlidir. Her bir YBCO birim hücresi; İtiryum atomlarının bir düzlemi ile ayrılmış ve iki BaO tabakası arasında kalmış iki CuO_2 düzlemi içerir. Cu-O tabakalarındaki oksijen dağılımına ve miktarına bağlı olacak şekilde, olası iki simetriye (tetragonal ya da ortorombik) sahiptir [34].



Şekil 1.14 YBCO'nun kristal yapısı: a) ortorombik b) tetragonal faz [33, 35].

Bakırın kristalografik olarak iki bağımsız pozisyonun varlığı (CuO_2 düzleminde $\text{Cu}(2)$ ve Cu-O zincirinde $\text{Cu}(1)$) bu ailenin en önemli özelliğidir. Y-Ba-Cu-O ailesinin tüm üyeleri birim hücrede CuO_2 düzlemine sahiptir ama tek ve çift Cu-O zincirlerinin bulunmasına göre farklılık gösterirler. $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ bir zincire sahiptir. $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ ise birim hücrede iki zincire sahiptir ve c yönü boyunca $\text{Y}_2\text{Ba}_4\text{Cu}_7\text{O}_{15}$ sırasıyla tek-zincir ve çift-zincir hücrelerine sahiptir.

$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}$, ortorombik fazdan (süperiletken faz) tetragonal faza (yarıiletken faz) geçerken zincirlerdeki oksijen kaybından çabuk etkilenir. Bu ortorombik-tetragonal geçişi, bir düzen-düzensizlik yapısal faz geçişidir ve oksijenin kısmi basıncına ve sıcaklığa bağlı olan y parametresi tarafından belirlenir. $y = 0$ ile tamamen oksijenlenmiş durum (ortorombik) $\text{O}(1)$ yerlerinde oksijen atomlarının düzenlenmesiyle meydana gelir. Böylelikle tek boyutlu Cu-O zinciri sekilenir y arttıkça, oksijen materyalden ve düzensiz olan $\text{O}(1)$ yerlerinden normalde boş olan $\text{O}(5)$ yerlerine gider. Ortorombik-tetragonal faz geçişi oksijen difüzyon kinetiği tarafından kontrol edilen evrimsel bir işlemdir. Oksijen boşluklarının düzenlenmesi sonucu oluşan zincirler sadece ortorombik fazda görülür. Oksijen konsantrasyonunun

çeşitliliği materyali üretme işlemi boyunca ısıtma ve soğutma şartlarına bağlıdır. Tek zincir $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}$ oksijen kaybına bağlı olarak ($0 < y < 0,6$) 94 K'den 0 K'e kadar değişen süperiletkenlik geçiş sıcaklığına sahiptir. $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}$ 'nin normal ve süperiletken durumun her ikisinin de özelliği, oksijen konsantrasyonuna ve ortorombik fazda oksijen düzenlemesinin derecesine oldukça güçlü bir şekilde bağlıdır.

Süperiletken $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}$ faz ortamdaki gazın tipine (hava, oksijen vs) ve oksijen basıncının değerine bağlı olarak 600 °C den 750 °C aralığındaki sıcaklıklarda ısıtma süresince ortorombik-tetragonal faz geçişi gösterir.

Çift zincir $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ süperiletkenlerinin kritik sıcaklığı (yaklaşık 80 K) oksijen kaybından çok etkilenmez. $\text{Y}_2\text{Ba}_4\text{Cu}_7\text{O}_{15}$ bileşiği de yüksek bir geçiş sıcaklığına bağlıdır (92 K – 94 K) ve $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ deki gibi süperiletkenin zincir bölümünde oksijen kaybolması yüzünden olabilecek oksijen değişimine aşırı duyarlıdır.

YBCO; diğer seramik süperiletkenlerle kıyaslandığında sayısız avantajlara sahiptir. 77K'den büyük kritik sıcaklığa sahip bilinen kararlı dört elementli tek bileşiktir. Kararsız bileşikler içermez. Tek-fazlı YBCO hazırlamak nispeten daha kolaydır. HTS malzemelere oranla daha düşük anizotropiye sahiptirler ve daha güçlü manyetik alanlarda daha yüksek akım yoğunlukları taşıyabilirler.

2. MATERYAL VE YÖNTEM

2.1 Giriş

Yüksek sıcaklık süperiletkenleri farklı üretim teknikleri kullanılarak üretilmektedirler. En sık kullanılan yöntemler, katıhal tepkime yöntemi, eritme döküm yöntemi ve sol-jel (nitrat), ince film yöntemi olarak sayılabilir.

2.1.1 Katıhal Tepkime Yöntemi

Katı-hal yöntemi, kolaylığı ve ucuzluğu bakımından süperiletkenlik araştırma grupları tarafından en yaygın olarak kullanılanıdır. Bu yöntemde oksit, karbonat gibi başlangıç maddeleri ile uygun oranlarda karıştırılır ve homojen bir karışım elde etmek için havanda öğütülür. Öğütme işleminden sonra malzeme üzerindeki ilk ısıtıl işlem olan kalsinasyon aşamasına geçilir. Bu işlemin amacı, oksit ve karbonatların sıcaklıkla ayrışmasını sağlamaktır. Bu karışım öğütülüp birkaç ton/cm²'lik basınç altında preslenerek tabletler haline getirilir. Son aşama ise istenen fazı elde etmek için, erime sıcaklığının hemen altındaki sıcaklıklarda belirli süre bekletmektir.

Katı-hal tepkime yönteminde ara öğütme [36], optimum tavlama süresi ve sıcaklığı [37] ile yavaş soğutma oranları çok önemlidir [38]. Tabletlerin sinterlenmesinden sonra numune içinde meydana gelebilecek iç zorlanma ve gerilmelerden kaçınmak için fırın yavaş soğutulmalıdır. Dikkat edilmesi gereken başka bir nokta sinterleme/tavlama yapılan kabın doğru seçimidir [39]. Çünkü yüksek sıcaklıklarda yapılan ısıt işlemlerde potadan üretilen numuneye difüzyon olabilir.

2.1.2. Eritme Döküm Yöntemi

Bu yöntemde katı-hal yöntemindeki gibi başlangıç tozları belli oranlarda tartılıp öğütülür. Öğütülen tozlar kalsinasyon işlemine tabi tutulur [40]. Bu işlem sonunda sıcaklığı ayarlanabilir bir fırına erime noktası yüksek pota içerisinde konulan başlangıç tozları oda sıcaklığından itibaren malzemenin eriyebileceği yüksek bir sıcaklığa (1050–1250 °C) çıkartılır ve belirli bir süre bekletilir. Bu eriyik, çok kısa bir sürede soğuk bir plakaya dökülür ve ikinci bir plaka ile de hızlıca üzerine bastırılır. Böylece çok ince tabakalar şeklinde elde edilen malzeme cam özelliği kazanmış olur.

Bu ince cam tabakalar öğütülerek toz haline getirilir, sonra bu tozlar preslenerek istenilen büyüklükte tablet haline dönüştürülür ve ihtiyaç duyulan süre ve sıcaklıkta sinterlenerek süperiletken malzeme elde edilmiş olur.

Bu yöntem yapı içerisindeki gözenekleri azaltarak yüksek yoğunlukta homojen numunelerin hazırlanmasına imkân sağlamaktır. Böylece parçacıklar arası bağlantılar artmakta ve var olanlar kuvvetlenmektedir. Bunun sonucunda da numunelerin elektriksel, yapısal ve mekanik özellikleri iyileşmektedir

2.1.3. Nitrat Yöntemi

Bu yöntemde, hazırlanmak istenilen malzeme miktarı kadar amonyum nitrat malzeme ile karıştırılır. Bu karışım bir beher içerisine konarak yaklaşık 180–200 °C arasındaki bir sıcaklıkta karıştırılarak sıvı hale gelmesi sağlanır. 450 °C'ye kadar ısıtıldıktan sonra ekzotermik bir reaksiyon gözlenip, sıvı halden katı hale dönüşüm gerçekleşir [41].

Bu sırada CO₂, NO₂, N₂O vb. gibi gazlar ve su buharı uzaklaştırıldıktan sonra siyah renkli bir çökelti oluşur. Oluşan bu çökelti öğütülerek toz haline getirilir ve 6 saat

kadar kalsine edilir. Kalsine edilen tozlar öğütüldükten sonra preslenir ve sonrasında yüksek sıcaklıklarda ısıtma işlemlere tabi tutularak süperiletken yapı elde edilir.

2.2 Deneysel Çalışmalar

Bu çalışmada, $\text{YBa}_{2-x}\text{Cs}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ stokiometresine uyacak şekilde farklı oranlarda yapılan Cs katkısının, süperiletkende meydana gelebilecek fiziksel, elektriksel ve manyetik özelliklerine etkisinin araştırılması amaçlanmıştır.

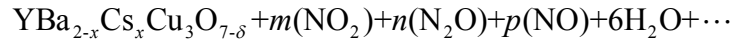
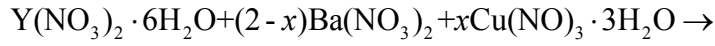
2.2.1 $\text{YBa}_{2-x}\text{Cs}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ Bileşiğinin Hazırlanması

$\text{YBa}_{2-x}\text{Cs}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ bileşiği hazırlamak için kullanılan bileşiklerin saflık dereceleri ve molekül ağırlıkları aşağıdaki çizelgede verilmiştir.

Çizelge 2.1 $\text{YBa}_{2-x}\text{Cs}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ bileşiğini hazırlamak için kullanılan bileşiklerin saflık dereceleri ve molekül ağırlıkları.

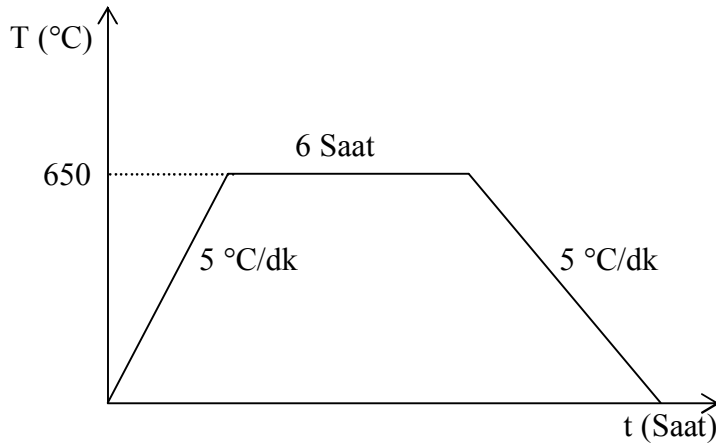
Element		Saflık (%)	Molekül ağırlığı (gr)
Simge	İsim		
$\text{Y}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$	İtriyum Nitrat	99,9	383,01
$\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$	Baryum Nitrat	99,99	261,35
$\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$	Bakır Nitrat	99,9	241,6
$\text{Cs}(\text{NO}_3)$	Sezyum Nitrat	99,9	194,9

$\text{YBa}_{2-x}\text{Cs}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ bileşiği, Çizelge 2,1'deki kimyasal bileşikler kullanılarak; $x = 0,075; 0,15; 0,25$ ve $0,35$ değerleri için



bağıntısına göre 10 gramlık karışımlar halinde hazırlandı.

Bu kimyasal bileşikler, 1/10000 gr hassasiyete sahip Precisa XB 220A model hassas bir terzi ile tartılarak bir beher içerisine ısıtıldı. Bir çeker ocak içerisinde yapılan ısıtma işlemi boyunca başlangıç malzemesi, baget yardımıyla karıştırılarak NO, N₂O gibi zehirli gazların kontrollü bir şekilde ortamdan uzaklaştırılması sağlandı. Sıcaklığın artmasıyla karışım önce mavi-yeşil renginde eriyik haline, sonra da koyu gri renkte katı hale dönüştü. Sıcaklık 500 °C'ye kadar çıkartıldı ve sonuçta tamamen siyah renkli çökelti oluştuğu gözlemlendi.



