

**ÇUKUROVA ÜNİVERSİTESİ  
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

**DOKTORA TEZİ**

**Mehmet GÜRSUL**

**FeSe TABANLI KRİSTALLERİN ÜRETİMİ,  
KARAKTERİZASYONU VE FİZİKSEL ÖZELLİKLERİNİN  
ARAŞTIRILMASI**

**FİZİK ANABİLİM DALI**

**ADANA-2019**

**ÇUKUROVA ÜNİVERSİTESİ  
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

**FeSe TABANLI KRİSTALLERİN ÜRETİMİ, KARAKTERİZASYONU  
VE FİZİKSEL ÖZELLİKLERİNİN ARAŞTIRILMASI**

**Mehmet GÜRSUL**

**DOKTORA TEZİ**

**FİZİK ANABİLİM DALI**

Bu Tez 07/08/2019 Tarihinde Aşağıdaki Jüri Üyeleri Tarafından  
Oybirliği/Oyçokluğu ile Kabul Edilmiştir.

.....  
Prof. Dr. Bekir ÖZÇELİK  
DANIŞMAN

.....  
Prof. Dr. Alev AYDINER  
ÜYE

.....  
Prof. Dr. Faruk KARADAĞ  
ÜYE

.....  
Doç. Dr. Ahmet EKİCİBİL  
ÜYE

.....  
Dr. Öğr. Üyesi Halil İbrahim YAVUZ  
ÜYE

Bu Tez Enstitümüz Fizik Anabilim Dalında hazırlanmıştır.

**Kod No:**

**Prof. Dr. Mustafa GÖK  
Enstitü Müdürü**

**Bu Çalışma TÜBİTAK ve Ç.Ü. Araştırma Projeleri Birimi Tarafından Desteklenmiştir.  
Proje No: TÜBİTAK 112T767 ve Proje No: FDK-2015-3844**

**Not:** Bu tezde kullanılan özgün ve başka kaynaktan yapılan bildirişlerin, çizelge ve fotoğrafların kaynak gösterilmeden kullanımı, 5846 sayılı Fikir ve Sanat Eserleri Kanunundaki hükümlere tabidir.

**ÖZ**

**DOKTORA TEZİ**

**FeSe TABANLI KRİSTALLERİN ÜRETİMİ,  
KARAKTERİZASYONU VE FİZİKSEL ÖZELLİKLERİNİN  
ARAŞTIRILMASI**

**Mehmet GÜRSUL**

**ÇUKUROVA ÜNİVERSİTESİ  
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ  
FİZİK ANABİLİM DALI**

Danışman : Prof. Dr. Bekir ÖZÇELİK  
Yıl: 2019, Sayfa: 225  
Jüri : Prof. Dr. Bekir ÖZÇELİK  
: Prof. Dr. Alev AYDINER  
: Prof.Dr. Faruk KARADAĞ  
: Doç. Dr. Ahmet EKİCİBİL  
: Dr. Öğr. Üyesi Halil İbrahim YAVUZ

Bu çalışmada, self-flux ve katı hal yöntemiyle çeşitli FeSe tabanlı tek ve polikristal malzemelerin üretimi yapılmış, yapısal, manyetik ve süperiletkenlik özellikleri incelenmiştir. Elde edilen malzemelerin yapısal ve morfolojik özelliklerinin incelenmesi için X-Işını Kırınımı (XRD), Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM) ve Enerji Dağıtıcı X-Işını Spektrometresi (EDS) analizleri yapılmıştır. Malzemelerin süperiletken ve manyetik özellikleri, magnetodirenç, sıcaklığa ve alana bağlı manyetizasyon ölçümleri yapılarak araştırılmıştır.

**Anahtar Kelimeler:** FeSe tabanlı süperiletkenler, manyetik özellikler, kritik sıcaklık, kritik akım yoğunluğu.

**ABSTRACT**

**PhD THESIS**

**PRODUCTION, CHARACTERIZATION AND INVESTIGATION OF  
PHYSICAL PROPERTIES OF FeSe BASED CRYSTALS**

**Mehmet GÜRSUL**

**ÇUKUROVA UNIVERSITY  
INSTITUTE OF NATURAL AND APPLIED SCIENCES  
DEPARTMENT OF PHYSICS**

Supervisor : Prof. Dr. Bekir ÖZÇELİK  
Year: 2019, Pages: 225  
Jury : Prof. Dr. Bekir ÖZÇELİK  
: Prof. Dr. Alev AYDINER  
: Prof.Dr. Faruk KARADAĞ  
: Assoc. Prof. Dr. Ahmet EKİCİBİL  
: Assist. Prof.Dr. Halil İbrahim YAVUZ

In this study, the single and poly-crystals of various FeSe based crystals were produced by self-flux and solid state techniques and their structural, magnetic and superconducting properties were investigated. X-Ray Diffraction, Scanning Electron Microscopy (SEM), and Energy Dispersive X-Ray Spectroscopy (EDS) analyzes were performed to investigate the structural and morphological properties of the obtained materials. Superconducting and magnetic properties of the materials were investigated by magnetoresistance, temperature and field dependent magnetization measurements.

**Key Words:** Fe-based superconductors, magnetic properties, critical temperature, critical current density.

## GENİŞLETİLMİŞ ÖZET

FeSe kristalinin ikili faz diyagramına bakıldığında  $\alpha$ -Fe<sub>7</sub>Se<sub>8</sub>,  $\beta$ -Fe<sub>7</sub>Se<sub>8</sub>,  $\delta$ ,  $\gamma$ ,  $\gamma'$ , FeSe<sub>2</sub> ve  $\beta$ -FeSe gibi birçok faz görülebilir. Bu fazlar içerisinde  $\beta$ -FeSe fazının 8 K sıcaklığında süperiletken duruma geçtiğinin keşfedilmesiyle birlikte bu faza olan ilgi artmış ve birçok çalışma yapılmıştır. Bazı element, alaşım ve bileşiklerde görülen kritik geçiş sıcaklığı dediğimiz belirli sıcaklıklar altında elektriksel dirençleri ölçülemeyecek kadar küçük değerlere düşmesi durumuna süperiletkenlik denir. 1911 yılında Hollandalı fizikçi Kamerlingh Onnes tarafından metalik civada 4.2 K'de keşfedilen süperiletkenlik olgusu üzerinden yüzyılı aşkın süre geçmesine rağmen araştırmacılar tarafından yoğun ilgi görmektedir. Bu ilginin nedeni, süperiletkenlik durumunda ortaya çıkan sıfır direnç ve Meissner etkisi gibi eşsiz iki özelliğidir. Günümüzde birçok süperiletken malzeme bulunmaktadır. Bunlar içerisinde en önemli süperiletken sistemler bakır oksit tabanlı süperiletkenlerdir. Kupratlar, seramik süperiletkenler ya da yüksek sıcaklık süperiletkenleri gibi isimlerle anılan bakır oksit tabanlı süperiletkenler çok geniş bir aileyi oluşturmuştur. 2008 yılında flor katkılı LaFeAsO yapısında 26 K'de H. Hosono ve arkadaşları tarafından süperiletkenliğin bulunmasıyla birlikte bakır oksit tabanlı süperiletkenlerin yanında başka bir geniş aile daha yer almıştır. Bu keşif bilim dünyasında sürprizle karşılanmıştır. Bunun nedeni ise LaFeAsO yapısındaki yüksek manyetik momente sahip demirin olmasıdır. Shimizu ve arkadaşları 2001 yılında yaptıkları çalışmayla 20 GPa gibi yüksek bir basınç değeri ve 1.8 K gibi çok düşük bir sıcaklıkta demirin süperiletken olabileceğini buldular. Ayrıca biliyoruz ki demir doğada bolca bulunup insanlık tarihinin en önemli elementlerinden biridir. Bu çerçevelerden bakıldığında demir içerikli 26 K'de LaFeAsO yapısındaki süperiletkenliğin bulunması çok önemli bir gelişme olarak kabul edilebilir. H. Hosono ve arkadaşları kısa süre sonra LaFePO yapısındaki kritik geçiş sıcaklığını basınç altında 43 K'ye kadar çıkardılar. Bu çalışma kimyasal basınç dediğimiz katkılama yoluyla da sistemdeki kritik sıcaklığın

artırılması fikrini doğurdu. Birkaç ay içerisinde birçok demir tabanlı süperiletken malzeme bulundu ve kritik sıcaklık Ren ve arkadaşları tarafından samaryum katkılı  $\text{SmFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$  yapısında 55 K'ye kadar çıkarıldı. Demir tabanlı süperiletkenler içerisindeki  $\beta$ -FeSe, en basit kristal yapıya sahip olması, aşırı toksik olan arsenik içermemesi nedeniyle ilgi çekicidir. Bu tez kapsamında  $\beta$ -FeSe,  $\delta$ -FeSe,  $\text{FeSe}_{0.4}\text{Te}_{0.6}$ ,  $(\text{K}_{1-x}\text{Na}_x)_{0.8}\text{Fe}_2\text{Se}_2$ ,  $\text{BaFe}_2\text{Se}_2$ ,  $\text{SrFe}_2\text{Se}_2$  ve  $\text{CeFe}_2\text{Se}_2$  gibi bazı FeSe tabanlı polikristal ve/veya tek kristaller üretilmiştir. Üretilen malzemelerin karakterizasyonu için XRD, SEM-EDS, magnetodirenç, manyetizasyon-sıcaklık ve manyetizasyon-manyetik alan ölçümleri alınmıştır.

Demir selenyum oranı Fe:Se=1:0.98 olan FeSe örnekleri iki farklı sinterleme sıcaklığı uygulanarak hazırlanmıştır. İki kez 780°C'de ve bir kez de 400°C'de üretilen malzemenin XRD sonuçlarına bakılırsa malzemedeki ana fazın  $\delta$ -FeSe olduğu ve bazı önemsenecek miktarda  $\beta$ -FeSe fazına ait yansımaların da görüldüğü söylenebilir. SEM-EDS analizinden malzemedeki tanecikli yapının baskın olduğu, kullanılan demir ve selenyumun malzeme içerisinde homojen dağıldığı görülebilir. FeSe'nin sıvı fazda olduğu 1000°C'de sinterlenen malzemenin XRD sonuçlarından, malzemedeki ana fazın  $\beta$ -FeSe olduğu ve önemsenecek miktarda  $\delta$ -FeSe fazına ait yansımaların olduğu gözlemlendi.

İki farklı soğutma hızında (yavaş soğutma (0.8°C/sa) ve hızlı soğutma (4.5 °C /sa)) hazırlanan  $\text{FeTe}_{0.6}\text{Se}_{0.4}$  tek kristallerin yapısal ve süperiletkenlik özellikleri incelenmiştir. Hızlı soğutma sistemin çoklu faz davranışını artırarak ikili fazların oluşmasına yol açmıştır. Hızlı soğutulan örnekte FeSe ve FeTe'nin çeşitli ikili fazları gözlemlenmiştir. Bu fazların sistemde etkili çivileme merkezleri oluşturarak histerezis eğrilerinin genişlemesine ve kritik akım yoğunluğunun artmasına sebep olduğu düşünülmüştür. Bu bağlamda  $\text{FeTe}_{0.6}\text{Se}_{0.4}$  kristallerinde süperiletkenlik özelliği açısından 4.5°C/sa soğutma oranı, 0.8°C/sa oranına göre daha uygun bir soğutma hızı olarak kabul edilebilir.

Üretilen  $(\text{K}_{0.95}\text{Na}_{0.05})_{0.8}\text{Fe}_2\text{Se}_2$ ,  $(\text{K}_{0.93}\text{Na}_{0.07})_{0.8}\text{Fe}_2\text{Se}_2$ ,  $(\text{K}_{0.8}\text{Na}_{0.2})_{0.8}\text{Fe}_2\text{Se}_2$ ,  $(\text{K}_{0.75}\text{Na}_{0.25})_{0.8}\text{Fe}_2\text{Se}_2$  ve  $(\text{K}_{0.7}\text{Na}_{0.3})_{0.8}\text{Fe}_2\text{Se}_2$  örneklerinin hepsinde birbiri içinde

büyüyen iki faz tespit edilmiştir. Bunlar antiferromanyetik düzenli ve boşluklu yapıdaki Fe düzlemine sahip  $A_2Fe_4Se_5$  (A: Alkali Metal) fazı ve bu faz içerisinde hacimce daha küçük olan süperiletken fazıdır.  $(K_{0.7}Na_{0.3})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinde ayrıca  $\beta$ -FeSe fazı da büyümüştür.

$BaFe_2Se_2$  örneğinin XRD ve SEM-EDS analizinden FeSe ve  $BaFe_2Se_3$  fazlarını içerdiği anlaşılmıştır. Akı (flux) olarak FeSe kullanıldığından FeSe fazına karşılık gelen bölgelere rastlanılmıştır. Ancak ilginç olan  $BaFe_2Se_2$  stokiyometrik oranlarda başlanılmasına rağmen reaksiyon sonunda  $BaFe_2Se_3$  kompozisyonuna ulaşılmıştır. Buradan da FeSe akısı içerisinde  $BaFe_2Se_2$  kompozisyonundan ziyade  $BaFe_2Se_3$  yapısının büyümeye daha elverişli olduğu söylenebilir.

$SrFe_2Se_2$  örneği SrSe, Fe ve Se başlangıç malzemeleri kullanılarak hazırlanmıştır. XRD ve SEM-EDS analizinden başlangıç olarak kullanılan SrSe kimyasalının Fe ve Se içerisinde ayrışmadığı sonucuna varılmıştır. Bu sebeple  $SrFe_2Se_2$  örneği çok fazlı bir davranış sergilemiş  $SrFe_2Se_2$  stokiyometrisine ulaşamamıştır. Örneğin ferromanyetik tipte bir davranış sergilediği  $M-H$  eğrisinden anlaşılmıştır.

$CeFe_2Se_2$  örneği, CeSe<sub>2</sub>, Fe ve Se başlangıç malzemeleri kullanılarak hazırlanmıştır. Yapılan XRD, SEM-EDS analizlerinden  $CeFe_2Se_2$  örneği boyunca  $CeSe_{1.75}$  ve Fe gibi fazlar oluşmuş  $CeFe_2Se_2$  başlangıç stokiyometrisine karşılık gelen bölgelere rastlanılmamıştır. Örneğin manyetizasyon-sıcaklık grafiğinde 15 K'de süperiletken tipte bir geçiş gözlenmiş ancak  $M-H$  ölçümlerinde Meissner etkisinin gözlenmemesi malzeme içerisinde görülen süperiletken hacmin küçük olduğu ve malzemenin toptan diyamanyetik karakter gösterecek kadar güçlü bir süperiletken hacme sahip olmadığı sonucuna varılabilir.





## TEŞEKKÜR

Lisansüstü eğitimim süresince, çalışmalarımı yönlendiren, araştırmalarımın her aşamasında bilgi, öneri ve yardımlarını esirgemeyerek akademik çalışmalarına eşsiz katkıda bulunan değerli hocam Prof. Dr. Bekir ÖZÇELİK'e teşekkür ederim.

Tez çalışmam süresince yönlendirici fikirleriyle ve motive edici yaklaşımıyla desteğini esirgemeyen değerli hocam Doç. Dr. Ahmet EKİCİBİL'e teşekkür ederim.

Tez çalışmam boyunca katkılarından dolayı Prof. Dr. Bilgehan GÜZEL'e, Prof. Dr. Faruk KARADAĞ'a, Prof. Dr. M. Eyyüphan YAKINCI'ya ve İBTAM çalışanlarına teşekkür ederim.

Almanya'da bulunan IFW-Leibniz Institute for Solid State and Materials Research kuruluşundan Prof. Dr. B. Büchner, Dr. S. Wurmehl, C. Blum ve M. Schulze'ye katkılarından dolayı teşekkür ederim.

Rusya'da bulunan Lomonosov Moskova Devlet Üniversitesi'nden Dr. I. V. Morozov'a katkılarından dolayı teşekkür ederim.

Çalışma arkadaşlarım Dr. Nilay Kantarcı Güler'e, Arş. Gör. Gizem Çetin'e ve İbrahim Ergin'e teşekkür ederim.

Maddi desteklerinden dolayı, Türkiye Bilimsel ve Teknik Araştırma Kurumu'na (Proje no: 112T767) ve Ç.Ü. Bilimsel Araştırma Projeleri Birimi'ne (Proje no: FDK-2015-3844) teşekkür ederim.