Şekil 2.1 Kalsinasyon süreci.

Azotlu bileşiklerin malzeme içerisinde kalma olasılığına karşı, karışım seramik potaya konularak fırında Şekil 2.1'de gösterildiği gibi 650 °C'ye kadar ısıtıldı. Malzeme bu sıcaklıkta 6 saat bekletildikten sonra fırın oda sıcaklığına soğutulularak fırından çıkartıldı. Agat havanda yaklaşık 2 saat öğütülen bu malzeme 4,5 ton/cm² basınç altında tabletler haline getirildi. Presleme işleminde kullanılan kalıp, Şekil 2.2'de ve TUMAS marka hidrolik pres, Şekil 2.3'te görülmektedir.



Şekil 2.2 13 mm çaplı pres kalıbı.



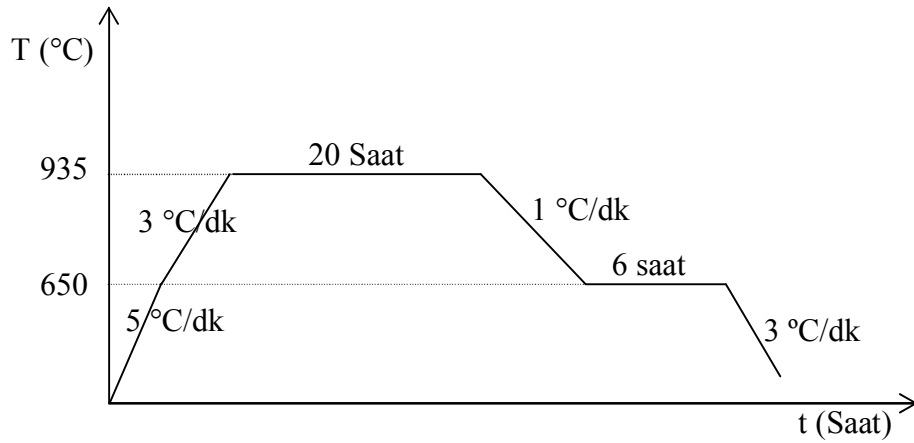
Şekil 2.3 TÜMAS marka hidrolik pres

Tablet halindeki başlangıç karışımı, sinterleme işlemi için oda sıcaklığında tutulan ve Şekil 2.4'te gösterilen Protherm marka silindirik fırın konuldu.



Şekil 2.4 Protherm marka silindirik fırın

Fırın sıcaklığı önce 5 °C/dk hızla 650 °C'ye, daha sonra 3 °C/dk hızla 935 °C'ye kadar ısıtıldı. Numuneler bu sıcaklıkta, oksijen atmosferinde 20 saat bekletildikten sonra fırın sıcaklığı 1 °C/dk hızla 650 °C'ye düşürüldü ve bu sıcaklıkta 6 saat oksijen atmosferinde bekletildi. Ardından dakikada 3 °C hızla oda sıcaklığına kadar soğutulan numuneler fırından çıkartıldı. Sinterlenen bu numunelerin siyah renkte oldukları gözlemlendi. Şekil 2.5'de görülen bu ısıtma işlem süreci, tüm numuneler için ayrı ayrı tekrarlandı.



Şekil 2.5 Sinterleme süreci.

2.2.2 Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM) Çalışmaları

Taramalı elektron mikroskobu ile görüntü elde edilmesi, yüksek voltaj ile hızlandırılmış elektronların numune üzerine çarptırılıp, yansıyan ışınların detektör tarafından algılanması prensibine dayanır. Yansıyan ışınlar ve buna bağlı olarak ortaya çıkan x ışınları kullanılarak; numunelerin yüzey yapıları, içerdikleri fazlar ve taneciklerin yapı içerisindeki dağılımları hakkında bilgi edinilebilir.

SEM görüntüleri, Kırıkkale Üniversitesi'nde bulunan ve Şekil 2.6'da görülen JSM5600 marka taramalı elektron mikroskobu kullanılarak 20 kV çalışma voltajında, 1000 ve 5000 kat büyütme ile elde edildi.



Şekil 2.6 JSM5600 marka 30 kV'luk Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM).

2.2.3 X-Işını Toz Kırınım Çalışmaları

X-ışını toz kırınım desenlerinden yararlanılarak malzemenin kristal yapısı, örgü tipi, örgü parametreleri gibi bilgiler edinilebilir.

Üretilen numunelerin x-ışını kırınım desenleri, Bolu İzzet Baysal Üniveristesi'nde bulunan Rigaku Multiflex marka difraktometre ile CuK_α ışını kullanılarak, $0,02^\circ$ adımlarla ve $2\theta = 5 - 70^\circ$ aralığında yapıldı.

X-ışını kırınım deseninden faydalanılarak

$$d(h,k,l) = \frac{1}{\sqrt{\left(\frac{h}{a}\right)^2 + \left(\frac{k}{b}\right)^2 + \left(\frac{l}{c}\right)^2}} \quad (2.1)$$

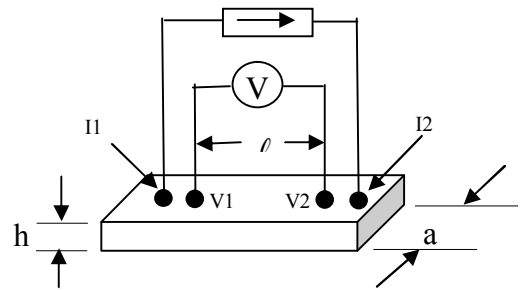
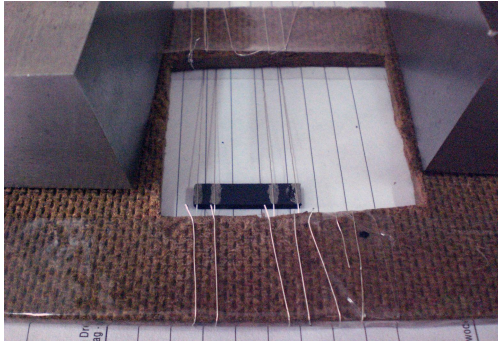
bağıntısından numunelerinin örgü parametreleri hesaplandı.

2.2.4 Elektriksel Özdirenç Ölçümleri

Üretilen numunelerin özdirenç ölçümleri için standart dört nokta yöntemini kullanıldı. Numunelere, Şekil 2.7'de gösterildiği gibi ultrasonik lehim makinesi kullanılarak bakır tellerle indium lehim kontaklar yapıldı. Ölçüm hatalarını en aza indirebilmek için kontakların aynı hat üzerinde yer almalarına ve kontaklar arası mesafelerin eşit olmasına dikkat edildi. Daha sonra numunelerin özdirençleri sıcaklığı bağlı olarak

$$\rho = \frac{V}{I} \cdot \frac{A}{\ell} \quad (2.2)$$

bağıntısı ile hesaplandı. Burada A, numunenin kesit alanı; ℓ , iç kontaklar arası mesafe; I, numuneye uygulanan akım ve V, iç kontaklardan ölçülen gerilimdir.



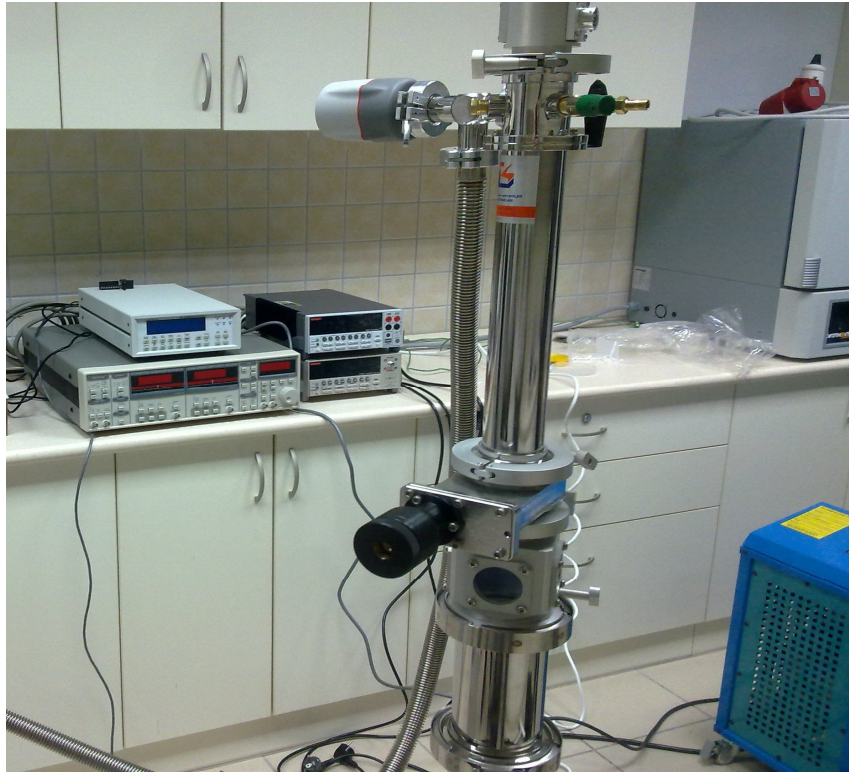
Şekil 2.7 Standart dört nokta yöntemine göre (a) numunelere yapılan kontaklar ve (b) parametrelerin şematik gösterimi [42].

Elektriksel  zdiren   l  mleri, Őekil 2.8’de g sterilen ve Kırıkkale  niversitesinde bulunan Cryogenic Liquid Helium Cryostat ile 10 - 300 K arasında  l  m yapabilen kapalı devre sistem ile ger ekleŐtirildi. Bu  l  mlerle numunelerin s periletkenlik kritik ge iŐ sıcaklıđı ve normal b lge  zdirenci gibi parametreleri belirlendi.

2.2.5 Manyetik Alınganlık  l  mleri

S periletkenlerin kritik akım karakteristikleri ve akı dinamiđinin anlaŐılmasında manyetik alınganlık  l  mleri  nemli bir rol oynamaktadır.

Cs katkısı ile hazırlanan numunelerin 80-100 K aralıđında manyetik alınganlıklarının ger el (real) ve sanal (imajiner) kısımları; farklı frekanslar ve farklı alanlarda  l  ld . Manyetik alınganlık  l  mleri, Kırıkkale  niversitesinde Őekil 2.8’de g sterilen Cryogenic Liquid Helium Cryostat ile ger ekleŐtirildi.



Őekil 2.8 Elektriksel  zdiren  ve manyetik alınganlık  l  mlerinin yapıldıđı sıvı helyum kriyostat.