<b>İÇİNDEKİLER</b>	<b>SAYFA</b>
ÖZ .....	I
ABSTRACT.....	II
GENİŞLETİLMİŞ ÖZET .....	III
TEŞEKKÜR.....	VII
İÇİNDEKİLER .....	VIII
ÇİZELGELER DİZİNİ .....	XII
ŞEKİLLER DİZİNİ .....	XIV
1. GİRİŞ .....	1
1.1. Motivasyon ve Tezin Amacı.....	1
1.2. Süperiletkenlik ve Süperiletkenliğin Temel Özellikleri.....	4
1.2.1. Sıfır Direnç Özelliği.....	4
1.2.2. Meissner Etkisi.....	5
1.2.3. I. Tip ve II. Tip Süperiletkenler .....	10
1.2.4. Vorteks Durumu.....	13
1.2.5. Akı Çivilemesi ve TAFF.....	14
1.2.6. Süperiletkenliğin Temel Teorisi.....	20
1.2.7. Josephson Etkisi.....	25
1.3. Bakır Oksit Tabanlı Süperiletkenler .....	26
1.4. Demir Tabanlı Süperiletkenler.....	29
1.4.1. Demir Tabanlı Süperiletkenlerin Ortaya Çıkış Süreci .....	30
1.4.2. Demir Tabanlı Süperiletkenlerin Sınıflandırılması .....	32
1.4.2.1. 1111-Tip .....	33
1.4.2.2. 111-Tip .....	36
1.4.2.3. 122-Tip .....	37
1.4.2.4. 11-Tip .....	41
2. ÖNCEKİ ÇALIŞMALAR .....	55
3. MATERYAL VE METOT .....	71
3.1. Materyal.....	71
3.2. Metot.....	72

3.2.1. Katıhal Yöntemi.....	72
3.2.2. Yüksek Basınç Yöntemi.....	73
3.2.3. Sıvı Amonyak Yöntemi.....	73
3.2.4. Bridgman Yöntemi.....	73
3.2.5. Flux (Akı) Yöntemi.....	74
3.2.6. FeSe-11 Örneklerinin Hazırlanması.....	75
3.2.7. FeSe <sub>0.4</sub> Te <sub>0.6</sub> Örneklerinin Hazırlanması.....	76
3.2.8. (K <sub>1-x</sub> Na <sub>x</sub> ) <sub>0.8</sub> Fe <sub>2</sub> Se <sub>2</sub> Örneklerinin Hazırlanması.....	77
3.2.9. BaFe <sub>2</sub> Se <sub>2</sub> Örneklerinin Hazırlanması.....	79
3.2.10. SrFe <sub>2</sub> Se <sub>2</sub> Örneklerinin Hazırlanması.....	81
3.2.11. CeFe <sub>2</sub> Se <sub>2</sub> Örneklerinin Hazırlanması.....	81
3.3. Malzemelerin Analiz Yöntemleri.....	83
3.3.1. XRD.....	83
3.3.2. SEM.....	83
3.3.3. Süperiletkenlik ve Manyetik Özelliklerin İncelenmesi.....	84
4. BULGULAR VE TARTIŞMA.....	85
4.1. FeSe-11 Örneklerinin Analiz Sonuçları.....	85
4.1.1. FeSe-11 Örneklerinin XRD Analizi Sonuçları.....	85
4.1.2. FeSe-11 Örneklerinin SEM ve EDS Analiz Sonuçları.....	86
4.1.3. FeSe-11 Örneklerinin Manyetik Ölçümleri.....	96
4.2. FeSe <sub>0.4</sub> Te <sub>0.6</sub> Örneklerinin Analiz Sonuçları.....	99
4.2.1. FeSe <sub>0.4</sub> Te <sub>0.6</sub> Örneklerinin XRD Analiz Sonuçları.....	99
4.2.2. FeSe <sub>0.4</sub> Te <sub>0.6</sub> Örneklerinin SEM ve EDS Analiz Sonuçları.....	101
4.2.3. FeSe <sub>0.4</sub> Te <sub>0.6</sub> Örneğinin Manyetik Ölçümleri.....	113
4.3. (K <sub>1-x</sub> Na <sub>x</sub> ) <sub>0.8</sub> Fe <sub>2</sub> Se <sub>2</sub> Örneklerinin Analiz Sonuçları.....	122
4.3.1. (K <sub>0.95</sub> Na <sub>0.05</sub> ) <sub>0.8</sub> Fe <sub>2</sub> Se <sub>2</sub> Örneğinin Analiz Sonuçları.....	123
4.3.1.1. (K <sub>0.95</sub> Na <sub>0.05</sub> ) <sub>0.8</sub> Fe <sub>2</sub> Se <sub>2</sub> Örneğinin XRD Analiz Sonuçları.....	123
4.3.1.2. (K <sub>0.95</sub> Na <sub>0.05</sub> ) <sub>0.8</sub> Fe <sub>2</sub> Se <sub>2</sub> Örneğinin SEM ve EDS Analiz Sonuçları.....	125
4.3.1.3. (K <sub>0.95</sub> Na <sub>0.05</sub> ) <sub>0.8</sub> Fe <sub>2</sub> Se <sub>2</sub> Örneğinin Manyetik Ölçümleri.....	132
4.3.2. (K <sub>0.93</sub> Na <sub>0.07</sub> ) <sub>0.8</sub> Fe <sub>2</sub> Se <sub>2</sub> Örneğinin Analiz Sonuçları.....	134
4.3.2.1. (K <sub>0.93</sub> Na <sub>0.07</sub> ) <sub>0.8</sub> Fe <sub>2</sub> Se <sub>2</sub> Örneğinin XRD Analiz Sonuçları.....	135
4.3.2.2. (K <sub>0.93</sub> Na <sub>0.07</sub> ) <sub>0.8</sub> Fe <sub>2</sub> Se <sub>2</sub> Örneğinin SEM ve EDS Analiz Sonuçları.....	136

4.3.2.3. $(K_{0.93}Na_{0.07})_{0.8}Fe_2Se_2$ Örneğinin Manyetik Ölçüm Sonuçları ....	142
4.3.3. $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$ Örneğinin Analiz Sonuçları.....	146
4.3.3.1. $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$ Örneğinin XRD Analiz Sonuçları.....	147
4.3.3.2. $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$ Örneğinin SEM ve EDS Analiz Sonuçları.	148
4.3.3.3. $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$ Örneğinin Manyetik Ölçüm Sonuçları.....	155
4.3.4. $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$ Örneğinin Analiz Sonuçları.....	163
4.3.4.1. $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$ Örneğinin XRD Analiz Sonuçları.....	163
4.3.4.2. $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$ Örneğinin SEM ve EDS Analiz Sonuçları .....	165
4.3.4.3. $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$ Örneğinin Manyetik Ölçüm Sonuçları ....	171
4.3.5. $(K_{0.7}Na_{0.3})_{0.8}Fe_2Se_2$ Örneğinin Analiz Sonuçları.....	175
4.3.5.1. $(K_{0.7}Na_{0.3})_{0.8}Fe_2Se_2$ Örneğinin XRD Analiz Sonuçları.....	175
4.3.5.2. $(K_{0.7}Na_{0.3})_{0.8}Fe_2Se_2$ Örneğinin SEM ve EDS Analiz Sonuçları.	176
4.3.5.3. $(K_{0.7}Na_{0.3})_{0.8}Fe_2Se_2$ Örneğinin Manyetik Ölçüm Sonuçları .....	181
4.4. $BaFe_2Se_2$ Örneğinin Analiz Sonuçları.....	184
4.4.1. $BaFe_2Se_2$ Örneğinin XRD Analiz Sonuçları.....	184
4.4.2. $BaFe_2Se_2$ Örneğinin SEM ve EDS Analiz Sonuçları.....	185
4.4.3. $BaFe_2Se_2$ Örneğinin Manyetik Ölçüm Sonuçları .....	193
4.5. $SrFe_2Se_2$ Örneğinin Analiz Sonuçları.....	194
4.5.1. $SrFe_2Se_2$ Örneğinin XRD Analiz Sonuçları .....	194
4.5.2. $SrFe_2Se_2$ Örneğinin SEM ve EDS Analiz Sonuçları .....	195
4.5.3. $SrFe_2Se_2$ Örneğinin Manyetik Ölçüm Sonuçları .....	200
4.6. $CeFe_2Se_2$ Örneğinin Analiz Sonuçları.....	202
4.6.1. $CeFe_2Se_2$ Örneğinin XRD Analiz Sonuçları.....	203
4.6.2. $CeFe_2Se_2$ Örneğinin SEM ve EDS Analiz Sonuçları .....	204
4.6.3. $CeFe_2Se_2$ Örneğinin Manyetik Ölçüm Sonuçları .....	210
5. SONUÇLAR VE ÖNERİLER .....	213
5.1. Sonuçlar .....	213
5.2. Öneriler.....	214
KAYNAKLAR .....	217
ÖZGEÇMİŞ .....	225



## ÇİZELGELER DİZİNİ

## SAYFA

Çizelge 1.1. Bakır oksit tabanlı süperiletkenler ve bu yapıların kritik sıcaklıkları .....	28
Çizelge 1.2. LnFeAsO yapısındaki Ln=La, Ce, Pr, Nd, Sm ve Gd için kritik sıcaklık, yapısal geçiş sıcaklığı ve örgü sabitlerinin değişimi.....	36





## ŞEKİLLER DİZİNİ

## SAYFA

Şekil 1.1.	FeSe faz diyagramı.....	2
Şekil 1.2.	Civanın direnç-sıcaklık grafiği.....	5
Şekil 1.3.	Meissner-Ochsenfeld etkisi.....	6
Şekil 1.4.	Manyetik alanın bir süperiletken örneğe sızması.....	8
Şekil 1.5.	Bazı malzemeler için süperiletken bölgeler.....	10
Şekil 1.6.	I.Tip süperiletkenlerde manyetik alan-manyetizasyon ve sıcaklık manyetik alan eğrileri.....	11
Şekil 1.7.	II.Tip süperiletkenlerde manyetik alan-manyetizasyon ve sıcaklık manyetik alan eğrileri.....	11
Şekil 1.8.	I.Tip süperiletkenlerde sınır bölgesindeki uyum uzunluğu ve girme derinliği.....	12
Şekil 1.9.	II.Tip süperiletkenlerde sınır bölgesindeki uyum uzunluğu ve girme derinliği.....	13
Şekil 1.10.	(a) II. Tip bir süperiletkendeki vorteks yapısı (b) Her bir vorteksteki manyetik alanın geçtiği normal bölge ve çevresindeki süper akımlar.....	14
Şekil 1.11.	Akı çivilemesi ve Lorentz kuvveti ve termal enerjile birlikte oluşan itici kuvvetin çivilemeyi bozması.....	16
Şekil 1.12.	Elektrik alan-akım ya da voltaj-akım grafiklerindeki TAFF, akı sürüklenmesi ve akı akışı bölgeleri.....	17
Şekil 1.13.	$\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{0.9}\text{Na}_{0.1}\text{Cu}_2\text{O}_y$ süperiletkeninde farklı manyetik alanlarda direnç-sıcaklık ilişkisi.....	18
Şekil 1.14.	Çeşitli yüksek sıcaklık süperiletkenlerde manyetik alan altındaki elektriksel dirençleri ve bakıra göre durumu.....	19
Şekil 1.15.	Cooper çiftlerinin şematik gösterimi.....	21
Şekil 1.16.	Bir metal içerisindeki tek elektronlar ve Cooper çiftleri.....	22



Şekil 1.17. BCS teorisine göre Fermi yüzeyine yakın $2\Delta_k$ katmanı içinde elektronlar Cooper çifti oluşturur .....	23
Şekil 1.18. (a) Normal durumdaki durum yoğunluğu (b) Mutlak sıfırda süperiletkenlerdeki durum yoğunluğu ve enerji aralığı (c) Süperiletken durumdaki sonlu bir sıcaklıktaki durum yoğunluğu ve enerji aralığı.....	23
Şekil 1.19. Fonon aracılı eşleşme ile magnon aracılı eşleşme arasındaki benzerlik. (a) Geleneksel bir süperiletkendeki Cooper eşleşmesinin fononlar aracılığıyla gerçekleşmesi. (b) Geleneksel olmayan bir süperiletkendeki Cooper eşleşmesinin magnonlar aracılığıyla gerçekleşmesi .....	25
Şekil 1.20. Josephson etkisinin görülebildiği çeşitli yapılar. (a) süperiletken yalıtkan süperiletken (SIS) tünelleme eklemi, (b) süperiletken normal süperiletken (SNS) sandviç, (c) mikroköprü, (d) nokta-temas eklemi, (e) normal ve süperiletken filminden oluşan yapı, (f) süperiletken bir tel üstündeki küçük bir lehim damlası.....	26
Şekil 1.21. (a) LSCO, (b) YBCO ve (c) Bi2212 süperiletkenlerin kristal yapıları.....	27
Şekil 1.22. Bakır Oksit Tabanlı Süperiletkenlerin Şematik Faz Diyagramı .....	29
Şekil 1.23. Demir tabanlı süperiletkenlerin keşfedilme tarihleri .....	30
Şekil 1.24. $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ süperiletkeninin ortaya çıkış süreci .....	31
Şekil 1.25. $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ yapısının (a) direnç sıcaklık grafiği, (b) kristal yapısı ve c) üretilen örneğin fotoğrafı .....	32
Şekil 1.26. Demir tabanlı süperiletkenlerin kristal yapısı.....	33
Şekil 1.27. $\text{LnFeAsO}$ sisteminin kristal yapısı .....	34
Şekil 1.28. $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ yapısının elektronik faz diyagramı.....	35
Şekil 1.29. 111-Tip süperiletkenin kristal yapısı .....	37
Şekil 1.30. 122-Tip süperiletkenin kristal yapısı .....	38

Şekil 1.31. BaFe <sub>2</sub> As <sub>2</sub> , (Ba <sub>0.6</sub> K <sub>0.4</sub> )Fe <sub>2</sub> As <sub>2</sub> ve KFe <sub>2</sub> As <sub>2</sub> yapıları için elektriksel direnç sıcaklık grafiği.....	39
Şekil 1.32. Sıcaklığın düşmesiyle birlikte BaFe <sub>2</sub> As <sub>2</sub> yapısının XRD desenindeki 110 ve 122 yansımaların yarılması ve örgü parametrelerinin değişimi.....	39
Şekil 1.33. BaFe <sub>2</sub> As <sub>2</sub> yapısına (a) deşik ve elektron katkılması (b) As ile eş değerlikli P ile doplama sonucu oluşan fazlar.....	40
Şekil 1.34. 1111 ve 122-Tip için şematik faz diyagramlarının karşılaştırılması.....	40
Şekil 1.35. $\beta$ -FeSe fazının oluşum bölgesi.....	42
Şekil 1.36. PbO'nun kristal yapısı.....	43
Şekil 1.37. $\beta$ -FeSe'nin kristal yapısı.....	43
Şekil 1.38. Sinkrotron XRD (SXRD) ölçümü sonucu süperiletken Fe <sub>1.01</sub> Se ve süperiletken olmayan Fe <sub>1.03</sub> Se örneklerindeki soğutmayla birlikte Fe-Fe mesafeleri arasındaki değişim.....	44
Şekil 1.39. Basıncın artmasıyla süperiletkenlik geçiş sıcaklığının artması.....	45
Şekil 1.40. Fe <sub>1.01</sub> Se'nin basınca bağlı elektronik faz diyagramı.....	46
Şekil 1.41. (a) Farklı sülfür katkılarında özdirenç sıcaklık değişimi, (b) 0 ile 30 K arası özdirenç sıcaklık değişimi, (c) $T_c^{onset}$ , $T_c^{zero}$ ve $T_c^{mid}$ sıcaklıklarının değişimi.....	47
Şekil 1.42. Sıfır manyetik alanda çeşitli Te konsantrasyonlarında özdirenç-sıcaklık bağımlılığı.....	48
Şekil 1.43. Fe(Se <sub>1-x</sub> Te <sub>x</sub> ) <sub>0.82</sub> sisteminde sıcaklık-özdirenç grafiği.....	49
Şekil 1.44. Basınç- $T_c$ faz diyagramı.....	50
Şekil 1.45. K <sub>0.8</sub> Fe <sub>2</sub> Se <sub>2</sub> 'nin kristal yapısı.....	51
Şekil 1.46. K <sub>0.8</sub> Fe <sub>2</sub> Se <sub>2</sub> kristalinin $M-T$ ve $M-H$ eğrisi.....	52
Şekil 1.47. K <sub>0.8</sub> Fe <sub>1.6</sub> Se <sub>2</sub> kristal ve manyetik yapıları, (a) Alt ve üst Fe-Se katmanları ve manyetik momentlerinin yönelimleri, (b) Fe-Se katmanının üstten görünüşü.....	53

Şekil 1.48.	$K_{0.85}Fe_{1.54}Se_2$ kristalindeki nötron-kırınımı verilerinden elde edilen (a) üç boyutlu şerit tipi manyetik yapı ve (b) eşkenar dörtgen yapıdaki Fe boşluğu. ....	53
Şekil 1.49.	$K_{0.8}Fe_{1.6+x}Se_2$ kristalinin, (a) $x=0$ ve (b) $x=0.06$ için SEM görüntüleri .....	54
Şekil 2.1.	Selenyum miktarına bağlı olarak Néel sıcaklığının değişimi .....	55
Şekil 2.2.	Demir-Selenyum Faz Diyagramı.....	56
Şekil 2.3.	Demirin süperiletken faz diyagramı .....	57
Şekil 2.4.	(a) Saf LaOFeP yapısının farklı manyetik alan altındaki özdirenç-sıcaklık grafiği, (b) Saf ve F katkılı LaOFeP yapısının özdirenç-sıcaklık grafiği, (c) Saf ve F katkılı LaOFeP yapısının manyetik alınganlık-sıcaklık grafiği, (d) Saf LaOFeP yapısının manyetizasyon-manyetik alan grafiği.....	58
Şekil 2.5.	LaNiOAs için manyetik alınganlık-sıcaklık grafiği .....	59
Şekil 2.6.	LaFeOAs yapısının (a) özdirenç-sıcaklık ve (b) molar alınganlık-sıcaklık grafiği.....	60
Şekil 2.7.	$SmFeAsO_{1-x}F_x$ örneğinin manyetik alınganlık-sıcaklık grafiği .....	61
Şekil 2.8.	Katkısız $SmOFeAs$ ve $SmO_{0.9}F_{0.1}FeAs$ örneklerinin özdirenç-sıcaklık grafiği.....	62
Şekil 2.9.	Farklı flor katkılarlarındaki $CeFeAsO_{1-x}F_x$ yapısının özdirenç-sıcaklık grafiği.....	63
Şekil 2.10.	Süperiletken FeSe'deki örgü sabitleri ve birim hücre hacminin sıcaklığa bağlı değişimi .....	64
Şekil 2.11.	$FeSe_x$ örneğinin XRD deseni.....	65
Şekil 2.12.	Fırın soğutmalı ve Bridgman soğutmalı örnekler için XRD desenleri .....	66
Şekil 2.13.	$Fe_{1+d}Te_{1-x}Se_x$ sisteminin faz diyagramı.....	67
Şekil 2.14.	$K_{0.8}Fe_2Se_2$ örneği için direnç-sıcaklık grafiği .....	68