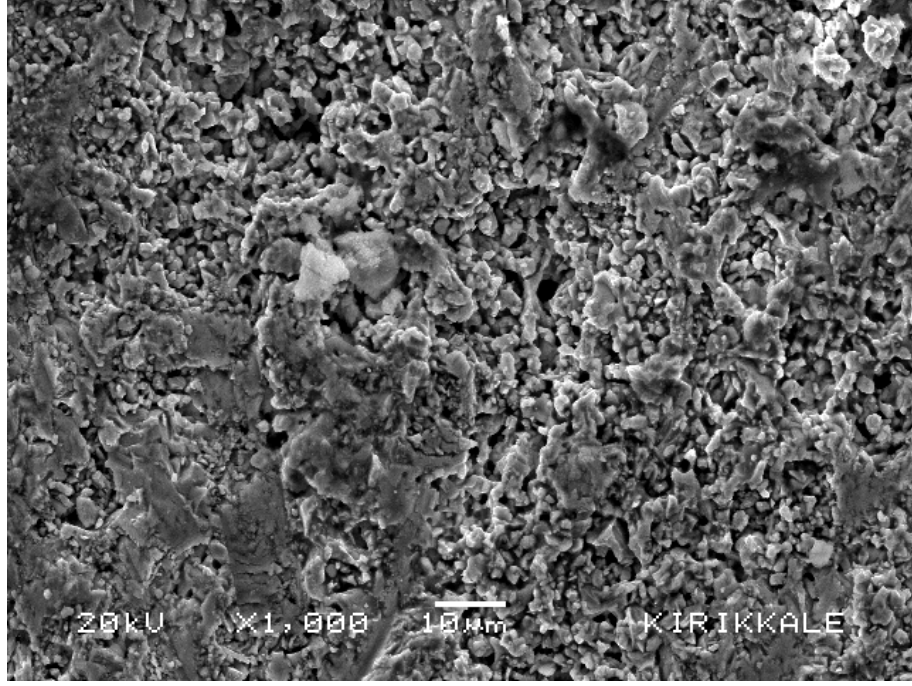
3. ARAŞTIRMA BULGULARI VE TARTIŞMA

3.1. Giriş

Bu çalışmada, nitratlı bileşikler kullanılarak hazırlanan Cs katkılı $\text{YBa}_{2-x}\text{Cs}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ($x = 0,075; 0,15; 0,25; 0,35$) süperiletken bileşiğin, SEM analizleri, XRD ölçümleri, elektriksel özdirenç ölçümleri ve manyetik alınganlık ölçümleri yardımıyla, katkı miktarı değişiminin numunenin yapısal, elektriksel ve manyetik özelliklerine etkisi incelendi.

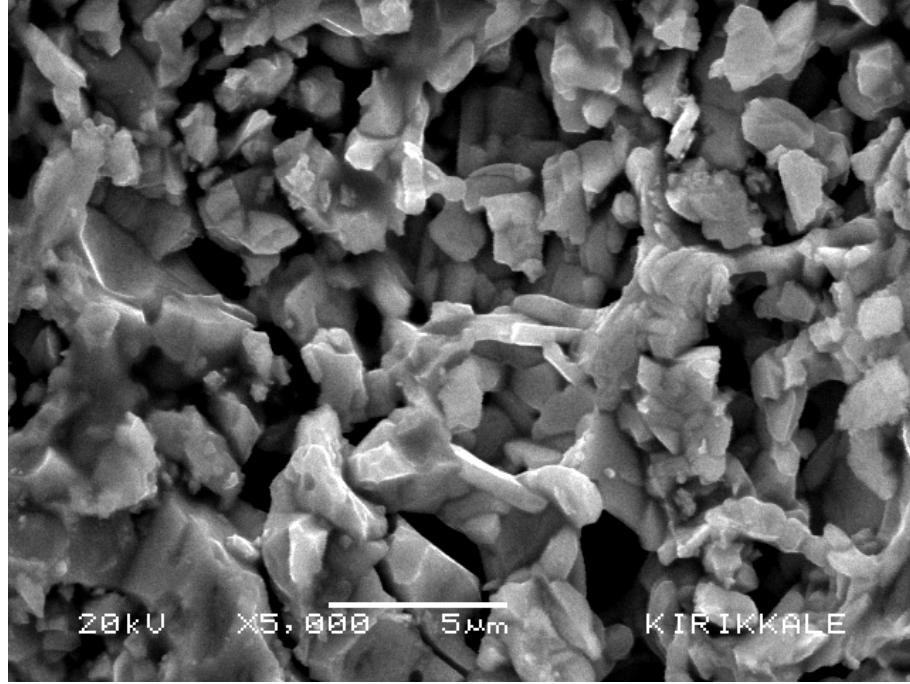
3.2. SEM Ölçümleri

Katkısız $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ bileşiği, nitratlı bileşikler kullanılarak ve oksijen ortamında 935 °C’de 20 saat sinterlenerek elde edildi. Bu numunenin 1000 kat büyütme ile çekilmiş SEM görüntüsü Şekil 3.1’de görüldüğü gibi literatürde rastlanan türde, çok küçük taneli bir yapıdadır.



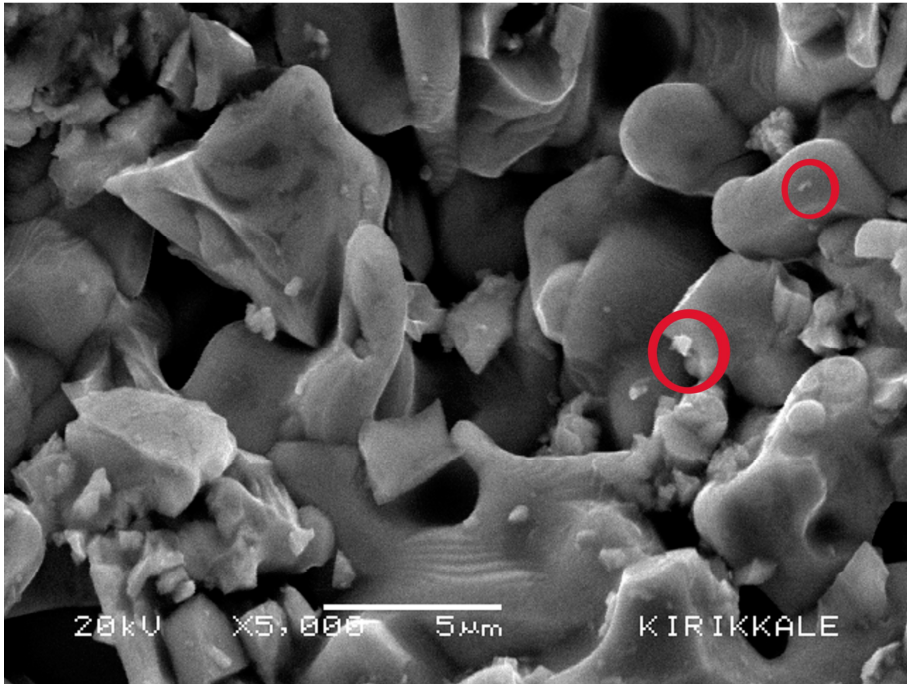
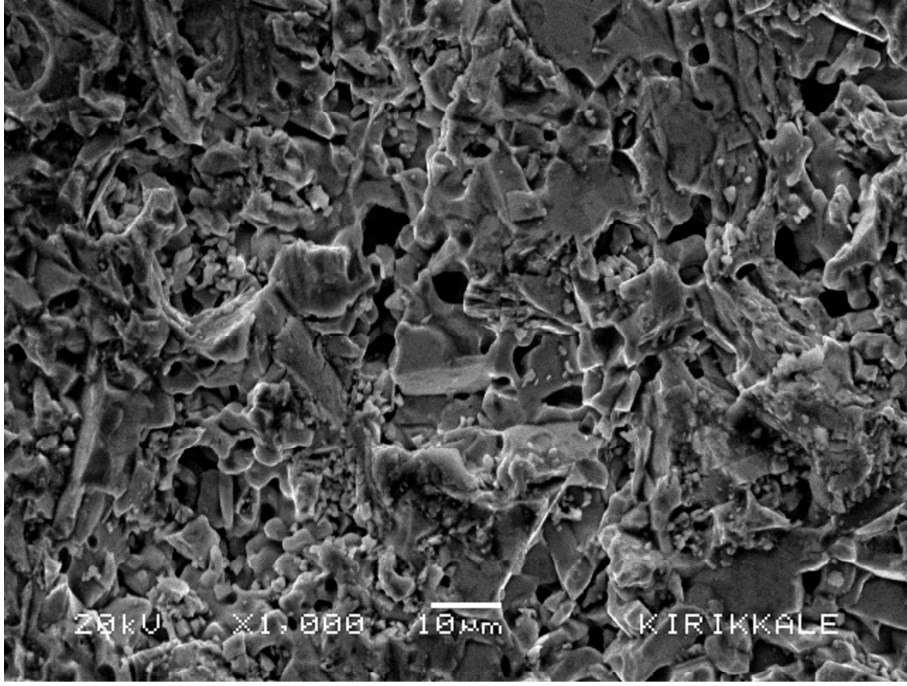
Şekil 3.1 Katkısız YBa₂Cu₃O_{7-δ} süperiletken numunesinin 1000 kez büyütme ile elde edilen SEM görüntüsü.

Şekil 3.2 de ise aynı numunenin 5000 kez büyütme ile çekilmiş SEM fotoğrafı görülmektedir. Görüntü incelendiğinde taneler arasındaki nispeten büyük olan boşluklar dikkati çekmektedir. Bu boşlukların, numune üretim tekniğinden kaynaklandığı tahmin edilmektedir. Zira, eritme döküm yöntemine göre üretilen numunelerde tanelerin iğnemsî yapıda ve aralarındaki temasın da nispeten çok daha iyi olduğu bilinmektedir [43]. Ortalama tane boyutlarının yaklaşık olarak 2 - 3 mikrometre (μm) mertebesinde olduğu görülmektedir.



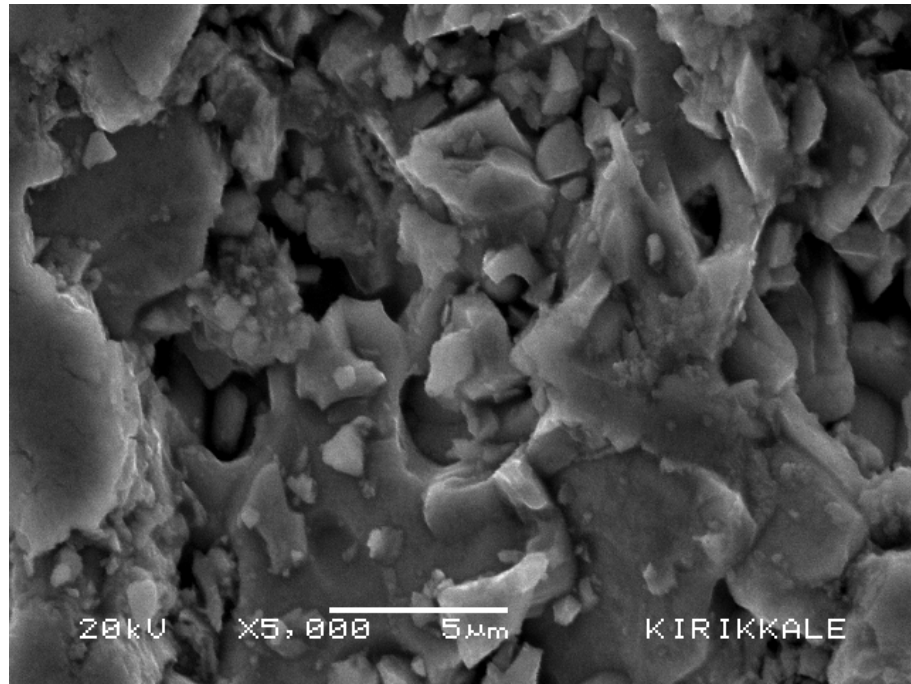
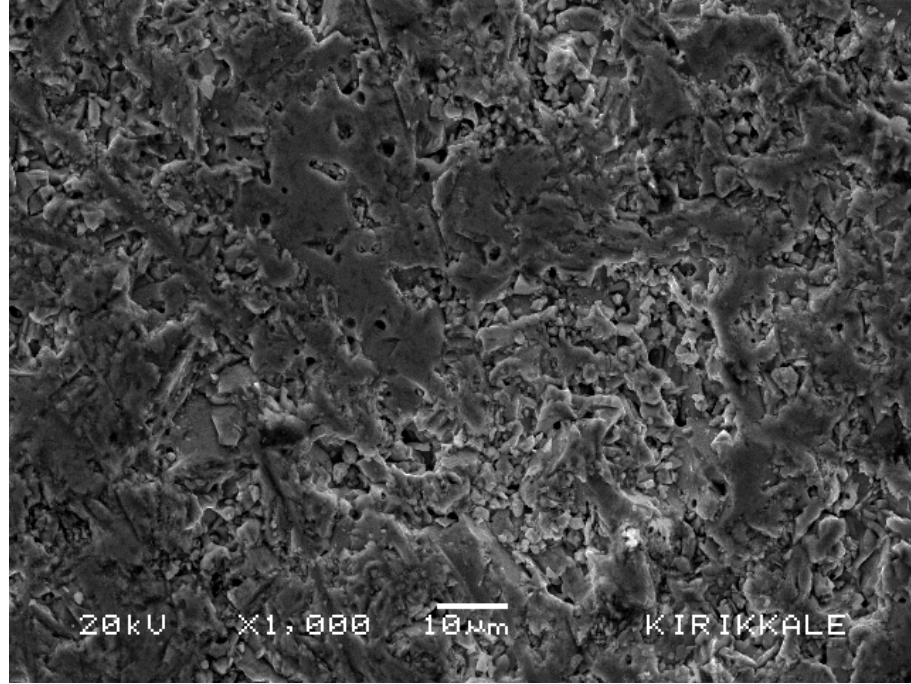
Şekil 3.2 Katkısız $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ süperiletken numunesinin 5000 kez büyütme ile elde edilen SEM görüntüsü.

Şekil 3.3’de ise baryum yerine bir miktar ($x=0,075$) sezyum katılmasıyla elde edilen $\text{YBa}_{1,925}\text{Cs}_{0,075}\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ bileşiğinin 1000 ve 5000 kez büyütülmüş SEM fotoğrafları görülmektedir. Özellikle 5000 kez büyütme ile elde edilmiş SEM görüntüsü incelendiğinde az miktarda dahi olsa sezyum katılması ile ortalama tane büyüklüğünün arttığı ve birkaç mikrondan 15-20 mikronluk tane boyutuna kadar değişen taneler görülmektedir[44,45]. Şekil 3,13’te renkli yuvarlaklar içinde gösterilen iri tanelerin üzerindeki küçük kırıntılar, numune yüzeyinin iyi parlatılmamış olmasından kaynaklanmaktadır.



Şekil 3.3 Sezyum katkı miktarı $x = 0,075$ için $\text{YBa}_{1.925}\text{Cs}_{0.075}\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ bileşiğinin 1000 ve 5000 kez büyütme ile elde edilen SEM görüntüleri.

Şekil 3.4’de sezyum katkı miktarı $x = 0,15$ için üretilen $\text{YBa}_{1,85}\text{Cs}_{0,15}\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ bileşiğinin 1000 kez büyütme (üstte) ve 5000 kez büyütme ile (altta) elde edilen görüntüleri yer almaktadır.



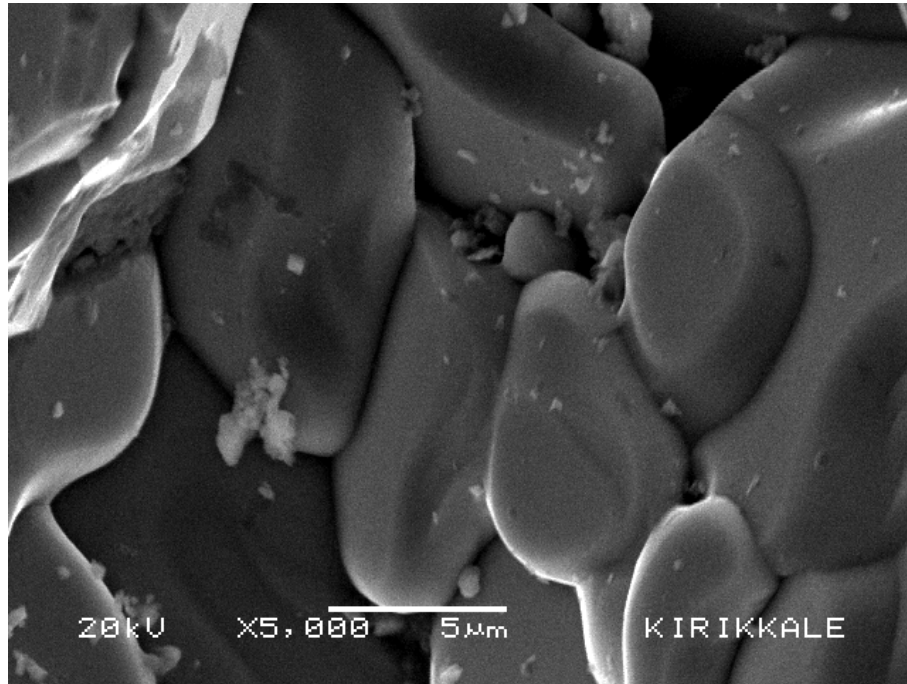
Şekil 3.4 Sezyum katkı miktarı $x = 0,15$ için $\text{YBa}_{1,85}\text{Cs}_{0,15}\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ bileşiğinin 1000

ve 5000 kez büyütme ile elde edilen görüntüleri.

1000 kat büyütme ile elde edilen görüntü incelendiğinde yüzeyde yer yer erimeye bağlı bölgeler dikkat çekmektedir. 5000 kat büyütme ile elde edilen görüntü incelendiğinde ise tane büyüklüğünün artması yanı sıra taneler arası mesafenin de azaldığı anlaşılmaktadır.

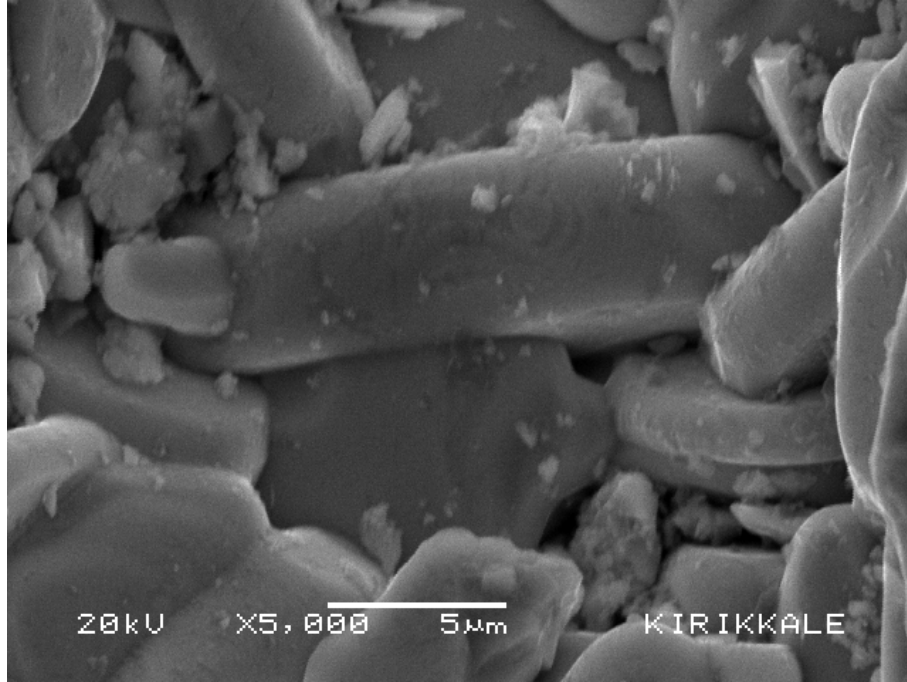
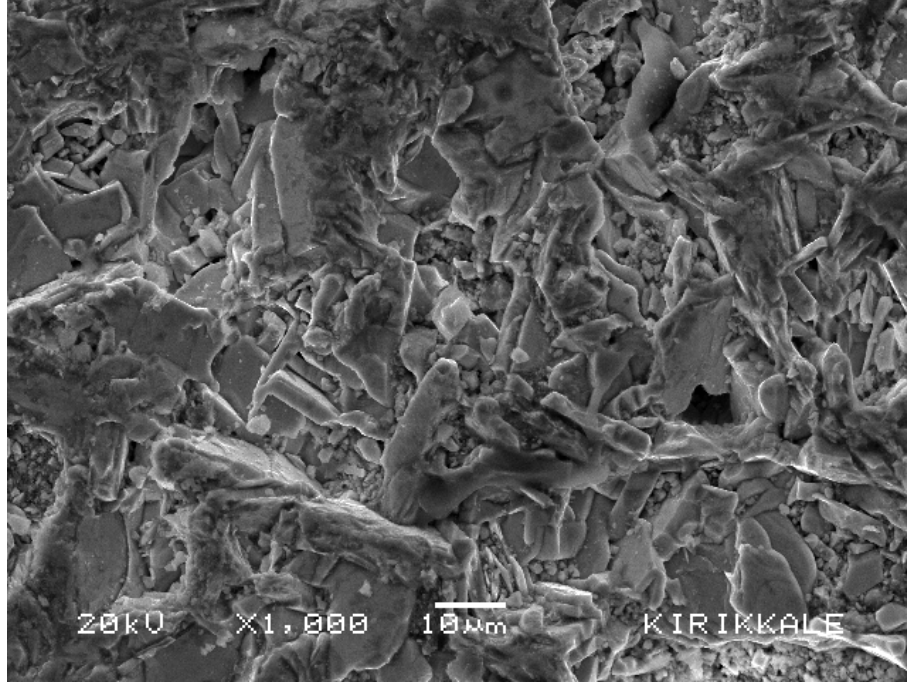
Sezyum katkısının $x = 0,25$ olduğu YBCO numuneye ait SEM fotoğrafı Şekil 3.5’de görülmektedir. Katkisız numune ile karşılaştırıldığında fark, çok belirgin bir şekilde hissedilmektedir. Çok gözenekli ve ortalama birkaç mikronluk tanelerin olduğu yapıdan oldukça iri taneli ve taneler arası boşlukların çok büyük oranda azaldığı bir yapıya dönüşüm gerçekleşmiştir.

Benzer durum Şekil 3.6’da SEM resimleri gözüken $x = 0,35$ değerinde sezyum katılan $\text{YBa}_{1,65}\text{Cs}_{0,35}\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ numunesinde de görülmektedir. Sezyum katkı miktarının artmasıyla tane büyüklüğünün hızlı bir şekilde arttığı anlaşılmaktadır[46,47].