Şekil 2.15.	$K_xFe_{2-y}Se_2$ kristalinin (a) SE ve (b) BSE modunda çekilen SEM fotoğrafları.....	69
Şekil 3.1.	Glove-Box .....	71
Şekil. 3.2	Pürmüz .....	72
Şekil 3.3.	Örnek-A'nın ısıtma işlem süreci .....	75
Şekil 3.4.	Örnek-B'nin ısıtma işlem süreci.....	76
Şekil 3.5.	Örnek-1'in ısıtma işlem süreci .....	77
Şekil 3.6.	Örnek-2'in ısıtma işlem süreci .....	77
Şekil 3.7.	$(K_{1-x}Na_x)_{0.8}Fe_2Se_2$ örneklerinin ısıtma işlem süreçleri .....	78
Şekil 3.8.	BaSe için deney düzeneği ve ısıtma işlem süreci.....	80
Şekil 3.9	$BaFe_2Se_2$ için ısıtma işlem süreci .....	80
Şekil 3.10.	$SrFe_2Se_2$ örneğinin ısıtma işlem süreci.....	81
Şekil 3.11.	$CeSe_2$ 'nin deney düzeneği ve ısıtma işlem süreci .....	82
Şekil 3.12.	$CeFe_2Se_2$ örneğinin ısıtma işlem süreci .....	83
Şekil 4.1.	Örnek-A ve Örnek-B için XRD desenleri .....	86
Şekil 4.2.	Örnek-A'ya ait a) 5.00 KX, b) 10.00 KX, c) 20.00 KX ve d) 40.00 KX büyütme oranlarında alınan SEM görüntüleri.....	87
Şekil 4.3.	Örnek-A için EDS analizinde kullanılan bölgeler .....	88
Şekil 4.4.	Örnek-A için seçilen 1.bölgenin EDS analizi.....	88
Şekil 4.5.	Örnek-A için seçilen 2.bölgenin EDS analizi.....	89
Şekil 4.6.	Örnek-A için seçilen 3.bölgenin EDS analizi.....	89
Şekil 4.7.	Örnek-A için seçilen 4. bölgenin EDS analizi.....	90
Şekil 4.8.	Örnek-A için EDS nokta haritalaması a) Noktalama yapılan bölgenin 5.0 KX SEM görüntüsü, b) Fe nokta haritalaması, c) Se nokta haritalaması, d) Fe ve Se için toplu nokta haritalaması.....	91
Şekil 4.9.	Örnek-B'ye ait a) 5.00 KX, b) 10.00 KX, c) 20.00 KX ve d) 40.00 KX büyütme oranlarında alınan SEM görüntüleri.....	92
Şekil 4.10.	Örnek-B için EDS analizinde kullanılan bölgeler .....	93
Şekil 4.11.	Örnek-B için seçilen 1.bölgenin EDS analizi.....	93

Şekil 4.12.	Örnek-B için seçilen 2. bölgenin EDS analizi.....	94
Şekil 4.13.	Örnek-B için seçilen 3. bölgenin EDS analizi.....	94
Şekil 4.14.	Örnek-B için EDS nokta haritalaması a) Noktalama yapılan bölgenin 5.0 KX SEM görüntüsü, b) Fe nokta haritalaması, c) Se nokta haritalaması, d) Fe ve Se için toplu nokta haritalaması.....	95
Şekil 4.15.	a) Örnek-A ve b) Örnek-B için <i>M-T</i> eğrisi.....	96
Şekil 4.16.	Örnek-A için a) 5 K, b) 8 K ve c) 13 K sıcaklıklarındaki <i>M-H</i> eğrisi.....	98
Şekil 4.17.	Örnek-B için a) 5 K, b) 8 K ve c) 13 K sıcaklıklarındaki <i>M-H</i> eğrisi.....	99
Şekil 4.18.	Yavaş soğutma (Örnek-1) ve hızlı soğutma (Örnek-2) uygulanarak üretilen örneklerin XRD desenleri.....	100
Şekil 4.19.	Örnek-1'e ait a) 1.00 KX, b) 5.00 KX, c) 10.00 KX ve d) 20.00 KX büyütmelemlerde alınan SEM görüntüleri.....	101
Şekil 4.20.	Örnek-1 için EDS analizinde kullanılan bölgeler.....	102
Şekil 4.21.	Örnek-1 için seçilen 1.bölgenin EDS analizi.....	103
Şekil 4.22.	Örnek-1 için seçilen 2.bölgenin EDS analizi.....	103
Şekil 4.23.	Örnek-1 için seçilen 3.bölgenin EDS analizi.....	104
Şekil 4.24.	Örnek-1 için seçilen 4.bölgenin EDS analizi.....	104
Şekil 4.25.	Örnek-1 için seçilen 5.bölgenin EDS analizi.....	105
Şekil 4.26.	Örnek-1 için EDS nokta haritalaması a) Noktalama yapılan bölgenin 2.5KX SEM görüntüsü, b) Fe, Se ve Te için toplu nokta haritalaması c) Fe nokta haritalaması, d) Se nokta haritalaması, e) Te nokta haritalaması.....	106
Şekil 4.27.	Örnek-2'ye ait a) 1.00 KX, b) 5.00 KX, c) 10.00 KX ve d) 20.00 KX büyütmelemlerde alınan SEM görüntüleri.....	107
Şekil 4.28.	Örnek-2 için EDS analizinde kullanılan bölgeler.....	108
Şekil 4.29.	Örnek-2 için seçilen 1.bölgenin EDS analizi.....	108
Şekil 4.30.	Örnek-2 için seçilen 2. bölgenin EDS analizi.....	109

Şekil 4.31. Örnek-2 için seçilen 3.bölgenin EDS analizi.....	109
Şekil 4.32. Örnek-2 için seçilen 4. bölgenin EDS analizi.....	110
Şekil 4.33. Örnek-2 için seçilen 5. bölgenin EDS analizi.....	110
Şekil 4.34. Örnek-2 için seçilen 6. bölgenin EDS analizi.....	111
Şekil 4.35. Örnek-2 için seçilen 7. bölgenin EDS analizi.....	111
Şekil 4.36. Örnek-2 için seçilen 8. bölgenin EDS analizi.....	112
Şekil 4.37. Örnek-2 için EDS nokta haritalaması a) Noktalama yapılan bölgenin 2.5 KX SEM görüntüsü, b) Fe, Se ve Te için toplu nokta haritalaması c) Fe nokta haritalaması, d) Se nokta haritalaması, e) Te nokta haritalaması.....	113
Şekil 4.38. a) Örnek-1 ve b) Örnek-2 için <i>M-T</i> eğrisi, c) Örnek-1 ve Örnek-2'nin ZFC eğrisi .....	115
Şekil 4.39. a) Örnek-1 ve b) Örnek-2 için <i>M-H</i> eğrisi.....	117
Şekil 4.40. a) Örnek-1 ve b) Örnek-2 için kritik akım yoğunluğunun manyetik alana karşı grafiği .....	119
Şekil 4.41. Örnek-1 ve b) Örnek-2 için çivileme kuvvetinin manyetik alana karşı grafiği.....	120
Şekil 4.42. a) Örnek-1 ve b) Örnek-2 için magneto-direnç eğrisi .....	121
Şekil 4.43. $(K_{0.95}Na_{0.05})_{0.8}Fe_2Se_2$ Örneğinin XRD desenleri.....	124
Şekil 4.44. $(K_{0.95}Na_{0.05})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneğinin a) 1.00 KX, b) 5.00 KX, c) 10.00 KX ve d) 20.00 KX büyütmelerde alınan SEM görüntüleri.....	126
Şekil 4.45. $(K_{0.95}Na_{0.05})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneği için EDS analizinde kullanılan bölgeler.....	126
Şekil 4.46. $(K_{0.95}Na_{0.05})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneği için seçilen 1. bölgenin EDS analizi ....	127
Şekil 4.47. $(K_{0.95}Na_{0.05})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneği için seçilen 2. bölgenin EDS analizi ....	128
Şekil 4.48. $(K_{0.95}Na_{0.05})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneği için seçilen 3. bölgenin EDS analizi ....	128
Şekil 4.49. $(K_{0.95}Na_{0.05})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneği için seçilen 4. bölgenin EDS analizi ....	129
Şekil 4.50. $(K_{0.95}Na_{0.05})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneği için seçilen 5. bölgenin EDS analizi ....	129

Şekil 4.51. ( $K_{0.95}Na_{0.05}$ ) $_{0.8}Fe_2Se_2$ için EDS nokta haritalaması a) Noktalama yapılan bölgenin 5.0KX SEM görüntüsü, b) K nokta haritalaması, c) Na nokta haritalaması, d) Fe nokta haritalaması, e) Se nokta haritalaması, f) K, Na, Fe ve Se için toplu nokta haritalaması .....	131
Şekil 4.52. ( $K_{0.95}Na_{0.05}$ ) $_{0.8}Fe_2Se_2$ örneğinin <i>M-T</i> eğrisi.....	132
Şekil 4.53. ( $K_{0.95}Na_{0.05}$ ) $_{0.8}Fe_2Se_2$ örneğinin <i>M-H</i> eğrisi.....	133
Şekil 4.54. ( $K_{0.95}Na_{0.05}$ ) $_{0.8}Fe_2Se_2$ örneğinin 5K'de kritik akım yoğunluğunun manyetik alana karşı grafiği .....	134
Şekil 4.55. ( $K_{0.93}Na_{0.07}$ ) $_{0.8}Fe_2Se_2$ Örneğinin XRD desenleri.....	136
Şekil 4.56. ( $K_{0.93}Na_{0.07}$ ) $_{0.8}Fe_2Se_2$ örneğinin a) 1.00 KX, b) 5.00 KX, c) 10.00 KX ve d) 20.00 KX büyütmelemlerde alınan SEM görüntüleri.....	137
Şekil 4.57. ( $K_{0.93}Na_{0.07}$ ) $_{0.8}Fe_2Se_2$ örneği için EDS analizinde kullanılan bölgeler.....	138
Şekil 4.58. ( $K_{0.93}Na_{0.07}$ ) $_{0.8}Fe_2Se_2$ örneği için seçilen 1. bölgenin EDS analizi ....	138
Şekil 4.59. ( $K_{0.93}Na_{0.07}$ ) $_{0.8}Fe_2Se_2$ örneği için seçilen 2. bölgenin EDS analizi ....	139
Şekil 4.60. ( $K_{0.93}Na_{0.07}$ ) $_{0.8}Fe_2Se_2$ örneği için seçilen 3. bölgenin EDS analizi ....	139
Şekil 4.61. ( $K_{0.93}Na_{0.07}$ ) $_{0.8}Fe_2Se_2$ örneği için seçilen 4. bölgenin EDS analizi ....	140
Şekil 4.62. ( $K_{0.93}Na_{0.07}$ ) $_{0.8}Fe_2Se_2$ örneği için seçilen 5. bölgenin EDS analizi ....	140
Şekil 4.63. ( $K_{0.93}Na_{0.07}$ ) $_{0.8}Fe_2Se_2$ için EDS nokta haritalaması a) Noktalama yapılan bölgenin 5.0KX SEM görüntüsü, b) K nokta haritalaması, c) Na nokta haritalaması, d) Fe nokta haritalaması, e) Se nokta haritalaması, f) K, Na, Fe ve Se için toplu nokta haritalaması .....	142
Şekil 4.64. ( $K_{0.93}Na_{0.07}$ ) $_{0.8}Fe_2Se_2$ örneğinin <i>M-T</i> eğrisi.....	143
Şekil 4.65. ( $K_{0.93}Na_{0.07}$ ) $_{0.8}Fe_2Se_2$ örneğinin <i>M-H</i> eğrisi.....	144
Şekil 4.66. ( $K_{0.93}Na_{0.07}$ ) $_{0.8}Fe_2Se_2$ örneğinin kritik akım yoğunluğunun manyetik alana karşı grafiği .....	145

Şekil 4.67. $(K_{0.93}Na_{0.07})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneğinin çivileme kuvvetinin manyetik alana karşı grafiği .....	146
Şekil 4.68. $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$ Örneğinin XRD desenleri .....	147
Şekil 4.69. $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneğinin a) 1.00 KX, b) 5.00 KX, c) 10.00 KX ve d) 20.00 KX büyütmelemlerde alınan SEM görüntüleri .....	149
Şekil 4.70. $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneği için EDS analizinde kullanılan bölgeler .....	150
Şekil 4.71. $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneği için seçilen 1. bölgenin EDS analizi .....	150
Şekil 4.72. $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneği için seçilen 2. bölgenin EDS analizi .....	151
Şekil 4.73. $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneği için seçilen 3. bölgenin EDS analizi .....	151
Şekil 4.74. $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneği için seçilen 4. bölgenin EDS analizi .....	152
Şekil 4.75. $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneği için seçilen 5. bölgenin EDS analizi .....	152
Şekil 4.76. $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneği için seçilen 6. bölgenin EDS analizi .....	153
Şekil 4.77. $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$ için EDS nokta haritalaması a) Noktalama yapılan bölgenin 5.0KX SEM görüntüsü, b) K nokta haritalaması, c) Na nokta haritalaması, d) Fe nokta haritalaması, e) Se nokta haritalaması, f) K, Na, Fe ve Se için toplu nokta haritalaması. ....	154
Şekil 4.78. $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneğinin <i>M-T</i> eğrisi .....	155
Şekil 4.79. $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneğinin <i>M-H</i> eğrisi .....	157
Şekil 4.80. $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneğinin kritik akım yoğunluğunun manyetik alana karşı grafiği .....	158
Şekil 4.81. $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneğinin çivileme kuvvetinin manyetik alana karşı grafiği .....	159
Şekil 4.82. $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneğinin magneto-direnç eğrisi .....	160
Şekil 4.83 $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneğinin üst kritik alan, $H_{c2}$ , sıcaklık bağımlılığı .....	161
Şekil 4.84. $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneğinin akı çivileme enerjisi manyetik alan grafiği .....	162



Şekil 4.85. $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneğinin iki yıl sonra ölçümü alınan $M-T$ eğrisi .....	163
Şekil 4.86. $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$ Örneğinin XRD desenleri.....	164
Şekil 4.87. $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneğinin a) 1.00 KX, b) 5.00 KX, c) 10.00 KX ve d) 20.00 KX büyütmelemlerde alınan SEM görüntüleri.....	166
Şekil 4.88 $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneği için EDS analizinde kullanılan bölgeler.....	167
Şekil 4.89. $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneği için seçilen 1. bölgenin EDS analizi ....	167
Şekil 4.90. $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneği için seçilen 2. bölgenin EDS analizi ....	168
Şekil 4.91. $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneği için seçilen 3. bölgenin EDS analizi ....	168
Şekil 4.92. $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneği için seçilen 4. bölgenin EDS analizi ....	169
Şekil 4.93. $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneği için seçilen 5. bölgenin EDS analizi ....	169
Şekil 4.94. $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$ için EDS nokta haritalaması a) Noktalama yapılan bölgenin 5.0KX SEM görüntüsü, b) K nokta haritalaması, c) Na nokta haritalaması, d) Fe nokta haritalaması, e) Se nokta haritalaması, f) K, Na, Fe ve Se için toplu nokta haritalaması .....	170
Şekil 4.95. $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneğinin $M-T$ eğrisi .....	172
Şekil 4.96. $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneğinin $M-H$ eğrisi.....	173
Şekil 4.97. $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneğinin kritik akım yoğunluğunun manyetik alana karşı grafiği .....	174
Şekil 4.98. $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneğinin çivileme kuvvetinin manyetik alana karşı grafiği .....	175
Şekil 4.99. $(K_{0.7}Na_{0.3})_{0.8}Fe_2Se_2$ Örneğinin XRD desenleri .....	176
Şekil 4.100. $(K_{0.7}Na_{0.3})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneğinin a) 1.00 KX, b) 2.50 KX, c) 5.00 KX ve d) 10.00 KX büyütmelemlerde alınan SEM görüntüleri.....	177
Şekil 4.101. $(K_{0.7}Na_{0.3})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneği için EDS analizinde kullanılan bölgeler.....	178
Şekil 4.102. $(K_{0.7}Na_{0.3})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneği için seçilen 1. bölgenin EDS analizi.....	179