Şekil 3.5 $\text{YBa}_{1,75}\text{Cs}_{0,25}\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ bileşiğinin 5000 kez büyütme ile elde edilen SEM

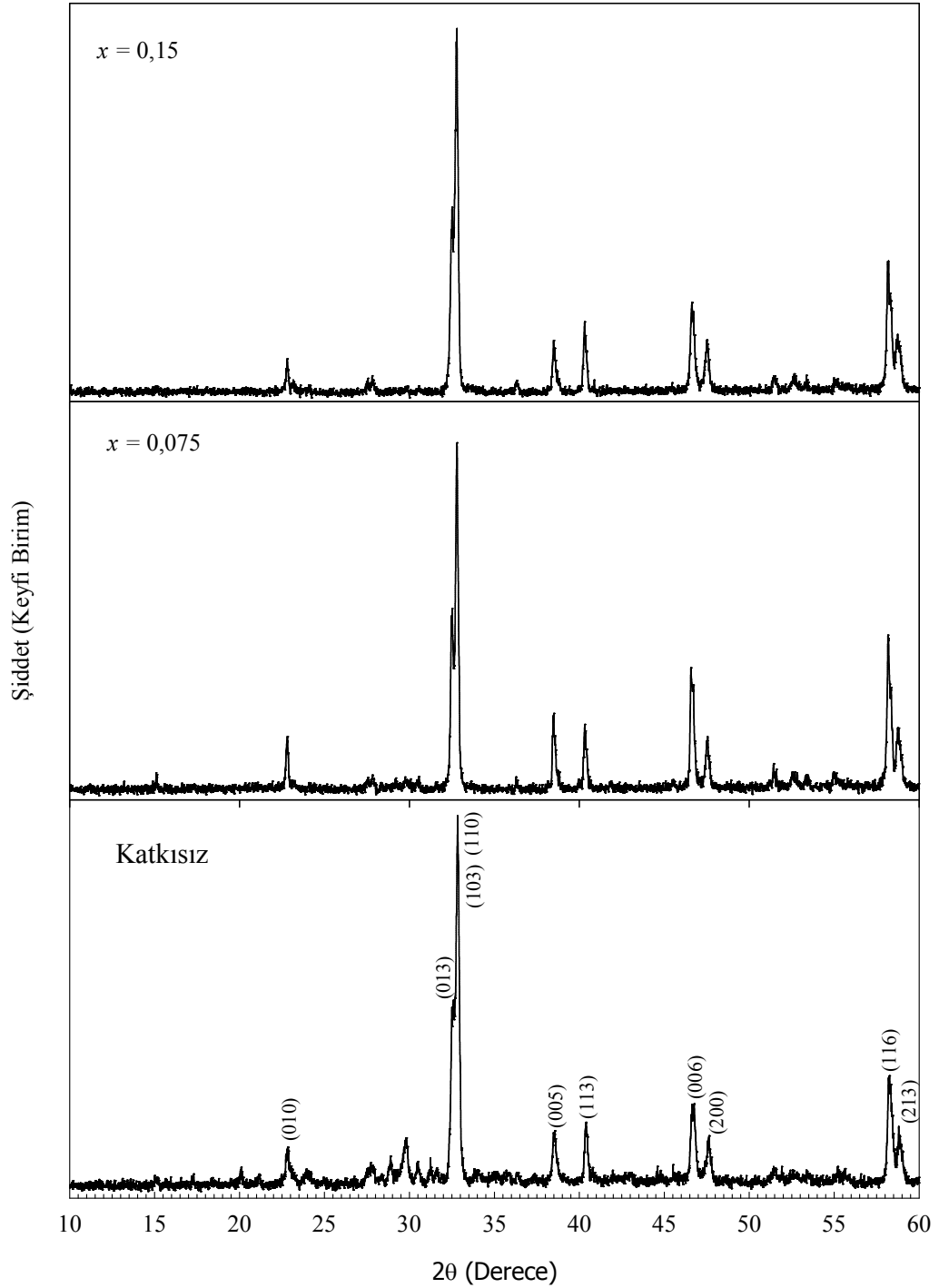
fotoğrafi.



Şekil 3.6 Sezyum katkı miktarı $x = 0,35$ için $\text{YBa}_{1.65}\text{Cs}_{0.35}\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ bileşiğinin 1000 kez ve 5000 kez büyütme ile elde edilen SEM görüntüleri.

3.3. XRD Ölçümleri

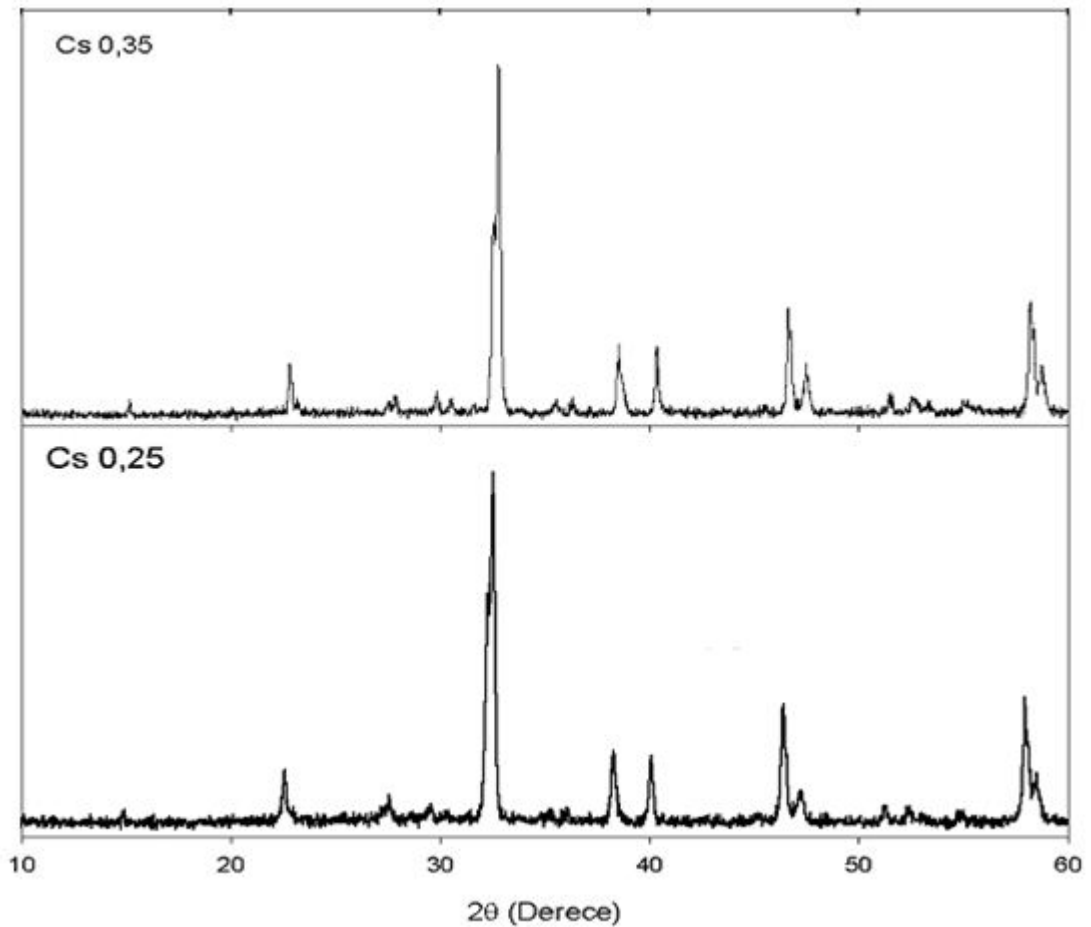
Şekil 3.7 ve Şekil 3.8’de 935 °de oksijen ortamında 20 saat sinterlenerek üretilen, farklı oranlarda sezyum katkılı ve katkısız YBCO süperiletken bileşiklerin $2\theta = 10 - 60^\circ$ arasında elde edilen x-ışını kırınım desenleri görülmektedir.



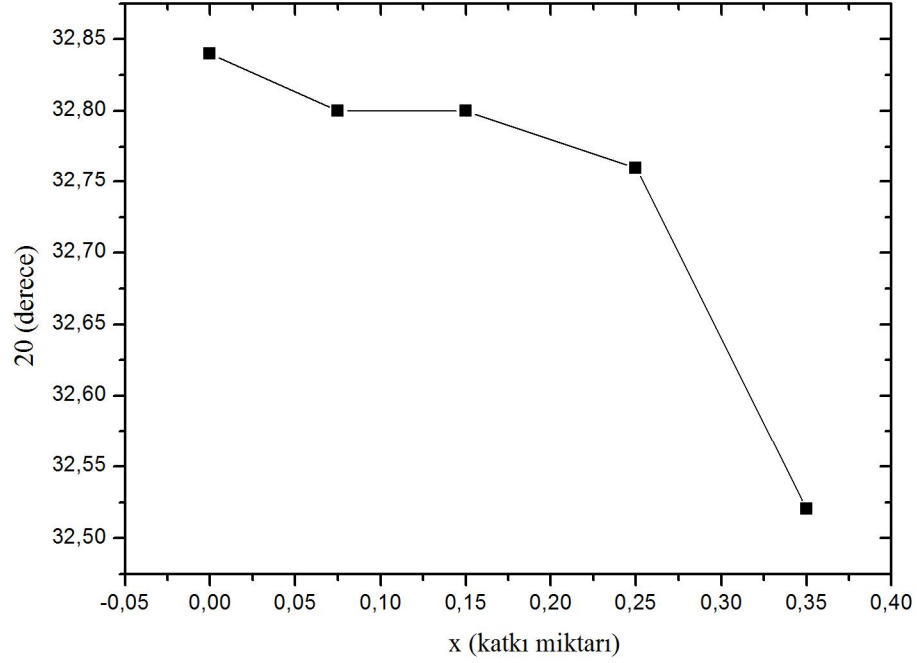
Şekil 3.7 Katkısız ve sezyum katkılı ($x = 0,075$ ve $x = 0,15$) $\text{YBa}_{2-x}\text{Cs}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$

Katkısız YBCO süperiletken numunesinin yaklaşık 30° değeri civarlarında gözlenen nispeten küçük pikler, ortorombik faza ait karakteristik piklere ait olmayıp muhtemelen üretim aşamasında ortaya çıkmış olan safsızlıklardan kaynaklanmaktadır. Bunlar, başlangıçta kullanılan bileşiklerin ikili veya üçlü fazları olabilirler ve şiddetleri, katkı değerinin artmasıyla gittikçe azalmaktadır. YBCO'nun ortorombik fazında, bilindiği gibi (110) pikinin şiddeti daima (013) pikinkinden büyüktür [48,49]. Üretilen numunelerin süperiletken fazda oldukları, bu desenlerin incelenmesi ile dahi anlaşılabilir. Ayrıca Şekil 3.9'da, (110) pikinin gözlemlendiği değerin katkı miktarının artmasıyla azaldığı gözlenmektedir.

Şekil 3.8'de, sezyumun $x = 0,25$ ve $x = 0,35$ değerleri için alınan x-ışını kırınım desenleri görülmektedir. Kırınım desenleri arasında dikkate değer bir farklılık gözlemlenmemektedir.



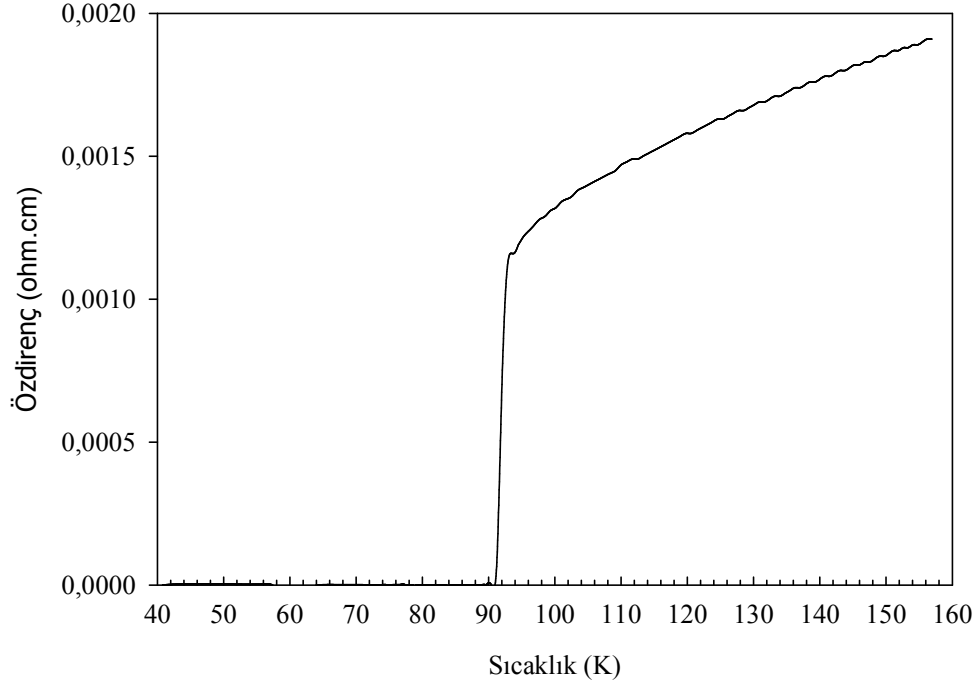
Şekil 3.8 Sezyum katkılı ($x = 0,25$ ve $x = 0,35$) $\text{YBa}_{2-x}\text{Cs}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ numunelerinin x-ışını toz kırınım deseni.