Şekil 4.103. $(K_{0.7}Na_{0.3})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneği için seçilen 2. bölgenin EDS analizi.....	179
Şekil 4.104. $(K_{0.7}Na_{0.3})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneği için seçilen 3. bölgenin EDS analizi.....	180
Şekil 4.105. $(K_{0.7}Na_{0.3})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneği için seçilen 4. bölgenin EDS analizi.....	180
Şekil 4.106. $(K_{0.7}Na_{0.3})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneği için seçilen 5. bölgenin EDS analizi .....	181
Şekil 4.107. $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneğinin <i>M-T</i> eğrisi .....	182
Şekil 4.108. $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$ örneğinin <i>M-H</i> eğrisi.....	184
Şekil 4.109. $BaFe_2Se_2$ Örneğinin XRD desenleri .....	185
Şekil 4.110. $BaFe_2Se_2$ örneğinin a) 10.00 KX, b) 5.00 KX, c) 2.50 KX ve d) 1.00 KX büyütmelemlerde alınan SEM görüntüleri.....	186
Şekil 4.111. $BaFe_2Se_2$ örneği için EDS analizinde kullanılan bölgeler.....	187
Şekil 4.112. $BaFe_2Se_2$ örneği için seçilen 1. bölgenin EDS analizi .....	189
Şekil 4.113. $BaFe_2Se_2$ örneği için seçilen 2. bölgenin EDS analizi .....	189
Şekil 4.114. $BaFe_2Se_2$ örneği için seçilen 3. bölgenin EDS analizi .....	190
Şekil 4.115. $BaFe_2Se_2$ örneği için seçilen 4. bölgenin EDS analizi .....	190
Şekil 4.116. $BaFe_2Se_2$ örneği için seçilen 5. bölgenin EDS analizi .....	191
Şekil 4.117. $BaFe_2Se_2$ örneği için seçilen 6. bölgenin EDS analizi .....	191
Şekil 4.118. $BaFe_2Se_2$ örneği için seçilen 7. bölgenin EDS analizi .....	192
Şekil 4.119. $BaFe_2Se_2$ örneği için seçilen 8. bölgenin EDS analizi .....	192
Şekil 4.120. $BaFe_2Se_2$ örneğinin <i>M-T</i> eğrisi .....	193
Şekil 4.121. $BaFe_2Se_2$ örneğinin <i>M-H</i> eğrisi .....	194
Şekil 4.122. $SrFe_2Se_2$ Örneğinin XRD desenleri .....	195
Şekil 4.123. $SrFe_2Se_2$ örneğinin a) 1.00 KX, b) 2.50 KX ve c) 5.00 KX büyütmelemlerde alınan SEM görüntüleri .....	196
Şekil 4.124. $SrFe_2Se_2$ örneği için EDS analizinde kullanılan bölgeler .....	197
Şekil 4.125. $SrFe_2Se_2$ örneği için seçilen 1. bölgenin EDS analizi .....	198
Şekil 4.126. $SrFe_2Se_2$ örneği için seçilen 2. bölgenin EDS analizi .....	198
Şekil 4.127. $SrFe_2Se_2$ örneği için seçilen 3. bölgenin EDS analizi .....	199
Şekil 4.128. $SrFe_2Se_2$ örneği için seçilen 4. bölgenin EDS analizi .....	199
Şekil 4.129. $SrFe_2Se_2$ örneği için seçilen 5. bölgenin EDS analizi .....	200

Şekil 4.130. SrFe <sub>2</sub> Se <sub>2</sub> örneğinin <i>M-T</i> eğrisi.....	201
Şekil 4.131. SrFe <sub>2</sub> Se <sub>2</sub> örneğinin <i>M-H</i> eğrisi .....	202
Şekil 4.132. CeSe <sub>2</sub> Örneğinin XRD desenleri.....	203
Şekil 4.133. CeFe <sub>2</sub> Se <sub>2</sub> Örneğinin XRD desenleri .....	204
Şekil 4.134. CeFe <sub>2</sub> Se <sub>2</sub> örneğinin a) 2.50 KX, b) 5.00 KX ve c) 10.00 KX büyütmelerde alınan SEM görüntüleri .....	205
Şekil 4.135. CeFe <sub>2</sub> Se <sub>2</sub> örneği için EDS analizinde kullanılan bölgeler.....	206
Şekil 4.136. CeFe <sub>2</sub> Se <sub>2</sub> örneği için seçilen 1. bölgenin EDS analizi .....	207
Şekil 4.137. CeFe <sub>2</sub> Se <sub>2</sub> örneği için seçilen 2. bölgenin EDS analizi .....	207
Şekil 4.138. CeFe <sub>2</sub> Se <sub>2</sub> örneği için seçilen 3. bölgenin EDS analizi .....	208
Şekil 4.139. CeFe <sub>2</sub> Se <sub>2</sub> örneği için seçilen 4. bölgenin EDS analizi .....	208
Şekil 4.140. CeFe <sub>2</sub> Se <sub>2</sub> örneği için seçilen 5. bölgenin EDS analizi .....	209
Şekil 4.141. CeFe <sub>2</sub> Se <sub>2</sub> örneği için seçilen 6. bölgenin EDS analizi .....	209
Şekil 4.142. CeFe <sub>2</sub> Se <sub>2</sub> örneğinin <i>M-T</i> eğrisi .....	211
Şekil 4.143. CeFe <sub>2</sub> Se <sub>2</sub> örneğinin <i>M-H</i> eğrisi .....	212

## SİMGELER VE KISALTMALAR

$H$	: Manyetik Alan
$H_c$	: Kritik Manyetik Alan
$H_{c1}$	: Alt Kritik Alan
$H_{c2}$	: Üst Kritik Alan
$J_C$	: Kritik Akım Yoğunluğu
$M$	: Manyetizasyon
$T$	: Tesla
$T_c$	: Kritik Sıcaklık
$\Phi_0$	: Manyetik Akı Kuantumu
$\zeta$	: Eş Uyum Uzunluğu
$\lambda$	: London Girme Derinliği
$\kappa$	: Gizburg-Landau Parametresi
$BCS$	: Bardeen-Cooper-Schrieffer Teorisi
$EDS$	: Enerji Dağıtıcı X-Işını Spektroskopisi
$FC$	: Alan Soğutmalı
$PPMS$	: Fiziksel Özellikler Ölçüm Sistemi
$SEM$	: Taramalı Elektron Mikroskobu
$TAFF$	: Termal Aktiviteli Akı Akışı
$XRD$	: X-Işını Kırınımı
$ZFC$	: Sıfır Alan Soğutmalı

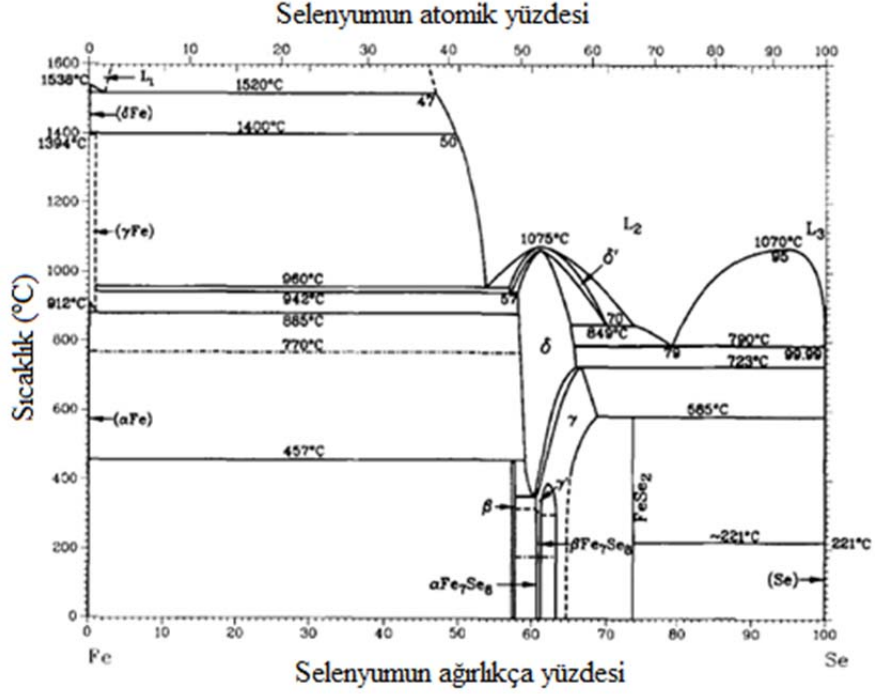


## 1. GİRİŞ

Kristal sözcüğünün kökeni Eski Yunanca'da buz anlamına gelen "Krustallos" sözcüğüne kadar dayanmaktadır. Katıhal Fiziği'nde ise kristal, atom ya da atom gruplarının belli bir düzen içinde buldukları katı cisimlerdir. Kristal yapı baz ve örgüden oluşur. Atom ya da atom grupları bazı, bazın iliştiirildiği matematiksel noktalar kümesi de örgüyü oluşturur. Belli sayıdaki baz ve örgü bir araya gelerek bir desen oluşturur ve bu desen tekrarlanarak kristal yapıyı oluşturur. Kristal yapı içerisinde tekrarlanan bu desene birim hücre denir. Kristalleri kendi içerisinde tek kristal ve polikristal olarak ikiye ayırabiliriz. Birim hücrenin kristal boyunca aynı tipte istiflenerek tanecik sınırı oluşturmadan bir araya gelmesiyle tek kristal oluşur. Kendi içerisinde düzenli bir yapı olmakla birlikte tanecik sınırlarıyla birbirinden ayrılan tek kristal yapıların bir araya gelmesiyle de polikristal oluşur. Bu tez kapsamında ise bazı FeSe tabanlı tek ve poli kristallerin üretimi yapılarak fiziksel özellikleri araştırılmıştır.

### 1.1. Motivasyon ve Tezin Amacı

FeSe kristali, demir ve selenyum konsantrasyonuna bağlı olarak bir dizi fazdan oluşur. FeSe kristaline ait kapsamlı faz diyagramı, Şekil 1.1'de verilmektedir. Şekil incelendiğinde, farklı sıcaklıklarda oluşan  $\alpha$ -Fe<sub>7</sub>Se<sub>8</sub>,  $\beta$ -Fe<sub>7</sub>Se<sub>8</sub>,  $\delta$ ,  $\gamma$ ,  $\gamma'$ , FeSe<sub>2</sub> ve  $\beta$  gibi belli başlı fazlar görülebilir. Ayrıca demir bölgesine yakın kısımda  $\alpha$ -Fe,  $\gamma$ -Fe,  $\delta$ -Fe ve L<sub>1</sub> sıvı fazı bulunur.  $\delta$ -Fe fazı 1538°C civarında eriyerek L<sub>1</sub> sıvı fazına dönüşmektedir.  $\alpha$ -Fe ↔  $\gamma$ -Fe dönüşümü 912°C'de  $\gamma$ -Fe ↔  $\delta$ -Fe dönüşümü ise 1394°C'de gerçekleşmektedir.



Şekil 1.1. FeSe faz diyagramı (Okamoto, 1991)

Litaratüre baktığımız zaman eski tarihlerde en çok çalışılan FeSe stokiyometrisi  $Fe_7Se_8$  olup ilk defa 1900 yılında H. Fonzes-Diacon tarafından bildirilmiştir.  $Fe_7Se_8$ ' in iki fazından biri olan  $\alpha$ - $Fe_7Se_8$  fazı ortorombik yapıda diğer fazı  $\beta$ - $Fe_7Se_8$  hekzagonal yapıdadır. Bu iki faz da ferrimagnetik karakter sergilemektedir.

$\delta$ -FeSe fazı, NiAs tipi hekzagonal yapıda olup 450°C'den sonraki sıcaklıklarda Fe ve Se'nin 1:1 oranlarında olduğu bölge etrafında oluşur.  $\delta$ -FeSe fazı kompozisyonuna bağlı olarak ferrimagnetik ya da antiferromanyetik özellik gösterir (Okomato, 1991). Bu faz Se'nin %52.8 olduğu durumda 1065°C'de  $\delta'$  fazına dönüşür

$\gamma$  ve  $\gamma'$ - $Fe_3Se_4$  fazları, Fe:Se oranının 1:1'den selenyum tarafına doğru kaydığı bölgede monoklinik yapıda oluşur. Selenyum miktarının arttığı bölgede oluşan  $FeSe_2$  fazı ise ortorombik yapıda olup 585°C'de dar bir bölgede oluşur.

$\beta$ -FeSe fazı, selenyumun atomik yüzdesinin %49.0-%49.4 olduğu dar bir bölgede ve 300°C ile 450°C sıcaklık aralıklarında tetragonal yapıda oluşur. 2009 yılında Hsu ve ark. tarafından  $\beta$ -FeSe fazının 8K'de süperiletkenlik duruma geçtiğinin keşfedilmesi,  $\beta$ -FeSe fazına olan ilgiyi artırmış çok sayıda çalışma yayınlanmıştır.

Bu tez çalışmasının amacı, bazı FeSe tabanlı kristallerin üretimi, karakterizasyonu ve fiziksel özelliklerinin incelenmesidir. FeSe tabanlı kristallerin fiziksel özelliklerine bakıldığında bazı kristallerin antiferromanyetik ve ferrimanyetik gibi manyetik özellik gösterirken bazı kristallerin de  $\beta$ -FeSe'de olduğu gibi süperiletkenlik fazını da içerdiğini bilinmektedir. Bu çerçevede bu tez kapsamında FeSe sistemine çeşitli katkılar yapılarak mümkünse süperiletken fazların bulunması hedeflenmiştir. Fe:Se oranının 1:1 olduğu bölge etrafında  $\alpha$ -Fe<sub>7</sub>Se<sub>8</sub>,  $\beta$ -Fe<sub>7</sub>Se<sub>8</sub>,  $\delta$ -FeSe ve  $\beta$ -FeSe gibi birçok fazın büyümeye elverişli olmasından, 11-Tip'indeki FeSe-11 süperiletkenleri yüksek oranda süperiletken olmayan fazları da içerir. Bu tez kapsamında:

- Hazırlanan FeSe-11 örneklerinde süperiletken olmayan fazların elimine edilerek yüksek oranda süperiletken  $\beta$ -FeSe fazı içeren FeSe-11 süperiletken kristallerin büyütülmesi,
- FeSe yapısına A= Sr, Ba ve Ce elementleri konulup AFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> tipinde yapılar oluşturularak yapısal ve fiziksel özelliklerin araştırılması,
- Antiferromanyetik dizilimli yalıtkan faz ve süperiletken fazı bir arada içeren K<sub>0.8</sub>Fe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> sistemine, potasyumun (K) iyonik yarıçapından daha düşük ancak aynı değerlikli sodyum (Na) eklenerek K<sub>0.8</sub>Fe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> sistemindeki antiferromanyetik ve süperiletkenlik faza olan etkisinin incelenmesi,



- Hazırlanan malzemelerin ısıtma işlem süreçlerinde farklı soğutma hızları kullanılarak soğutma hızının malzemelerin yapısal ve fiziksel özelliklerine olan etkisinin araştırılması,
- Son olarak bazı ölçümler belli bir zaman diliminden sonra tekrarlanarak oluşan fazların yaşlanma etkisinin olup olmadığının incelenmesi,

amaçlanmıştır. Bu amaçlar doğrultusunda;  $\delta$ -FeSe,  $\beta$ -FeSe,  $\text{FeSe}_{0.6}\text{Te}_{0.4}$ ,  $(\text{K}_{1-x}\text{Na}_x)_{0.8}\text{Fe}_2\text{Se}_2$ ,  $\text{BaFe}_2\text{Se}_2$ ,  $\text{SrFe}_2\text{Se}_2$  ve  $\text{CeFe}_2\text{Se}_2$  örnekleri katıhal ve self-flux (öz-akı) yöntemiyle hazırlanmış, örneklerin yapısal karakterizasyonu ve fiziksel özelliklerinin araştırılması için X-Işını Kırınımı (XRD), Taramalı Elektron Mikroskobu ve Enerji Dağıtıcı X-Işını Spektrometresi (SEM-EDS), manyetizasyon-sıcaklık ( $M-T$ ), manyetizasyon-manyetik alan ( $M-H$ ) ve magnetodirenç ( $MR$ ) ölçümleri gerçekleştirilmiştir.

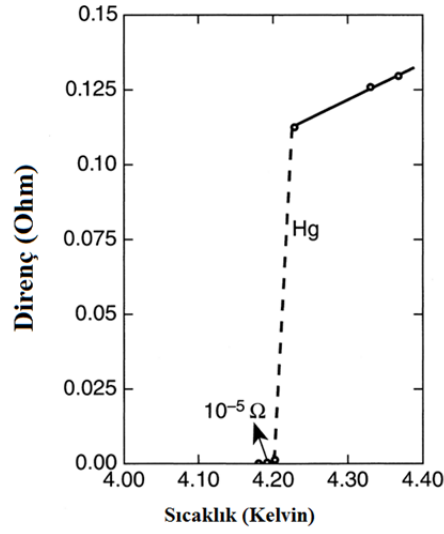
## 1.2. Süperiletkenlik ve Süperiletkenliğin Temel Özellikleri

Bazı element, alaşım ve bileşiklerde görülen kritik geçiş sıcaklığı dediğimiz belirli sıcaklıklar altında elektriksel dirençleri ölçülemeyecek kadar küçük değerlere düşmesi durumuna süperiletkenlik denir. 1911 yılında Hollandalı fizikçi Kamerlingh Onnes tarafından metalik civada 4.2 K'de keşfedilen süperiletkenlik olgusu üzerinden yüzyılı aşkın süre geçmesine rağmen araştırmacılar tarafından yoğun ilgi görmektedir. Bu ilginin nedeni, süperiletkenlik durumunda ortaya çıkan sıfır direnç ve Meissner etkisi gibi eşsiz iki özelliğin görülmesidir.