Şekil 3.9 $\text{YBa}_{2-x}\text{Cs}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ numunesine yapılan katkı miktarının x-ışını toz kırınım desenindeki (110) pikinin gözlemlendiği açıya etkisi

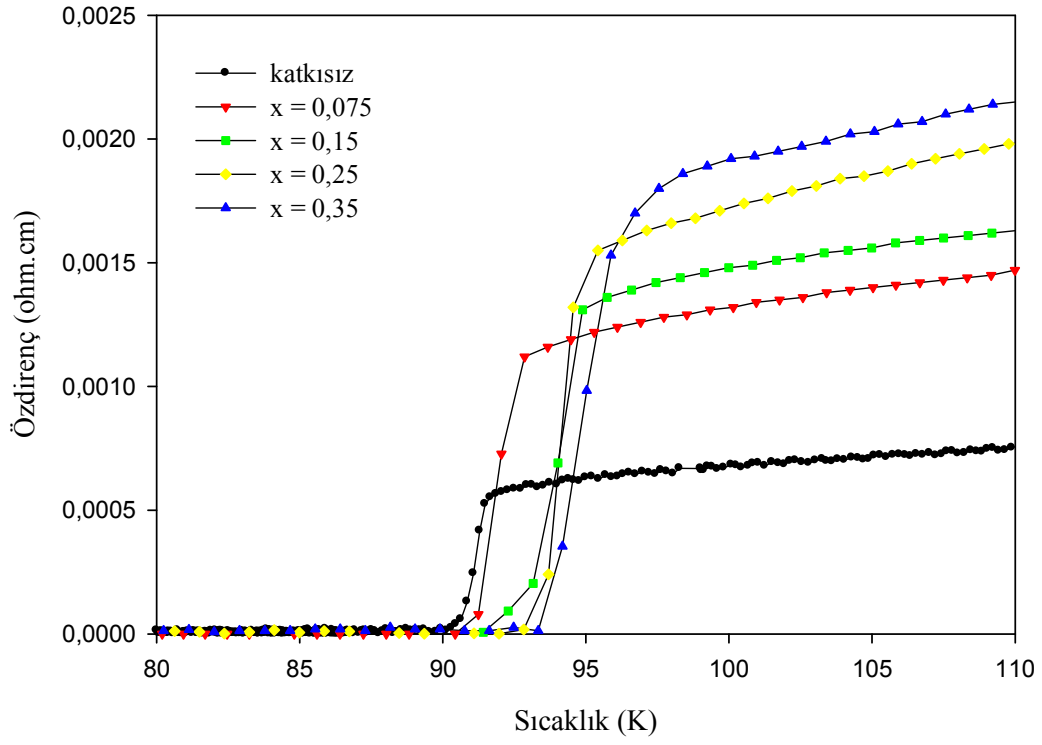
3.4. Elektriksel Özdirenç Ölçümleri

Katkısız ve artan miktarda sezyum katılarak üretilen $\text{YBa}_{2-x}\text{Cs}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ süperiletken bileşiklerin standart dört nokta yöntemine göre elektriksel özdirençleri ölçüldü. Buna göre, katkısız $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ numunesinin özdirençinin sıcaklıkla değişimi Şekil 3.10’da görüldüğü gibidir ve numune, literatüre uygun bir şekilde 91 K’in altında süperiletken hale geçmektedir.

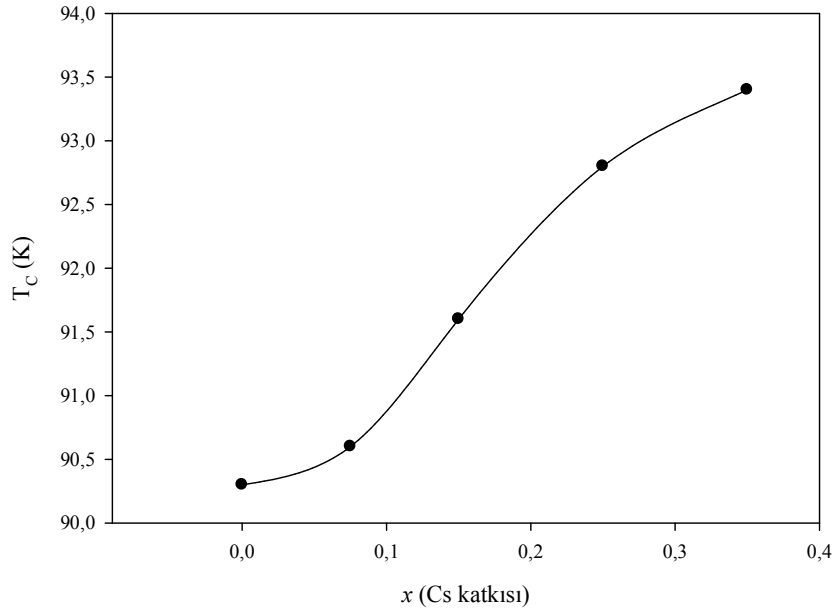


Şekil 3.10 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ süperiletken numunesinin özdirencinin sıcaklıkla değişimi.

Şekil 3.11’de katkısız ve sezyum katkılı ($x = 0,075; 0,15; 0,25; 0,35$) olarak üretilen tüm $\text{YBa}_{2-x}\text{Cs}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ numunelerinin özdirençlerinin sıcaklıkla değişimi görülmektedir. Buna göre, YBCO numunelerde baryum yerine sezyum kattıkça kritik geçiş sıcaklıkları belirgin bir şekilde artmaktadır. Bu durum, Şekil 3.12’de çizilen katkı miktarına göre kritik geçiş sıcaklığının değişim eğrisinde daha net bir şekilde görülmektedir. Katkısız numunede yaklaşık olarak 90,3 K’de kritik geçiş gözlenirken $x = 0,15$ değeri için $T_c = 91,6$ K ve $x = 0,35$ değeri için ise $T_c = 93,4$ K değerine kadar artmaktadır.



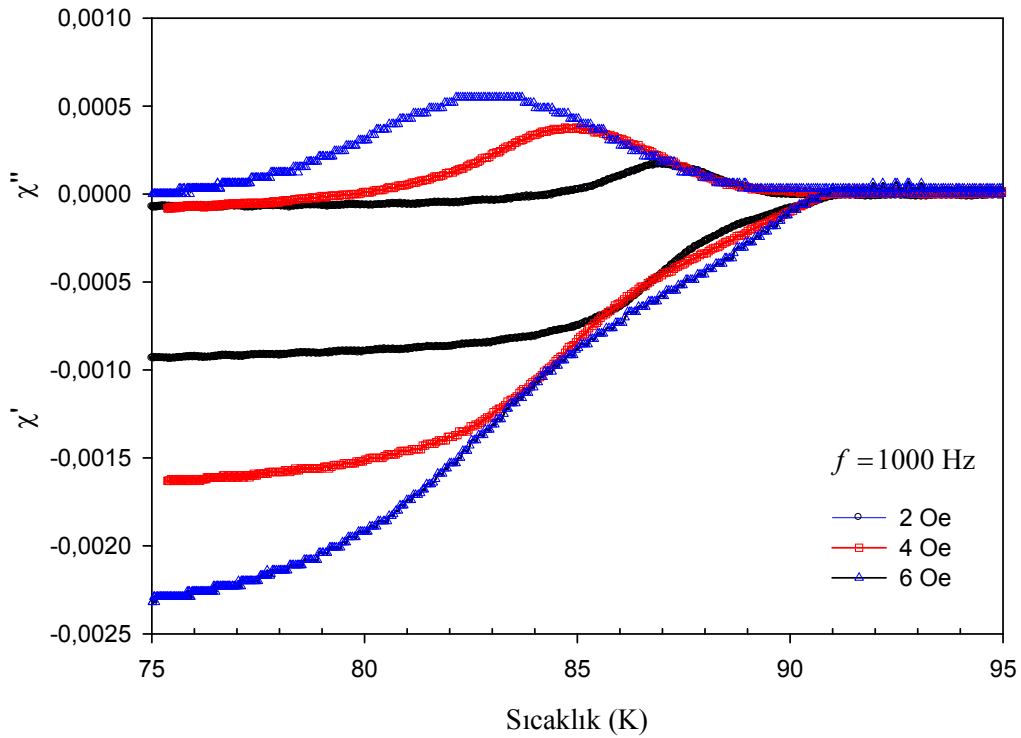
Şekil 3.11 Katkısız ve sezyum katkılı ($x = 0.075, 0.15, 0.25, 0.35$) $\text{YBa}_{2-x}\text{Cs}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ numunelerinin özdirençlerinin sıcaklıkla değişimi.



Şekil 3.12 $\text{YBa}_{2-x}\text{Cs}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ numunelerde katkı miktarına göre kritik geçiş sıcaklığının değişimi.

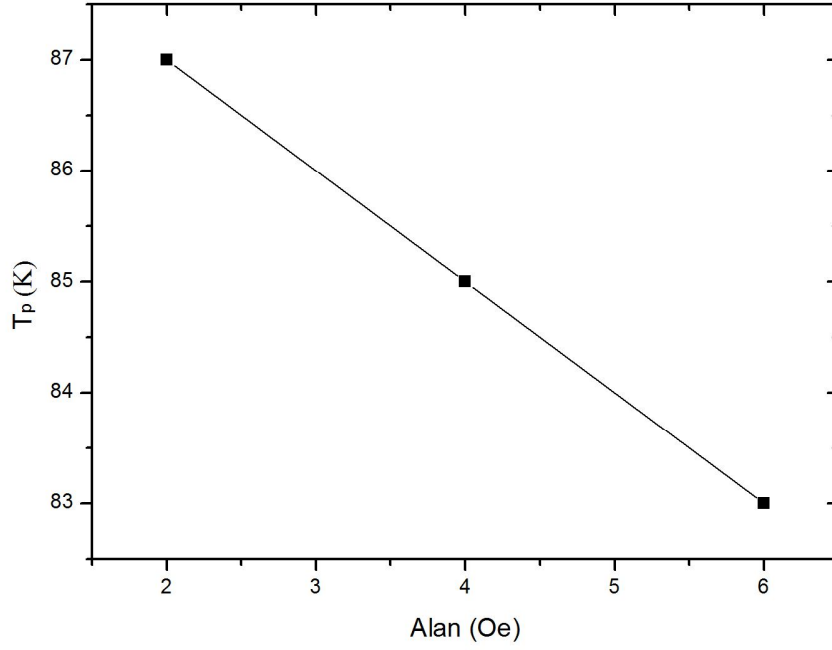
3.5. Manyetik Alınganlık Ölçümleri

Nitratlı bileşikler kullanılarak oksijen ortamında 935 °’de 20 saat tavlansarak üretilen katkısız ve sezyum katkılı süperiletken bileşiklerin 80 – 100 K aralığında ölçülen manyetik alınganlık değerlerine ait grafikler Şekil 3.13 – Şekil 3.17 arasında görülmektedir. Şekil 3.13’de $x = 0,25$ değeri için elde edilen numunenin 2, 4 ve 6 Oe’lik altında manyetik alan altında ölçülmüş alınganlık değişimleri yer almaktadır. Beklendiği gibi, alan arttıkça alınganlığın tepe noktası ve buna bağlı olarak reel kısmı düşük sıcaklıklara doğru kaymaktadır[50,51].