### 1.2.1. Sıfır Direnç Özelliği

Onnes tarafından ölçülen civanın direnç-sıcaklık grafiği Şekil 1.2'de verilmiştir. Şekle göre civanın direnci sıcaklığın düşmesiyle birlikte beklenildiği gibi doğrusal bir şekilde düşmüştür. Ancak 4.2 K sıcaklığına gelindiğinde direncin aniden  $10^{-5} \Omega$  değerine düştüğü gözlenmiştir. Bu değer ani düşüşten önceki değere göre  $10^{-4}$  kat daha düşüktür. Bakırın bu sıcaklıklardaki öz direnci yaklaşık  $10^{-9}$

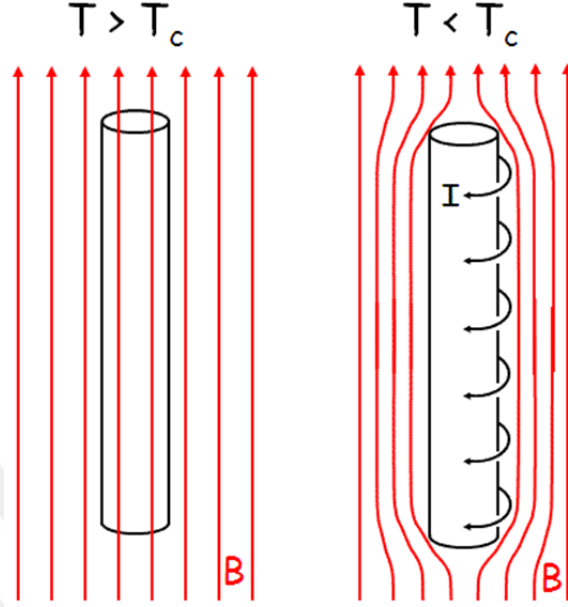
$\Omega.cm$  iken bir süperiletkenin öz direnci ise bakırdan  $10^{17}$  kat daha düşük olup  $10^{-26}$   $\Omega.cm$  civarındadır. Bir süperiletken ile normal metalin direnci arasındaki fark bakır ile bir elektriksel yalıtkanın direnci arasındaki fark kadardır. Bu çerçevede bir süperiletkenin direnci pratikte sıfır kabul edilir.



Şekil 1.2. Civanın direnç-sıcaklık grafiği (Onnes, 1911)

### 1.2.2. Meissner Etkisi

Meissner-Ochsenfeld etkisi ya da kısaca Meissner Etkisi olarak bilinen süperiletkenlerin bu temel özelliği, bir süperiletkenin üzerine uygulanan manyetik alanı kendi dışına itmesidir. Bu özellik Alman fizikçiler W. Meissner ve R. Ochsenfeld tarafından 1933 yılında kurşun ve kalayda yaptıkları deney sonucunda bulundu. Manyetik alan altında tuttıkları silindirik örneklerin soğutulması süperiletkenlik durumuna geçtikten sonra içerisindeki tüm manyetik alanı dışladığını gözlemlediler. Bu durum Şekil 1.3'de şematik olarak verilmiştir.



Şekil 1.3. Meissner-Ochsenfeld etkisi  
(<http://hoffman.physics.harvard.edu/materials/SCintro.php>)

Meissner etkisinin gözlenmesinden iki yıl sonra, Fritz ve Heinz London kardeşler Drude Modeli ve Maxwell denklemlerini kullanarak Meissner etkisini açıklamaya çalışmışlardır. Drude Modeli'nde bir elektronun elektrik alan altındaki hareketi aşağıdaki gibi verilir.

$$m \, dv/dt = eE - mv/\tau \quad (1.1)$$

Bu ifadeye  $v$ , elektronların sürüklenme hızı ve  $\tau$  ise elektronların çarpışmalar arasında geçen ortalama serbest zamanıdır. Süperiletken durumda herhangi bir engel olmadığından ortalama serbest zaman sonsuz alınarak  $mv/\tau$  terimini atabiliriz. Böylece ifade;

$$dv_s/dt = eE/m \quad (1.2)$$

şeklini alır. Burada  $v_s$  terimi süperiletken durumdaki elektronların sürüklenme hızı olup kritik akım yoğunluğu,  $\mathbf{J} = nev_s$ , cinsinden ifadeyi tekrar yazarsak 1. London denklemi olarak bilinen Denklem (1.3)'e ulaşırız.

$$d\mathbf{J}_s / dt = (n_s e^2 / m) \mathbf{E} = \mathbf{E} / \Lambda = (c^2 / 4\pi \lambda^2) \mathbf{E} \quad (1.3)$$

Burada  $\Lambda$  ve  $\lambda$  denklem parametreleri,  $n_s$  ise süperiletken durumdaki elektron yoğunluğu olup  $\Lambda = 4\pi \lambda^2 / c^2 = m / n_s e^2$  olarak verilir. Denklem (1.3)'ün her iki tarafının rotasyonelini alarak Denklem (1.4)'e ulaşırız.

$$\nabla \times d\mathbf{J} / dt = [ n_s e^2 \nabla \times \mathbf{E} ] / m \quad (1.4)$$

Maxwell denklemlerinden,  $\nabla \times \mathbf{E} = -d\mathbf{B} / dt$  ifadesini Denklem (1.4)'de yerine yazarak 2. London denklemi olarak bilinen Denklem (1.5)'e ulaşırız.

$$\nabla \times \mathbf{J} = - [ n_s e^2 \mathbf{B} / m ] \quad (1.5)$$

Maxwell denklemlerinden  $\nabla \times \mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{J}_s$  ifadesinin her iki tarafının rotasyonelini alalım.

$$\nabla \times (\nabla \times \mathbf{B}) = \mu_0 (\nabla \times \mathbf{J}) \quad (1.6)$$

$$\nabla(\nabla \cdot \mathbf{B}) - \nabla^2 \mathbf{B} = \mu_0 (\nabla \times \mathbf{J}) \quad (1.7)$$

Burada  $\nabla \cdot \mathbf{B} = 0$ ,  $(\nabla \times \mathbf{J})$  yerine de 2. London denklemini koyarsak;

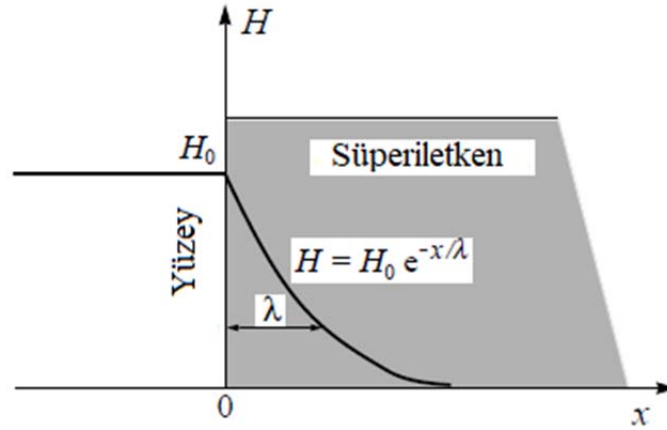
$$\nabla^2 \mathbf{B} = 1 / \lambda^2 \mathbf{B} \quad (1.8)$$

ifadesi elde edilir. Burada  $\lambda$  London girme (nüfuz) derinliği olup,  $\lambda=(m/\mu_0 n_s e^2)^{1/2}$  olarak ifade edilir. Denklem (1.8)'in çözümü:

$$\mathbf{B} = \mathbf{B}(0) e^{-x/\lambda} \quad (1.9)$$

olarak verilir. Burada  $\mathbf{B}(0)$  süperiletken yüzeydeki manyetik alan,  $x$  ise yüzeyden içe doğru olan uzaklıktır. Bu çözüme göre manyetik alan süperiletken yüzeyde eksponansiyel olarak perdelenir. Yani manyetik alan tamamen dışlanmayıp London girme derinliğine,  $\lambda$ , bağlı olarak bir miktar malzeme içerisine sızmış olur. Bu durum Şekil 1.4'de şematik olarak gösterilmiştir. Ayrıca London girme derinliği sıcaklık arttıkça artan bir değişken olup sıcaklık bağımlılığı aşağıdaki ifade ile verilir.

$$\lambda(T) = \lambda(0) [1 - (T/T_c)^4]^{-1/2} \quad (1.10)$$

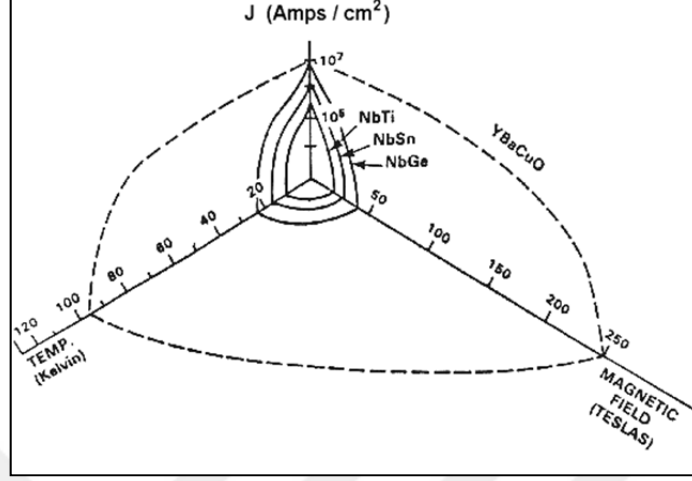


Şekil 1.4. Manyetik alanın bir süperiletken örneğe sızması (Mourachkine, 2004)

London girme derinliği metaller için yaklaşık 500 Å civarındadır. Bulk tipi bir malzeme için bu değer çok küçük olduğundan bulk tipindeki bir malzeme

süperiletken durumda mükemmel diyamanyetizma durumunu sergiler. Bu açıdan süperiletkenlikte Meissner etkisi ve mükemmel diyamanyetizma birbirini çağrıştıran iki terimdir.

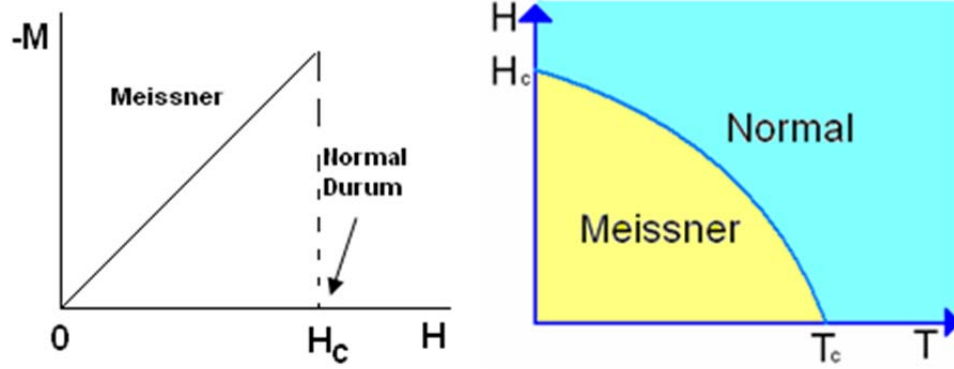
Sıfır direnç ve mükemmel diyamanyetizma gibi süperiletkenliğin iki özelliğinin korunabilmesi için süperiletken malzemenin kritik sıcaklık, kritik alan ve kritik akım yoğunluğu dediğimiz üç parametre sınırları içerisinde bulunmalıdır. Bu üç parametrenin herhangi birinin kritik değeri aşıldığında süperiletkenlik durumu ortadan kalkmaktadır. Öncelikle bir malzemenin süperiletken olabilmesi için belirli bir sıcaklığın altına kadar soğutulması gerekir. Bu sıcaklığa kritik geçiş sıcaklığı ya da kısaca kritik sıcaklık denir ve  $T_c$  ile gösterilir. Örneğin metalik civada kritik sıcaklık  $T_c = 4.2$  K'dir. Kritik sıcaklığın altındaki bir sıcaklıkta süperiletken durumda tutulan bir malzemeye manyetik alan uygulandığını düşünelim. Manyetik alanın kritik manyetik alan dediğimiz ve  $H_c$  ile gösterilen alan değerini aştığı takdirde malzemedeki süperiletken durum ortadan kalkmaktadır. Örneğin alüminyumun  $H_c$  değeri 0.01 T civarındayken kurşunda bu değer 0.08 T'dir. Süperiletkenliği manyetik alanla bozabileceğimiz gibi akımla da bozabiliriz. Bir süperiletken malzemenin her sıcaklıkta taşıyabileceği maksimum bir akım yoğunluğu vardır. Bu değere kritik akım yoğunluğu denir ve  $J_c$  ile gösterilir. Bu değer aşıldığında malzemedeki süperiletken faz kaybolur. Her malzemenin kendine özgü kritik sıcaklık, manyetik alan ve akım yoğunluğu değeri vardır. Bu değerlerin altında kalan bölge her malzemenin süperiletken davrandığı bölgeyi oluşturur. Bu durum Şekil 1.5'te YBaCuO, NbTi, NbSn ve NbGe için verilmiştir.



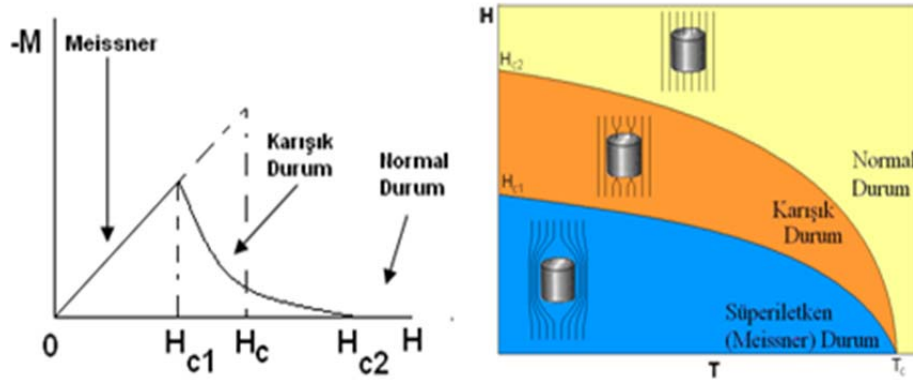
Şekil 1.5. Bazı malzemeler için süperiletken bölgeler  
(<http://www.futurescience.com/manual/sc500.html>)

### 1.2.3. I. Tip ve II. Tip Süperiletkenler

Süperiletkenleri manyetik alan altındaki davranışlarına göre I. Tip ve II. Tip olarak iki gruba ayırırız. I. Tip süperiletkenlerde kritik manyetik alan ( $H_c$ ) değerinin altındaki manyetik alan değerlerinde Meissner etkisi gözlenir. Kritik manyetik alan değeri aşıldığında ise süperiletkenlik kaybolur. II. Tip süperiletkenlerde ise alt kritik alan,  $H_{c1}$  ve üst kritik alan,  $H_{c2}$ , olmak üzere iki farklı kritik alan değeri vardır. Uygulanan manyetik alan alt kritik alandan küçükse Meissner etkisi gözlenir. Uygulanan alan alt kritik alandan büyük, üst kritik alandan küçükse malzeme içerisine manyetik alan kuantumlu vorteksler şeklinde nüfuz etmeye başlar. Ancak malzeme içerisindeki süperiletkenlik faz korunur. Süperiletkenlerdeki bu duruma vorteks durumu, karışık durum ya da Shubnikov fazı gibi çeşitli isimler verilir. Alan değeri üst kritik alanı aştığı takdirde ise süperiletkenlik ortadan kaybolur. I. Tip ve II. Tip süperiletkenlerdeki manyetizasyon-manyetik alan ve manyetik alan-sıcaklık ilişkisi Şekil 1.6 ve Şekil 1.7’de sırasıyla verilmiştir.



Şekil 1.6. I.Tip süperiletkenlerde manyetik alan-manyetizasyon ve sıcaklık manyetik alan eğrileri (<http://libratez.cu.edu.tr/tezler/9772.pdf>)

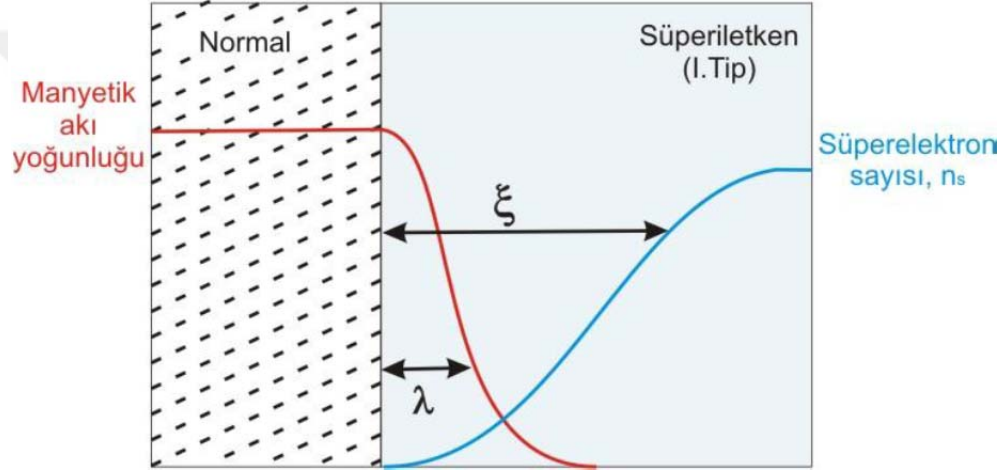


Şekil 1.7. II.Tip süperiletkenlerde manyetik alan-manyetizasyon ve sıcaklık manyetik alan eğrileri (<http://libratez.cu.edu.tr/tezler/9772.pdf>)

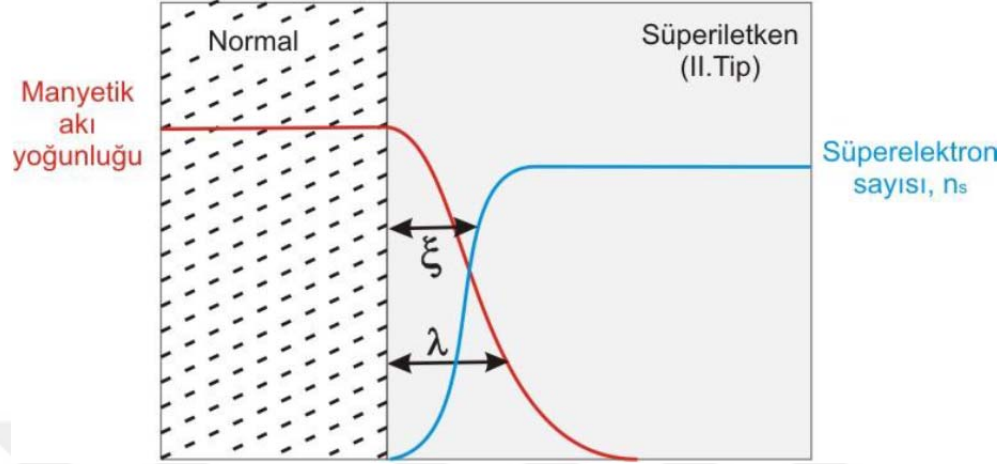
1950 yılında V.L. Ginzburg ve L.D. Landau geliştirdikleri teoriyle süperiletkenlik durumu için bir dalga fonksiyonu niteliğinde olan bir düzen parametresi belirlediler. Bu düzen parametresi eş uyum uzunluğu (koherens uzunluk),  $\zeta$ , olarak verilen bir uzaklık boyunca etkilidir. Örneğin bir malzeme bir süperiletken bölge ve bir normal bölgeye sahip olması durumunda süperiletken özelliklerin birçoğu süperiletken bölgeden normal bölgeye geçtikten sonra kademeli olarak azalarak eş uyum uzunluğu sonunda kaybolur. Eş uyum uzunluğu  $\zeta$ , ile London nüfuz derinliğinin,  $\lambda$  birbirine oranı Ginzburg-Landau (GL)



parametresi olarak bilinir ve  $\kappa = \lambda/\xi$  'dir. I.tip süperiletkenlerde  $\kappa < \frac{1}{\sqrt{2}}$  iken, II. Tip süperiletkenlerde  $\kappa > \frac{1}{\sqrt{2}}$  durumu geçerlidir. Buna göre nüfuz derinliği eş uyum uzunluğunda küçükse malzeme I. Tip, nüfuz derinliği eş uyum uzunluğundan büyükse malzeme II. Tip süperiletken olarak tanımlanır. Süperiletkenlerde malzeme sınırındaki uyum uzunluğu ve nüfuz derinliğinin birbirine göre durumları Şekil 1.8-9'da I. ve II. Tip için sırasıyla verilmiştir.



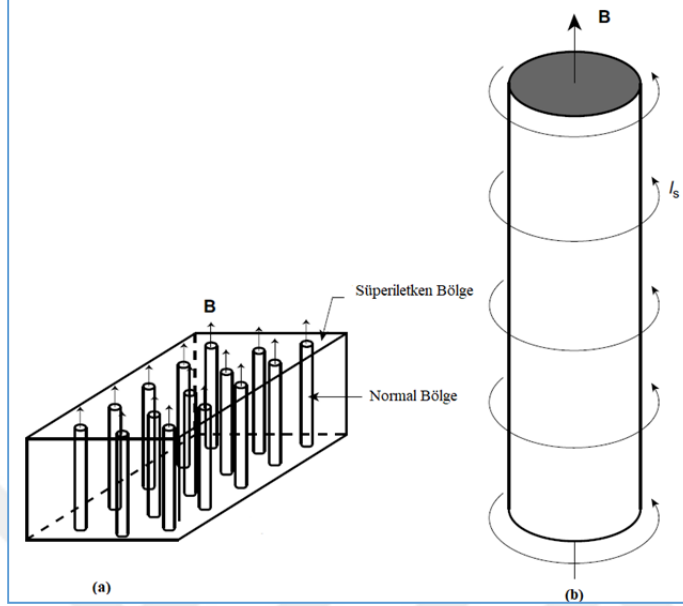
Şekil 1.8. I. Tip süperiletkenlerde sınır bölgesindeki uyum uzunluğu ve girme derinliği (<http://library.cu.edu.tr/tezler/8864.pdf>)



Şekil 1.9. II. Tip süperiletkenlerde sınır bölgesindeki uyum uzunluğu ve girme derinliği (<http://library.cu.edu.tr/tezler/8864.pdf>)

#### 1.2.4. Vorteks Durumu

II. Tip süperiletkenlerde manyetik alanın alt kritik alandan büyük üst kritik alandan küçük olduğu duruma ( $H_{c1} < H < H_{c2}$ ) vorteks durumu, karışık durum ya da Shubnikov fazı denir. Süperiletken bir malzeme bu durumdayken uygulanan manyetik alan malzemedan dışlanmayıp vorteksler (girdaplar) halinde malzemeye sızır. Her bir vorteks, ortasında manyetik alanın olduğu, süperiletken düzen parametresinin sıfır olduğu normal bölge, çevresinde ise süperiletken akımların dolaştığı mikroskobik bir silindir olarak düşünülebilir. Ayrıca her bir vorteks değeri  $2,07 \times 10^{-15} \text{ T.m}^2$  olan manyetik akı kuantumu,  $\Phi_0$ , taşır. İdeal homojen bir süperiletkende vortekslerin malzeme içerisindeki dizilimi üçgensel örgü şeklinde olup Abrikosov örgüsü adını alır. II. Tip süperiletkenlerde vortekslerin varlığı, kuantize oluşu ve malzeme içerisinde kristal örgüdeki atomlar gibi dizilmesi A. Abrikosov tarafından önerilmiştir. Bu öngörü Abrikosov'a 2003 yılında Nobel Ödülü kazandırmıştır. Şekil 1.10'da II. Tip bir süperiletkendeki vorteks yapısı şematik olarak verilmiştir.



Şekil 1.10. (a) II. Tip bir süperiletkendeki vorteks yapısı (b) Her bir vorteksteki manyetik alanın geçtiği normal bölge ve çevresindeki süper akımlar (Ford, 2004)

Silindir şeklindeki her bir vorteksin yarıçapı uyum uzunluğu,  $\xi$ , mertebesindedir. Vortekslerin çevresindeki akımlar da yarıçapı nüfuz derinliği,  $\lambda$ , civarında olan alanda akar. Manyetik alan artıkça malzeme içerisindeki vortekslerin sayısı artar.  $H_{c2}$  değerinde ise vorteksler tüm malzemeyi kapsar ve malzeme normal duruma geçer.

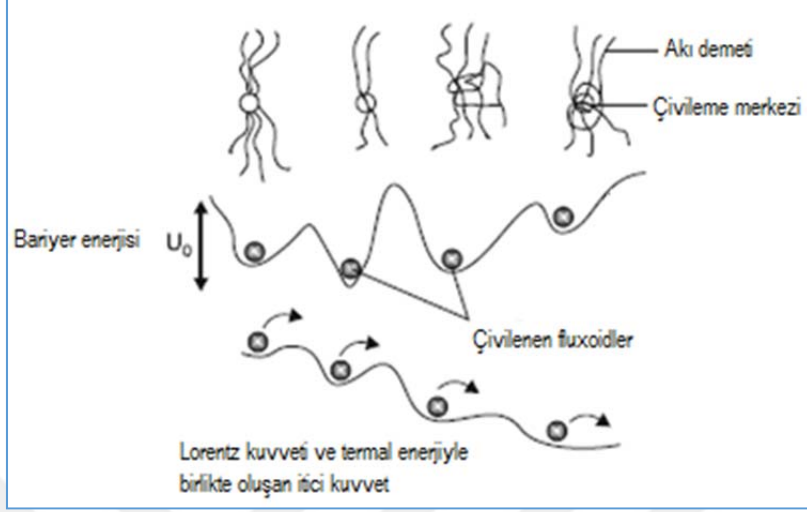
### 1.2.5. Akı Çivilemesi ve TAFF

II. Tip süperiletkenlerde alt kritik değer üstündeki manyetik alan değerinde malzeme içerisinde vortekslerin oluştuğunu ancak süperiletkenliğin devam ettiğini biliyoruz. Malzeme bu durumdayken malzemedeki bir akım geçirilirse Lorentz kuvvetinden dolayı ( $F_L = \mathbf{J} \times \mathbf{B}$ ), akı çizgileri hareket edecektir. Akı çizgilerinin hareketi malzeme içerisinde bir elektrik alan üretilmesine yol açar. Bu durum da enerji kaybının ve direncin oluşması demektir. Malzeme içerisindeki

Lorentz kuvvetini yenmeye çalışan mekanizmalara çivileme kuvvetleri denir. Çivileme kuvvetleri safsızlıklar, dislokasyon bölgeleri ve tanecikleri arası sınır bölgeleri gibi çivileme merkezleri tarafından oluşturulur. Çivileme merkezlerin oluşturduğu kuvvetler yeterince güçlüyse malzeme içerisinde akı çizgisi hareketi minimum olacak ve enerji kaybı azalacaktır. Ancak en iyi çivileme durumunda bile direnç sıfır olmaz. Bu durumun sebebi sıcaklıkla birlikte akı çizgilerinin termal olarak uyarılmasındandır. Anderson-Kim akı sürüklenmesi modeline göre herhangi bir sıcaklıkta yeterli bir akım durumunda akı çizgileri bir çivileme noktasından diğerine zıplayabilir. Bu durum aşağıdaki denklemlerle verilir.

$$R = \nu_0 e^{-U/kT} \quad (1.11)$$

Burada  $R=Z$ ıplama oranı,  $\nu_0$  akı çizgilerinin titreşim frekansı,  $U$  aktivasyon enerjisi (çivileme bariyer enerjisi) ve  $k$  Boltzman sabitidir. Akımla birlikte oluşan Lorentz kuvveti termal enerjiyle birleşerek akı çizgilerinin bir çivileme merkezinden diğerine zıplamasına neden olmaktadır. Bu durum Şekil 1.11'de şematik olarak verilmiştir.



Şekil 1.11. Akı çivilemesi ve Lorentz kuvveti ve termal enerjiyle birlikte oluşan itici kuvvetin çivilemeyi bozması (Saxena, 2010).

Anderson-Kim akı sürüklenmesi modelinde akı hareketinin neden olduğu elektrik alan ifadesi şöyle verilir.

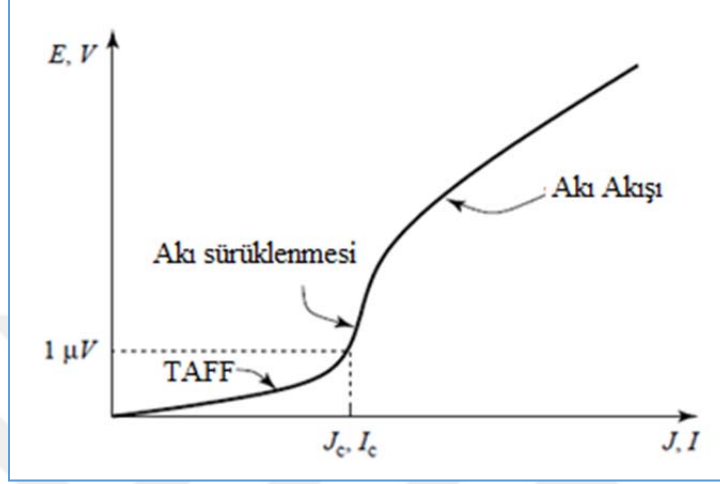
$$E(J) = 2 \rho_c J_c \exp(-U / k_B T) \sinh(J U / J_c k_B T) \quad (1.12)$$

Burada  $J_c$  kritik akım yoğunluğu,  $\rho_c$   $J = J_c$  'deki özdirenç,  $U(B, T)$  ise akı zıplamasının aktivasyon enerjisini göstermektedir. Malzemedeki geçen akım miktarına göre  $J > J_c$  için akı akışı,  $J \ll J_c$  için termal aktiviteli akı akışı (TAFF) ve  $J \approx J_c$  için akı sürüklenmesi bölgeleri oluşur. Her bir bölgedeki direnç davranışı Denklem (1.13)'de ve elektrik alan-akım grafiği de Şekil 1.12'de verilmiştir.

$J_1 = J_c k_B T / U$  olmak üzere;

$$\begin{aligned} \rho &= (2 \rho_c U / k_B T) \exp(-U / k_B T) = \rho_{TAFF} \quad J \ll J_1 \text{ için TAFF} \\ \rho &= \rho_c \exp[(J / J_c - 1) U / k_B T] \alpha \exp(J / J_1) \quad J \approx J_c \text{ için akı sürüklenmesi} \\ \rho &= \rho_{FF} (1 - J_c^2 / J^2)^{1/2} \quad J > J_c \text{ için akı akışı} \end{aligned} \quad (1.13)$$

olarak verilir.

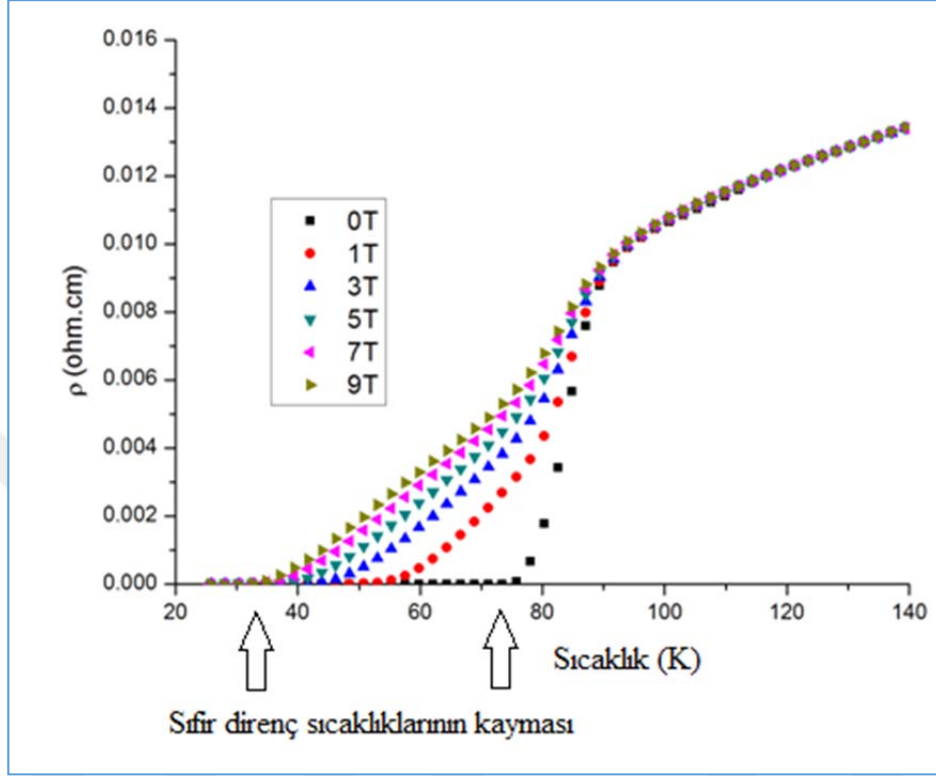


Şekil 1.12. Elektrik alan-akım ya da voltaj-akım grafiklerindeki TAFF, akı sürüklenmesi ve akı akışı bölgeleri (Fosheim, 2004).

Yüksek sıcaklık süperiletkenlerde (HTSCs) düşük akımlarda bile TAFF'dan dolayı direnç ortaya çıkmaktadır. TAFF bölgesi için direnç ifadesi Denklem (1.14)'de verilir.