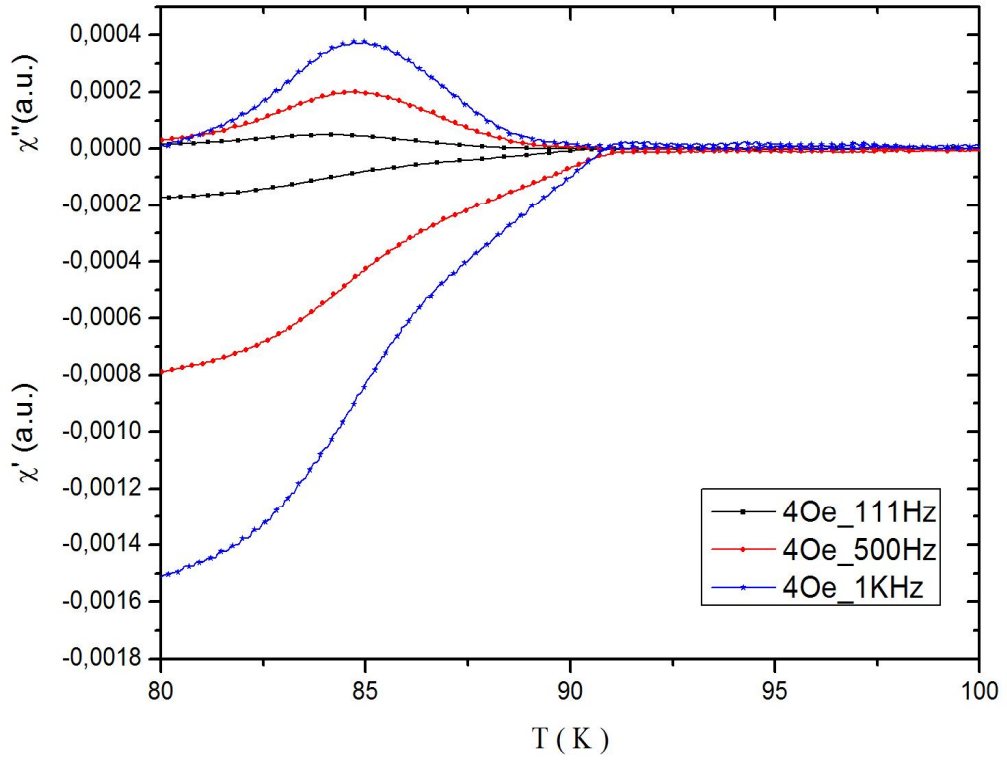
Şekil 3.13 $\text{YBa}_{1.75}\text{Cs}_{0.25}\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ bileşiğinin $f = 1000 \text{ Hz}$ ’lik frekanslı farklı alanlarda (2 Oe, 4 Oe, 6 Oe) AC manyetik alınganlığın sıcaklıkla değişimi.

Şekil 3.14’te bu numunenin manyetik alınganlığının sanal kısmındaki tepe değerinin, uygulanan alan şiddetine bağlı olarak sıcaklıkla değişimi görülmektedir. Alan arttıkça tepe sıcaklık değerindeki değişimin, sıcaklıkla lineer olarak değiştiği anlaşılmaktadır.



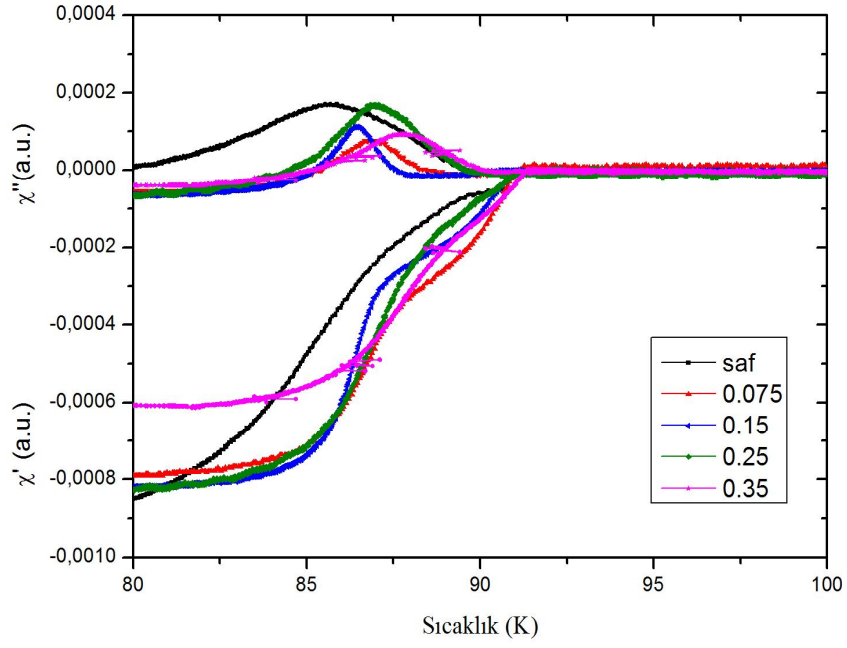
Şekil 3.14 $\text{YBa}_{1.75}\text{Cs}_{0.25}\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ bileşiğinin AC manyetik alınganlığın sanal kısmının tepe değerinin, $f = 1000 \text{ Hz}$ 'lik frekanslı farklı alanlarda (2 Oe, 4 Oe, 6 Oe) değişimi.

Şekil 3.15'te ise aynı bileşiğin, uygulanan sabit alanın frekansı değiştirilerek (111, 500, 1000 Hz) elde edilen alınganlık ölçümleri görülmektedir. Buna göre, frekans etkisinin, kendisini çok belirgin bir şekilde hissettirdiği görülmektedir. Oysa klasik yolla üretilen numunelerde bir-iki Kelvinlik bir farklılaşma ortaya çıkmaktadır[41].

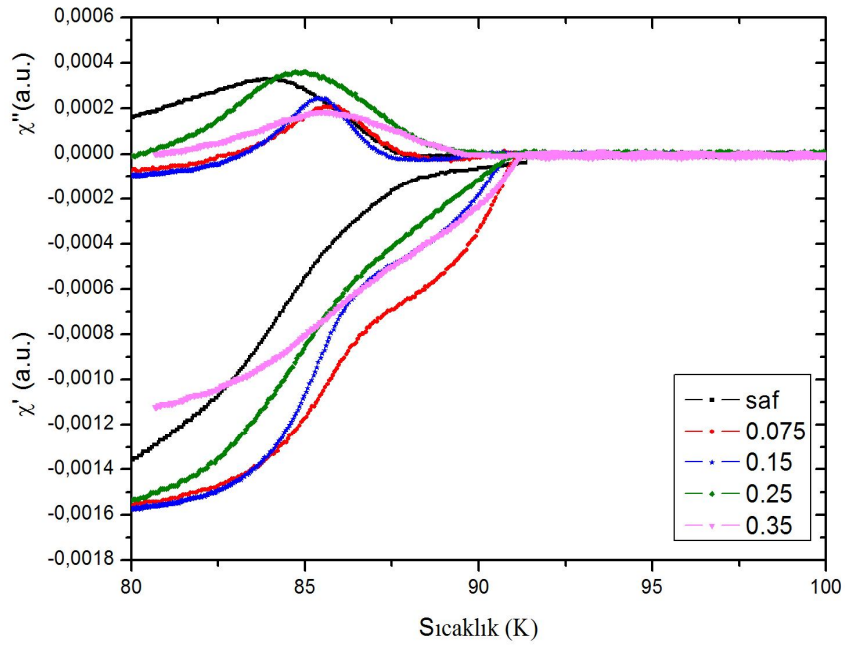


Şekil 3.15 Sezyum katkı miktarı $x = 0,25$ için $\text{YBa}_{1.75}\text{Cs}_{0.25}\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ bileşiğinin sabit 4 Oe’lik alanlı, farklı frekanslı (111, 500, 1000 Hz) AC manyetik alınganlığın sıcaklıkla değişimi.

Katkısız ve katkılı olarak üretilen tüm bileşiklerin sabit $f = 1000$ Hz frekanslı $H = 2$ Oe’lik manyetik alan altında ölçülen alınganlığın sıcaklıkla değişimleri Şekil 3.15’de görülmektedir. Kritik geçiş sıcaklıklarında gözlenen değişiklikleri destekler nitelikte manyetik alınganlık ölçümlerinde de net bir iyileşme ortaya çıkmaktadır. Katkısız numunede yaklaşık olarak 85,5 K’de gözlenen tepe değeri, 1-2 K kadar yüksek sıcaklıklara doğru kaymaktadır. Reel ekseninde, bir “omuz” şeklinde kendisini hissettiren tanecik etkisi, SEM görüntülerini destekler nitelikte belirgin hale gelmektedir. Benzer durum 4 Oe’lik alan altında yapılan ve Şekil 3.15’deki ölçümlerde de gözlenmekte ve beklendiği gibi alan şiddeti arttıkça tepe değerleri düşük sıcaklıklara doğru kaymaktadır.



Şekil 3.16 Katkısız ve sezyum katkılı $\text{YBa}_{2-x}\text{Cs}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ numunelerinin ($H = 2 \text{ Oe}$, $f = 1000 \text{ Hz}$) AC manyetik alınganlıklarının sıcaklıkla değişimi.



Şekil 3.17 Katkısız ve sezyum katkılı $\text{YBa}_{2-x}\text{Cs}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ numunelerinin ($H = 4 \text{ Oe}$, $f = 1000 \text{ Hz}$) AC manyetik alınganlıklarının sıcaklıkla değişimi

4. SONUÇLAR

Nitratlı bileşikler kullanılarak $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ süperiletken bileşiği oksijen ortamında 20 saat tavlansarak üretildi. Daha sonra bu bileşikte Ba yerine, $\text{YBa}_{2-x}\text{Cs}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ kristal yapısına uygun olarak artan miktarlarda $x = 0,075; 0,15; 0,25; 0,35$ değerlerinde Cs katkılındı. Üretilen bu süperiletken bileşiklerin, SEM analizleri, XRD ölçümleri, elektriksel özdirenç ölçümleri ve manyetik alınganlık ölçümleri yapıldı. Bu sayede katkı miktarı değişiminin numunenin yapısal, elektriksel ve manyetik özelliklerine etkileri incelendi.

Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM) incelemeleri 1000 ve 5000 kez büyütme ile yapıldı. Görüntüler incelendiğinde, küçük taneli ve taneler arası boşlukların çok olduğu katkısız numunelere sezyum kattıkça tane miktarının hızlı bir şekilde arttığı ve buna bağlı olarak da taneler arası boşlukların azaldığı gözlemlendi. Başlangıçta 1–2 mikronluk taneler gözükürken $x = 0,35$ değerinde yaklaşık 20 mikronluk iri taneler gözlenmektedir. Buna, bileşiğe katılan sezyum, tavlama işlemi sırasında sıvı fazın oluşumunu artırmasının yol açtığı tahmin edilmektedir.