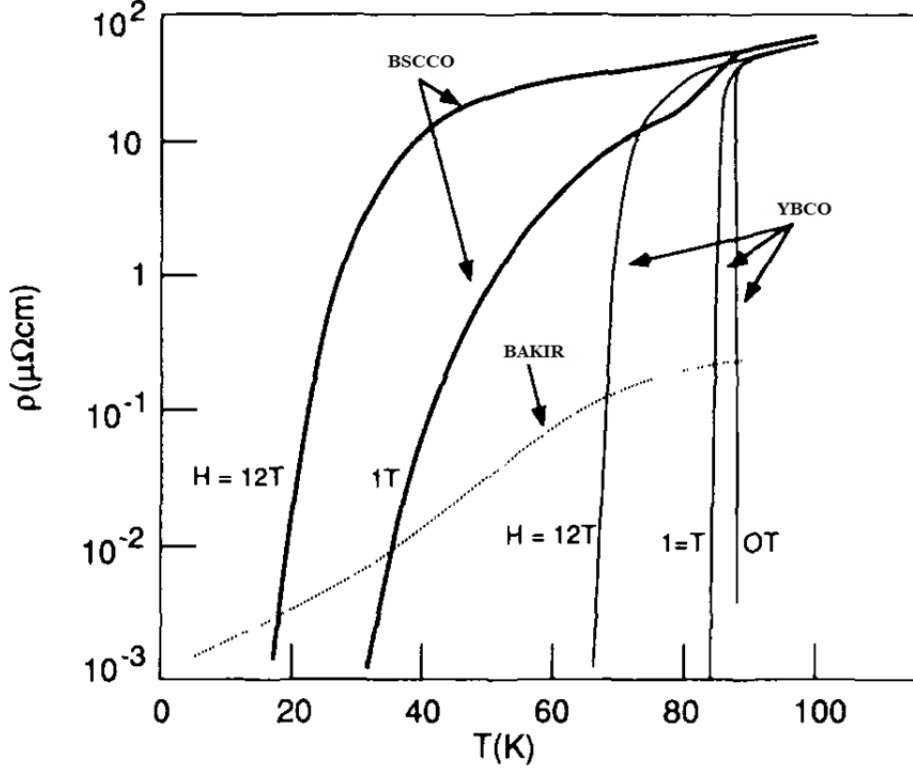
$$\rho = \rho_0 \exp(-U/k_B T) \quad (1.14)$$

Burada  $U$  çivileme ya da aktivasyon enerjisi,  $\rho_0$  eksponansiyel faktör ve  $k_B$  Boltzman sabitidir. Manyetik alan altında yapılan direnç sıcaklık ölçümlerinde TAFF'dan kaynaklı enerji harcanmasından dolayı süperiletkenlik geçiş sıcaklığının altında direnç eğrisi genişleyerek sıfır direnç sıcaklığı düşük sıcaklıklara doğru kayar. Örneğin  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{0.9}\text{Na}_{0.1}\text{Cu}_2\text{O}_y$  süperiletkeni için sıfır direnç sıcaklığının manyetik alanla birlikte düşmesi Şekil 1.13'de verilmiştir.



Şekil 1.13.  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{0.9}\text{Na}_{0.1}\text{Cu}_2\text{O}_y$  süperiletkeninde farklı manyetik alanlarda direnç-sıcaklık ilişkisi (<http://libratez.cu.edu.tr/tezler/9772.pdf>)

Şekle göre  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{0.9}\text{Na}_{0.1}\text{Cu}_2\text{O}_y$  süperiletkeninde manyetik alan yokluğunda sıfır direnç sıcaklığı 78 K civarında iken manyetik alanın artmasıyla birlikte 1 T'de 58 K'ye, 9 T'de ise 35 K'lere kadar düşmektedir. Manyetik alan altındaki bu direncin ortaya çıkması süperiletkenlerin teknolojik olarak geniş çapta kullanılmasının önündeki en büyük engeldir. Öyle ki manyetik alanın artmasıyla birlikte süperiletkenlerde ortaya çıkan bu direnç bakırın direncini bile aşabilmektedir. Bu durum Şekil 1.14'de verilmiştir.



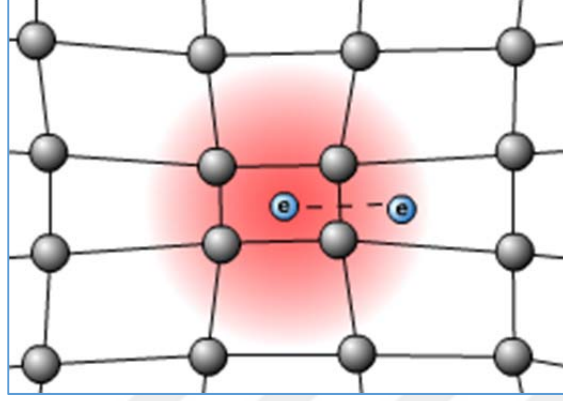
Şekil 1.14. Çeşitli yüksek sıcaklık süperiletkenlerde manyetik alan altındaki elektriksel dirençleri ve bakıra göre durumu (Sheahen, 2002)

Şekil 1.14'e göre BSCCO süperiletkenini 12 T alan altındaki uygulamalarda bakır yerine kullanmak isterseniz bakırın direncinden BSCCO süperiletkenini bakırın direncinden küçük olduğu 20 K'lere kadar soğutmanız gerekmektedir. Örneğin 40 K'de bakırın öz direnci BSCCO süperiletkeninin 1T'deki öz direncinden daha düşüktür. Bu örnekleri YBCO için de çoğaltabiliriz. Sonuç olarak manyetik alan uygulamalarında bakır yerine yüksek sıcaklık süperiletkenleri kullanmak akı hareketinden kaynaklanan kayıplar sebebiyle çok da uygun olmamaktadır. Bu çerçevede süperiletkenliğin geniş çapta kullanılmasının sağlanması için bu tür problemlerin çözülmesi elzemdir.



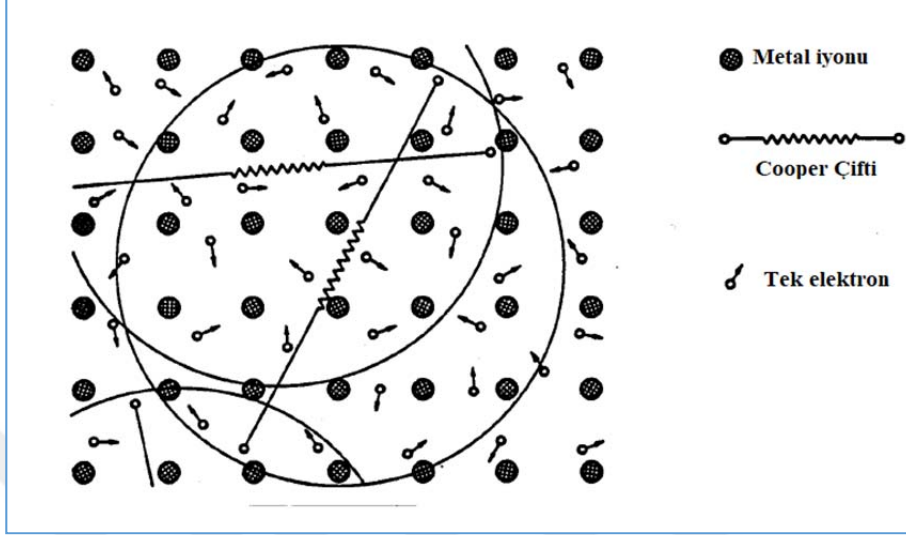
### 1.2.6. Süperiletkenliğin Temel Teorisi

Doğada fermiyon ve bozon olmak üzere iki tür parçacık vardır. Bir parçacığın fermiyon ya da bozon olması spininin büyüklüğüne bağlıdır.  $\frac{1}{2}$  gibi buçuklu spine sahip parçacıklar fermiyon, 0 ya da 1 gibi tamsayı spine sahip parçacıklara da bozon denir. Fermiyonlar Fermi-Dirac istatistiğine uyarken bozonlar ise Bose-Einstein istatistiğine uyularlar. Bazı durumlarda fermiyonlar bozona dönüşebilirken bozonlar asla fermiyonlara dönüşmezler. Fermiyonlardan oluşan bir sistemin bozonlara dönüşmesi durumunda uyacakları istatistik de değişeceğinden sistem yeni bir faza geçmektedir. Süperiletkenlik durumu da tam da böyle bir durumdur. Elektronlar spini  $\frac{1}{2}$  olan fermiyonlardır. İki elektron arasındaki çekici bir etkileşme olup bir çift oluşturduklarında elektronlar spin büyüklüklerini 1 ya da 0 yaparak bir bozon yapısı oluştururlar. Artık bu iki elektron fermiyon gibi davranmayıp bir bozon gibi davranacaklarından sistemin özellikleri radikal olarak değişmektedir. İşte kritik geçiş sıcaklığında oluşan bu durum sistemde sıfır direnç ve Meissner etkisi gibi iki özelliğin ortaya çıkmasına neden olmaktadır. İki elektronun arasında çekici bir etkileşmenin olması için aralarındaki Coulomb itme kuvvetini yenecek bir aracının olması gerekir. İşte bu aracı fononlardır. Dolayısıyla süperiletkenlik elektron fonon etkileşmesine dayalı bir olgudur. Bir elektron kristal içerisinde hareket ederken örgü içerisindeki pozitif iyonları kendini doğru çeker. Bu durumda elektron etrafında pozitif yük yoğunluğu meydana gelir. Örgüdeki bu kutuplanma nedeniyle örgüde hareket eden ikinci bir elektron da bu bölgeye çekilir. Bu kutuplanmanın neden olduğu çekici kuvvet, iki elektron arasındaki itici Coulomb kuvvetinden büyükse Coulomb etkisi perdelenerek iki elektron bir çift oluşturur. Bu elektron çiftine Cooper çifti denir. Şekil 1.15’de bir Cooper çiftinin şematik gösterimi verilmiştir. Cooper çiftinin bir arada tutmak için gerekli enerji  $10^{-4}$ - $10^{-3}$  eV gibi düşük bir değer olduğundan yüksek sıcaklıklarda termal dalgalanmayla birlikte Cooper çiftleri bozularak süperiletkenlik kaybolur. Bu nedenle süperiletkenlik düşük sıcaklıklarda ortaya çıkar.



Şekil 1.15. Cooper çiftlerinin şematik gösterimi  
(<http://libratez.cu.edu.tr/tezler/9772.pdf>)

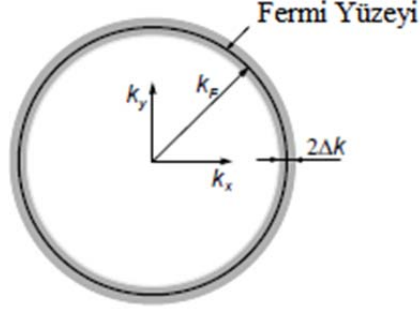
Bilindiği gibi Pauli dışarılama ilkesi gereğince iki elektron aynı durumu işgal edemez. Bu yüzden her bir elektronu temsil eden dalga fonksiyonları malzeme içerisinde gelişigüzel yönelmiş olup uyumlu bir birliktelik göstermezler. Ancak bozonlar aynı enerji durumunu işgal edebilirler. Süperiletken durumda çok sayıda elektron çifti bir araya gelip bozon yapısı oluşturarak aynı enerji durumunu paylaşır. Böylece bu elektron çiftlerini temsil eden dalga fonksiyonları iç içe girererek malzeme boyunca uyumlu bir makro ölçekte bir dalga fonksiyonu oluştururlar. Bu yüzden süperiletkenlik durumu makroskopik kuantum olayı olarak da bilinir. Şekil 1.16'da bir metal içerisindeki tek elektronlar ve Cooper çiftleri şematik olarak verilmiştir.



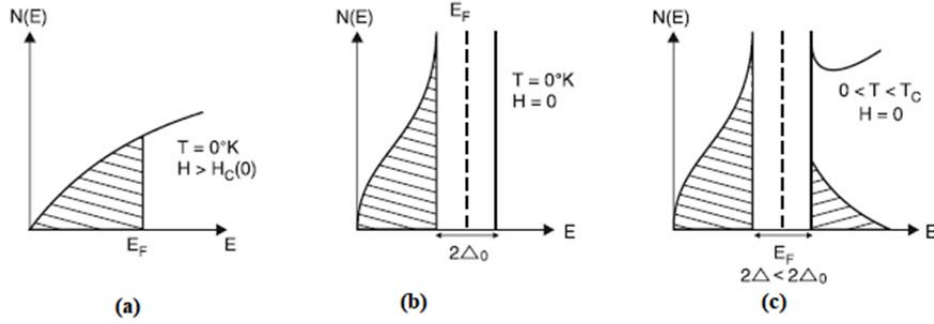
Şekil 1.16. Bir metal içerisindeki tek elektronlar ve Cooper çiftleri (<http://www.desy.de/~pschmues/Superconductivity.pdf>)

Elektron-fonon etkileşmesine dayanan süperiletkenliğin bu temel teorisi, 1957 yılında J. Bardeen, L. N. Cooper ve J.R. Scieffer tarafından “Microscopic Theory of Superconductivity” isimli çalışmalarıyla bilim dünyasına kazandırılmıştır. Bu teori, çalışmayı yapan bilim insanlarının soyadlarının baş harfleri alınarak “BCS” teorisi olarak adlandırılmıştır.

Şekil 1.17’de görüldüğü gibi BCS teorisine göre Fermi yüzeyine yakın elektronlar arasında Cooper çiftleri oluşur. Cooper çiftlerinin oluşmasıyla sistemin enerjisi azalır ve süperiletken duruma özgü enerji aralığı ortaya çıkar. Şekil 1.18’de normal durumdaki durum yoğunluğu ve süperiletken durumdaki durum yoğunluğu ve süperiletkenlikle birlikte ortaya çıkan enerji aralığı gösterilmektedir.



Şekil 1.17. BCS teorisine göre Fermi yüzeyine yakın  $2\Delta k$  katmanı içinde elektronlar Cooper çifti oluşturur (Mourachkine, 2004)



Şekil 1.18. (a) Normal durumdaki durum yoğunluğu (b) Mutlak sıfırda süperiletkenlerdeki durum yoğunluğu ve enerji aralığı (c) Süperiletken durumdaki sonlu bir sıcaklıktaki durum yoğunluğu ve enerji aralığı (Saxena, 2010)

Şekil 1.18b’de görüldüğü gibi mutlak sıfırda elektronlar enerji aralığının altındaki alanı işgal ederler. Bu enerji aralığını da aşmak için  $2\Delta_0$  kadar bir enerjiye ihtiyaç duyarlar. Bu enerji Cooper çiftlerinin bağlanma enerjisine karşılık gelir. Enerji aralığı sıcaklığa bağlı olup sıcaklığın artmasıyla birlikte Şekil 1.18c’de görüldüğü gibi küçülerek kritik sıcaklıkta,  $T_c$ , kaybolur. Mutlak sıfırda  $\Delta_0$  aşağıdaki ifadeyle verilir.

$$\Delta_0 = 4 \hbar \omega_D e^{-(2/g(E_f)V')} \quad (1.15)$$

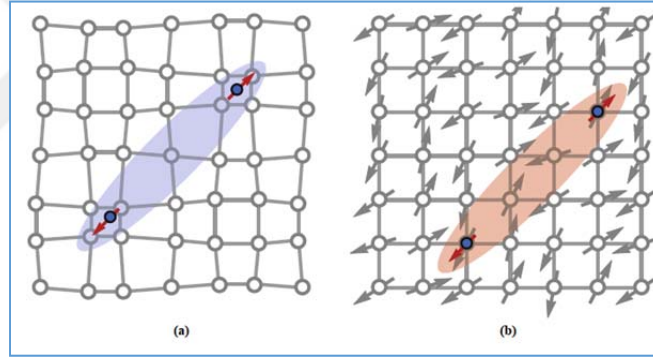
Burada,  $\omega_D$  Debye frekansı,  $g(E_f)$  normal metalin Fermi seviyesindeki durum yoğunluğu ve  $V'$  ise elektron örgü etkileşim potansiyelidir. Ayrıca BCS teorisi enerji aralığı ile kritik sıcaklık,  $T_c$ , arasındaki ilişkiyi Denklem (1.16) ile ifade etmişlerdir.

$$2\Delta_0 = 3.52 k_B T_c \quad (1.16)$$

Bilindiği gibi Debye frekansı, iyon kütlesiyle ters orantılıdır ( $\omega_D \sim M^{-1/2}$ ). Buradan da iyon kütlesinin artması Debye frekansının azalmasına dolayısıyla da  $\Delta_0$ 'ın azalmasına yol açar.  $\Delta_0$  azalırsa Denklem (1.16)'dan kritik sıcaklık da azalır. BCS teorisinden önce 1950 yılında E. Maxwell ve C.A. Reynolds civanın izotoplarının farklı kritik sıcaklığa sahip olduklarını bulmuşlardı. İzotop etkisi olarak bilinen bu çalışmada civanın ortalama atom kütlelerinin artmasıyla birlikte süperiletkenliğe geçiş sıcaklığının düştüğünü raporlamışlardı. Ağır izotopların Debye frekansları daha küçük olduğundan, ağır izotoplar daha düşük kritik sıcaklığa sahiptir. Esasında izotop etkisi süperiletkenliğin elektronlarla örgü titreşimleri arasındaki etkileşimden kaynaklanabileceği fikrini ortaya çıkartarak BCS teorisinin ilham kaynağı olmuştur.