X-ışını kırınım desenleri $10 - 60^\circ$ aralığında alındı ve kristal yapısının, literatüre uygun bir şekilde çıktığı gözlemlendi. Kırınım deseninde tetragonal faza ait dikkate geçecek büyüklükteki piklere rastlanmaması, üretilen bileşiklerin büyük oranda ortorombik fazda olduklarını hissettirmektedir.

Diğer yandan seçilen başlangıç karışımında baryum yerine, yer değiştirme yoluyla artan miktarlarda katılan sezyuma ait piklerin üretilen numunelerde dikkate geçecek büyüklükte gözlenmemesi, yer değiştirmenin büyük ihtimalde gerçekleştiğini göstermektedir. Yaklaşık olarak $2\theta = 32,8^\circ$ 'de gözlenen (110) karakteristik pikinin, sezyum katkısının artmasıyla bir miktar sola doğru kayması, bu görüşü desteklemektedir.

Standart dört nokta yöntemine göre yapılan elektriksel özdirenç ölçümleri değerlendirildiğinde katkı miktarının artışının, kritik geçiş sıcaklığını artırdığı anlaşılmaktadır. Katkisız $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ numunesinde yaklaşık 90,3 K’de gözlenen kritik geçiş sıcaklığı, $x = 0,35$ için yaklaşık 93,5 K değerine kadar yükselmiştir. Bu da yapılan sezyum katkısının, T_C değerinde bir iyileştirme yaptığını kanıtlamaktadır.

75 K değerine kadar yapılan manyetik alınganlık ölçüm sonuçları, sezyum katkısının alınganlık değerlerinde de iyileştirme yaptığını ortaya koymaktadır. Uygulanan manyetik alanın frekansına bağlı olarak alınganlık değerinin değiştiği ve uygulanan manyetik alanın şiddetinin artışıyla da mıknatıslanmasının arttığı gözlemlendi. Bunda, elektron mikroskobu görüntülerinde net olarak gözlenen tane yapısının etkin olduğu tahmin edildi.

Sonuç olarak, yıllardır pek çok araştırmacı tarafından çalışılan $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ bileşiğine yapılan sezyum katkılmasının, bu bileşiğin elektriksel, manyetik ve yapısal özelliklerinde iyileşme meydana getirdiği anlaşıldı.

KAYNAKLAR

- [1] M.Kartal, Yitrium Baryum Bakır Oksijen Süperiletken Bileşiminin Bazı Fiziksel ve Yapısal Özelliklerinin Araştırılması, Yüksek Lisans Tezi, Kırıkkale Üniversitesi, Kırıkkale (2009).
- [2] H.K.Onnes, Leiden Comm., 124, 120 (1911).
- [3] M. Shur, Introduction to Electronic Devices (John Wiley & Sons, Inc., 1996).
- [4] A century of superconductivity, from discovery to applications Philippe Lebrun CERN, Visit of CERN Special Award winners from ISEF, 20 June 2011.
- [5] W. Buckel, Superconductivity: Fundamentals and Applications (VCH Publishers, Inc., 1991).
- [6] W.Meissner and R.Ochsenfeld, Naturwissenschaften, 21, 787 (1933).
- [7] J. Bardeen, L.N. Cooper, and J.R. Schriffer, Phys. Rev. 108, 1175 (1957).
- [8] Possible new effects in superconductive tunnelling. Authors: Josephson, BD. Publication, Physics Letters, vol. 1, Issue 7, p. 251-253.
- [9] P.J. Ford ve G.A. Saunders, High Temperature Superconductivity- ten years on, Contemporary Physics, 1997, Volume 38, number 1, pages 63-81
- [10] J. G. Bednorz and K. A. Müller Z. Phys B 64, 189 (1986).
- [11] Wu, M. K, Ashburn, J. R. , Torng C. J., Hor, P. H., Meng, R. L., Gao, L., Huang, Z. J., Wang, Y.Q., Chu, C.W., Superconductivity at 93 K in a New Mixed-Phase Y-Ba-Cu-O System at Ambient Pressure, Phys. Rev. Lett., 58 (1987) 908-910.
- [12] Michel, C., Hervieu, M., Borel, M.M., Grandin, A., Deslandes, F., Provost, J., Raveau, Superconductivity in the Bi-Sr-Ca-Cu- System, Z.Phys. B -Condensed Matter, 68, 421-423 (1987).

- [13] Maeda, H., Tanaka, Y., Fukutomi, M., Asano, T., A New High- T_c Oxide Superconductor without a Rare Earth Element, Jpn J. Appl. Phys., 27,2 (1988) 209-210.
- [14] Sheng, Z. Z. ve Herman, A. M., Superconductivity in the Rare Earth-Free Tl-Ba-Cu-O System Above Liquid-Nitrogen Temperature, Nature, 332 (1988) 55-59.
- [15] Parkin, S. S., Lee, V.Y., Engler, E.M., Nazzari, A.I., Huang, T.C., Gorman, G., Savoy, R., Beyers, R., Bulk Superconductivity at 125 K in $Tl_2Ca_2Ba_2Cu_3O_x$, Phys. Rev. Lett., 60, 24 (1988) 2539-2542.
- [16] V. L. Ginzburg, Superconductivity: The Day Before Yesterday, Yesterday, Today and Tomorrow, Journal of Superconductivity: Incorporating Novel Magnetism, Vol.13, No.5, 2000.
- [17] M. E. Yakıncı, Thick Film Glass- Ceramic Superconductors Fabrication, Phd Thesis, University of Warwick, (1992).
- [18] G. Vidali, Superconductivity: The Next Revolution?, page 20, Cambridge University Press, Cambridge, England, (1993).
- [19] Raymond A. Serway, Robert J. Beichner, Fen ve Mühendislik için Fizik, Palme Yayıncılık, bölüm 44, Ankara 2008.
- [20] H. Ibach and H. Loth, Solid-State Physics: An Introduction to Principles of Materials Science (Springer, Berlin; New York, 1996), 2nd ed.
- [21] M. Dikici, Katılmal Fiziğı 2, 1. Baskı, Seçkin Yayıncılık, 424 sayfa, bölüm süperiletkenlik.
- [22] A. C. Rose Innes, E. H. Rhoderick, Introduction to Superconductivity, Pergamon Press, Second Edition, Chapter12.
- [23] ASKERZADE 2005, Süperiletkenlik Fiziğine Giriş 1,2.
- [24] <http://www.doitpoms.ac.uk/tlplib/superconductivity/type.php> (Erişim Tarihi: Kasım 2010)

- [25] Pippard's modifications to the London equations comes from the first chapter in [Parks \(1969, p.27-42\)](#).
- [26] Poole, C., P. Jr., Owens, F., J., 2002, The New Superconductors, Kluwer Academic Publisher, N. York.
- [27] <http://hyperphysics.phy-astr.gsu.edu/hbase/solids/coop.html> ((Eriřim Tarihi: Kasım 2010))
- [28] K.Çolakoğlu, Serway Fizik Üçüncü Baskı, Palme Yayıncılık, Bölüm 44. 7.1305s, Şekil 44.13, Ankara (1996).
- [29] H. Okuyucu, Yiterbiyum-Baryum-Bakır-Oksit Süperiletken Şartlarının Sol-Jel Metodu İle Üretimi ve Karakterizasyonu, Doktora Tezi, Gazi Üniversitesi, Ankara (2002).
- [30] T. N. Durlu, Katıhal Fizikine Giriş Üçüncü Baskı, s235-236, Bilim Yayınları, Ankara, (1996).
- [31] Dzhaferov, T. D., 1996, "Diffusion in High-Temperature Superconductors" Review Article, Phys. Stat. Sol. 158, 335.
- [32] M. K. Wu, "Superconductivity at 93 K in a New Mixed-Phase Y-Ba-Cu-O Compound System at Ambient Pressure." Physical Review Letters 58, 908 (1987).
- [33] C. W. Chu, IEEE Trans. Appl. Supercond. 7 (1997) 80.
- [34] Bilgeç, G., 2004, Sb₂O₃ Katkılı YBCO Süperiletken Seramiklerin Karakterizasyonu, Dokuz Eylül Ü., Fen Bilimleri Enstitüsü, Yayınlanmamış Yüksek Lisans Tezi.
- [35] A. Iyo, Y. Tanaka, Y. Ishiura, M. Tokumoto, K. Tokiwa, T. Watanabe, H. Ihara, Study on enhancement of T_c (≥ 130 K) in TlBa₂Ca₂Cu₃O_y superconductors, Supercond. Sci. Technol. 14 (2001) 504.
- [36] D. Sing, Ceramic Superconductors Developments and Prospects, Ceramics, p741-745, (1998).

- [37] K. Asada, Met. Mater., 4, 741 (1988).
- [38] J. H. Kase, S. Sakka, K. Kamiya, K. Makita and Y. Yamamoto, J. Non-Cryst. Solids 63, 223 (1990).
- [39] R. Zan, $\text{Bi}_{2-x}\text{Tb}_x\text{Pb}_x\text{Sr}_2\text{Ca}_3\text{Cu}_4\text{O}_y$ Süperiletken Malzemesine Tb Katkısının Etkileri, Yüksek Lisans Tezi, Çukurova Üniversitesi, Adana, (2006).
- [40] E. Yanmaz, MgB_2 Nano Parçacık Üretimi, Süperiletkenliğin Temel Prensipleri, Teorileri ve Teknolojik Uygulama Alanları Kış Okulu, Antalya, (2009).
- [41] S. Nezir, Amonyum Nitrat Yöntemiyle Hazırlanmış Yüksek Sıcaklık Bi(Pb)-Sr-Ca-Cu-O Süperiletken Bileşiklerin Bazı Elektriksel, Yapısal ve Manyetik Özellikleri. Doktora Tezi, Karadeniz Teknik Üniversitesi, Trabzon, (1996).
- [42] Keithley, Low Level Measurements, Precision DC Current, Voltage and Resistance Measurements , 5th Edition, (1993).
- [43] A. Aydın, B. Çakır, M. Başoğlu, E. Yanmaz, The Effects of Excess Y_2O_3 Addition on the Mechanical Properties of Melt-Processed YBCO Superconductor, J. Supercond. Nov. Magn (2010), 23:1493-1497.
- [44] Chun Wei Cheng, A. C. Rose Innes, N. McN. Alffords, M. A. Harmer, J.D. Birchall, Supercond. Sci. Technol. 1., 113 (1988).
- [45] John r. LaGraff and David A. Payne, The American Physical Society, Phys. REv. B47, 3380 (1993).
- [46] M. Murakami, Supercond. Sci. Technol. 5, 185 (1992).
- [47] Ö. Bağ, Sezyum Katkılı Yttriyum 1 Baryum 2 Bakır 3 Oksijen 7 Süperiletkenlerinin Bazı Fiziksel ve Yapısal Özelliklerinin İncelenmesi, Yüksek Lisans Tezi, Kırıkkale Üniversitesi, Kırıkkale (2006).
- [48] Klans Yvon, Michael François, Z. Phys. B – Condensed Matter, 76, 413 (1989).

- [49] R. J. Cava, B. Batlogg, R. B. Van Dover, D. V. Murphy, S. Sunshine, T. Siegrist, J. P. Remeika, E. A. Rietman, S. Zahurak and G. P. Espinosa, *Physical Review Letter*, 59, 1676 (1987).
- [50] R. B. Goldford, M. Levental, C. A. Thompson, *NISTIR.*, 3977,1 (1991).
- [51] M. Nikola and R. B. Goldford, *Physical Review B*, 39, 6615(1989).