BCS teorisi, Denklem (1.15) ve (1.16) ile birlikte süperiletkenliğin oluşumunu örgü titreşimlerine bağlamış ve kritik sıcaklığa 30 K gibi bir teorik limit getirmiştir. BCS teorisinin deneyle mükemmel şekilde uyumluluğu herkesce kabul edilmesine sebep olmuş ve çok uzun yıllar süperiletkenlik düşük sıcaklıklarda ortaya çıkan bir olgu olarak kabul edilmiştir. Bu durum 1986 yılında J. G. Bednorz ve K. A. Müller tarafından ilk yüksek sıcaklık süperiletkenin bulunmasıyla ortadan kalkmıştır. Bu keşiften kısa bir süre sonra kritik sıcaklığı azotun kaynama noktası olan 77 K'nin de üstünde birçok yüksek sıcaklık süperiletken bulunmuştur. Böylece soğutma işlemlerinde helyumdan çok daha ucuz olan sıvı azotun kullanılması yolu açılmış ve süperiletkenlerin teknolojide uygulama sahası genişlemiştir. Keşfedilen bu malzemelerdeki yüksek kritik geçiş sıcaklığı BCS

teorisinin sorgulanmasına yol açmıştır. Böylece yeni süperiletkenlerin artmasıyla birlikte süperiletkenler iki başlı sınıfa ayrılmıştır. BCS teorisiyle uyum gösteren ve kritik sıcaklıklarının çoğu 30 K'nin altında olan metal ve alaşımlardan oluşan süperiletkenlere geleneksel süperiletkenler denir. BCS teorisiyle uyum göstermeyen, aralarında yalıtkan tabakaların da olduğu tabakalardan oluşan ve kritik sıcaklıkları 150 K'yi bulabilen süperiletkenlere de geleneksel olmayan süperiletkenler denir. Geleneksel olmayan süperiletkenlerde süperiletkenlik oluşumu için yine Cooper çiftleri gereklidir. Ancak geleneksel süperiletkenlerden farklı olarak Cooper çiftlerine aracılık eden fononlar değil magnonlar gibi spin etkileşimlerden ortaya çıkan yarı parçacıklardır (quasi-particle). Bu durum Şekil 1.19'da şematik olarak verilmiştir.

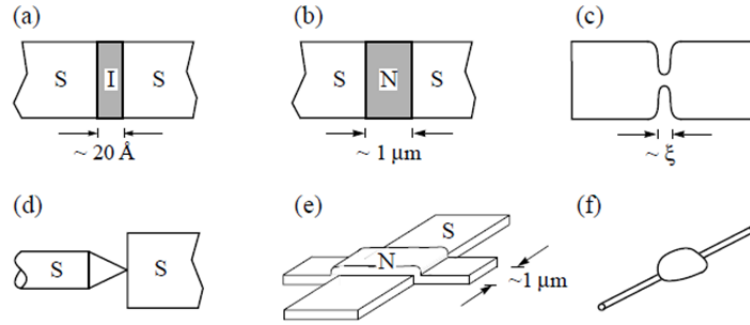


Şekil 1.19. Fonon aracılı eşleşme ile magnon aracılı eşleşme arasındaki benzerlik. (a) Geleneksel bir süperiletkendeki Cooper eşleşmesinin fononlar aracılığıyla gerçekleşmesi. (b) Geleneksel olmayan bir süperiletkendeki Cooper eşleşmesinin magnonlar aracılığıyla gerçekleşmesi (Johnson, 2015)

### 1.2.7. Josephson Etkisi

1962 yılında B. D. Josephson iki süperiletkenin arasına konulan ince bir yalıtkan bariyerle ayrılmış bir eklem yapısını teorik olarak analiz etti. Josephson, yalıtkan bariyerin yeterince ince olması durumunda (yaklaşık 10 nm) Cooper çiftlerinin bir süperiletkenden diğerine tünellenebileceğini buldu. Voltaj olmadan

Cooper çiftlerinin tünellemesi sonucu bariyerden akım akması olayına DC Josephson Etkisi denir. Josephson ayrıca bariyere bir DC voltajı uygulandığında bir süperiletkenden diğerine frekansı  $\omega = 2 eV/\hbar$  olan bir AC süperakımın da geçeceğini önerdi. Bariyere uygulanan DC voltajı sonucu AC akımı oluşması olayı da AC Josephson etkisi olarak bilinir. Josephson bu çalışmaları sonucu 1973 yılında Nobel ödülünü almıştır. Josephson etkisi kullanıldığı SQUIDS, mikro dalga detektörleri ve hibrit MOSFET gibi birçok teknolojik uygulama vardır. Şekil 1.20'de Josephson etkisinin görülebildiği çeşitli yapılar verilmiştir.

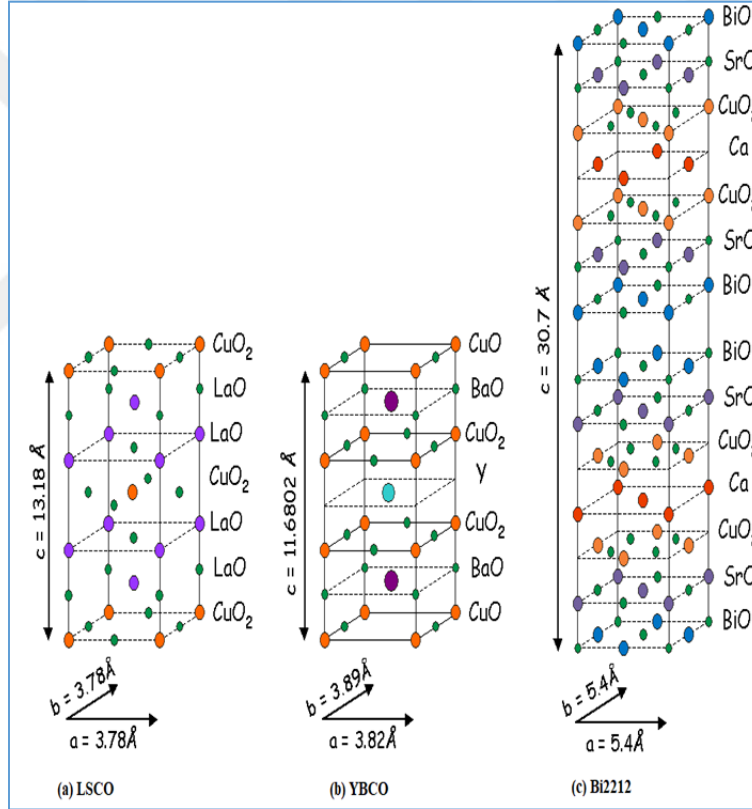


Şekil 1.20. Josephson etkisinin görülebildiği çeşitli yapılar. (a) süperiletken yalıtkan süperiletken (SIS) tünelleme eklemi, (b) süperiletken normal süperiletken (SNS) sandviç, (c) mikroköprü, (d) nokta-temas eklemi, (e) normal ve süperiletken filmden oluşan yapı, (f) süperiletken bir tel üstündeki küçük bir lehim damlası (Mourachkine, 2004)

### 1.3. Bakır Oksit Tabanlı Süperiletkenler

1986 yılında J. G. Bednorz ve K. A. Müller LaBaCuO sisteminde 30 K kritik sıcaklığa sahip süperiletkenliği buldular. 1987 yılında Nobel ile ödüllendirilen bu keşif, süperiletkenliği düşük sıcaklıklara hapsedilmiş, BCS teorisiyle çok iyi açıklanan ve sadece laboratuvarında çalışılan bir konu olmaktan çıkartarak teknolojik uygulamaların önünü açmıştır. Bu keşifle birlikte süperiletkenlik araştırmaları büyük bir ivme kazanmış ve birçok bakır oksit tabanlı süperiletken malzeme bulunmuştur. Bakır oksit tabanlı süperiletkenler kupratlar,

seramik süperiletkenler ya da yüksek sıcaklık süperiletkenleri gibi isimlerle de anılır. Bakır oksit tabanlı süperiletkenler tabakalı yapıda olup süperiletkenliğin ortaya çıktığı bakır oksit düzlemleri ve bu düzlemlere yük sağlayan LaO, BaO, CaO ve BiO gibi yalıtkan düzlemlerden oluşur. Bakır oksit düzlemlerinin sayısı arttıkça süperiletkenliğe geçiş sıcaklığı da artar. LSCO, YBCO ve Bi2212 kupratlarının kristal yapısı Şekil 1.21'de verilmiştir. Ayrıca Çizelge 1.1'de belli başlı bakır oksit tabanlı süperiletkenler ve bakır oksit düzlemleri sayısı ve kritik sıcaklıkları verilmiştir.



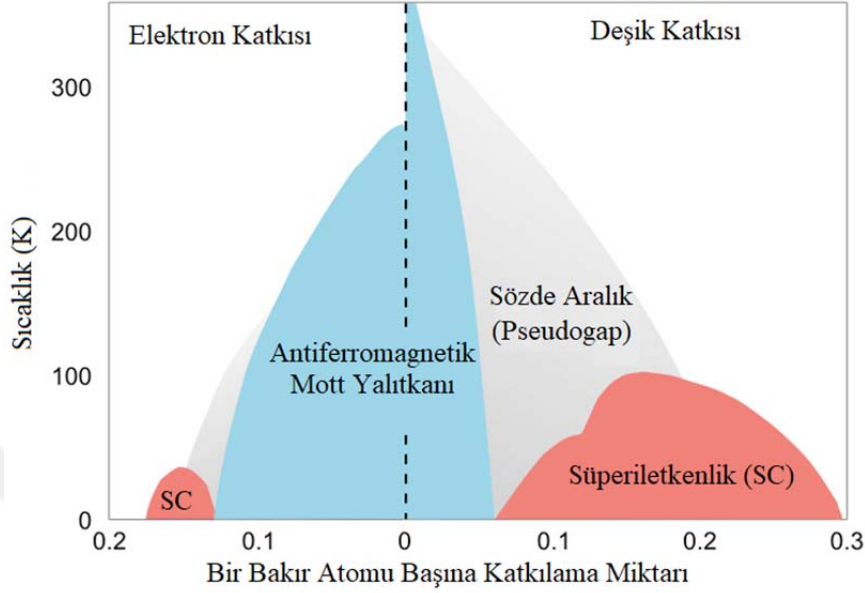
Şekil 1.21. (a) LSCO, (b) YBCO ve (c) Bi2212 süperiletkenlerinin kristal yapıları (<http://hoffman.physics.harvard.edu/materials/CuprateIntro.php>)



Bakır oksit tabanlı süperiletkenlerin katkısız ana bileşikleri antiferromanyetik Mott yalıtkanıdır. Mott yalıtkanı bant teorisine göre metalik olmasına rağmen sıfır sıcaklığa doğru iletkenliğinin kaybolduğu malzemelerdir. Yani Mott yalıtkanı bildiğimiz yalıtkindan tamamen farklıdır. Yalıtkanlarda iletkenlik Pauli dışlama ilkesi tarafından engellenirken Mott yalıtkanında ise elektron elektron arasındaki itici etkiden engellenir. Bakır oksit tabanlı bir Mott yalıtkanına elektron ya da deşik (hole) ile katkılama yaparsak süperiletkenlik fazını elde ederiz. Şekil 1.22’de bakır oksit tabanlı süperiletkenlerde elektron ve deşik katkılamasına bağlı olarak ortaya çıkan fazlar şematik olarak verilmiştir.

Çizelge 1.1. Bakır oksit tabanlı süperiletkenler ve bu yapıların kritik sıcaklıkları (Mourachkine,2004)

Süperiletken	CuO <sub>2</sub> düzlemi sayısı	T <sub>c</sub> (K)	Kısaltma ismi
La <sub>2-x</sub> Sr <sub>x</sub> CuO <sub>4</sub>	1	38	LSCO
Nd <sub>2-x</sub> Ce <sub>x</sub> CuO <sub>4</sub>	1	24	NCCO
YBa <sub>2</sub> Cu <sub>3</sub> O <sub>6</sub>	2	93	YBCO
Bi <sub>2</sub> Sr <sub>2</sub> CuO <sub>6</sub>	1	12	Bi2201
Bi <sub>2</sub> Sr <sub>2</sub> CaCu <sub>2</sub> O <sub>8</sub>	2	95	Bi2212
Bi <sub>2</sub> Sr <sub>2</sub> Ca <sub>2</sub> Cu <sub>3</sub> O <sub>10</sub>	3	110	Bi2223
Tl <sub>2</sub> Ba <sub>2</sub> CuO <sub>6</sub>	1	95	Tl2201
Tl <sub>2</sub> Ba <sub>2</sub> CaCu <sub>2</sub> O <sub>8</sub>	2	105	Tl2212
Tl <sub>2</sub> Ba <sub>2</sub> Ca <sub>2</sub> Cu <sub>3</sub> O <sub>10</sub>	3	125	Tl2223
TlBa <sub>2</sub> Ca <sub>2</sub> Cu <sub>4</sub> O <sub>11</sub>	3	128	Tl1224
HgBa <sub>2</sub> CuO <sub>4</sub>	1	98	Hg1201
HgBa <sub>2</sub> CaCu <sub>2</sub> O <sub>8</sub>	2	128	Hg1212
HgBa <sub>2</sub> Ca <sub>2</sub> Cu <sub>3</sub> O <sub>10</sub>	3	135	Hg1223

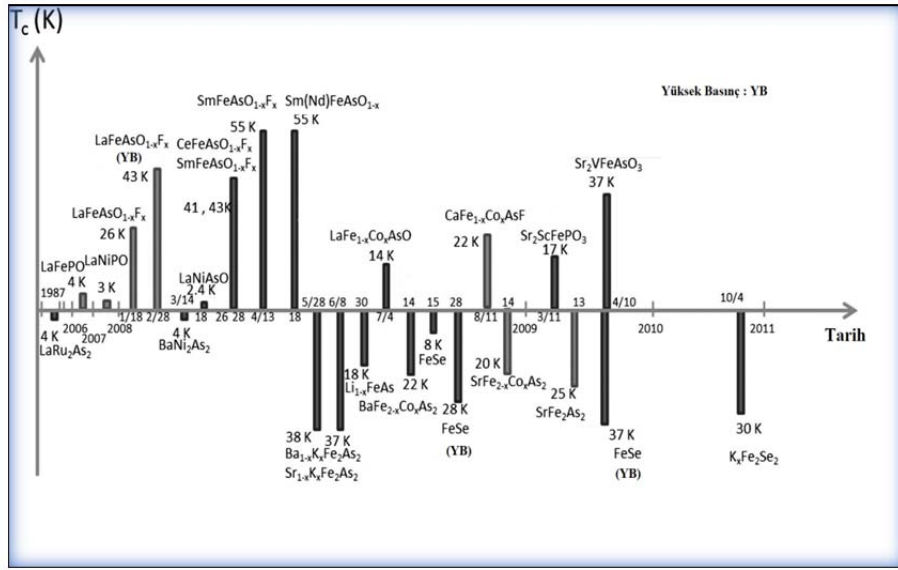


Şekil 1.22. Bakır Oksit Tabanlı Süperiletkenlerin Şematik Faz Diyagramı (<http://www.mrsec.umn.edu/research/seeds/2011/greven2011.html>)

#### 1.4. Demir Tabanlı Süperiletkenler

Flor katkılı LaFeAsO yapısında 26 K'de H. Hosono ve arkadaşları tarafından süperiletkenliğin bulunması bilim dünyası için sürpriz olmuştur. Bunun nedeni ise LaFeAsO yapısındaki yüksek manyetik momente sahip demirin olmasıdır. Shimizu ve arkadaşları 2001 yılında yaptıkları çalışmayla 20 GPa gibi yüksek bir basınç değeri ve 1.8 K gibi çok düşük bir sıcaklıkta demirin süperiletken olabileceğini buldular. Ayrıca biliyoruz ki demir doğada bolca bulunup insanlık tarihinin en önemli elementlerinden biridir. Bu çerçevelerden bakıldığında demir içerikli 26 K'de LaFeAsO yapısındaki süperiletkenliğin bulunması çok önemli bir gelişme olarak kabul edilebilir. H. Hosono ve arkadaşları kısa süre sonra LaFePO yapısındaki kritik geçiş sıcaklığını basınç altında 43 K'ye kadar çıkardılar. Bu çalışma kimyasal basınç dediğimiz katkılama yoluyla da sistemdeki kritik sıcaklığın artırılması fikrini doğurdu. Birkaç ay içerisinde birçok demir tabanlı süperiletken malzeme bulundu ve kritik sıcaklık Ren ve arkadaşları tarafından

samaryum katkılı  $\text{SmFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$  yapısında 55K'ye kadar çıkarıldı. Şekil 1.23'de demir tabanlı süperiletkenlerin ortaya çıkma tarihleri verilmiştir. Tarih ekseninin üst kısmında kalan malzemeler oksijen içeren demir arsenik tabanlı süperiletkenlerdir. Eksenin alt kısmında kalan malzemeler ise oksijen içermeyen demir arsenik ve demir selenyum tabanlı süperiletkenlerdir.

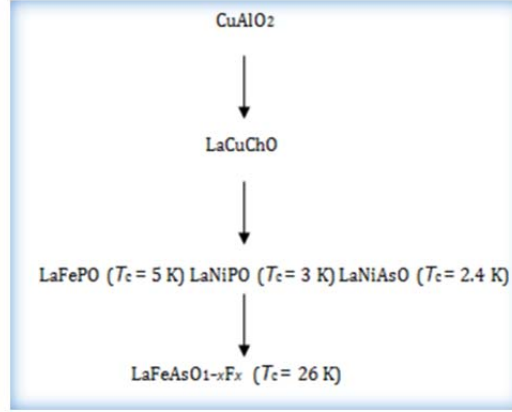


Şekil 1.23. Demir tabanlı süperiletkenlerin keşfedilme tarihleri (Wang, 2013)

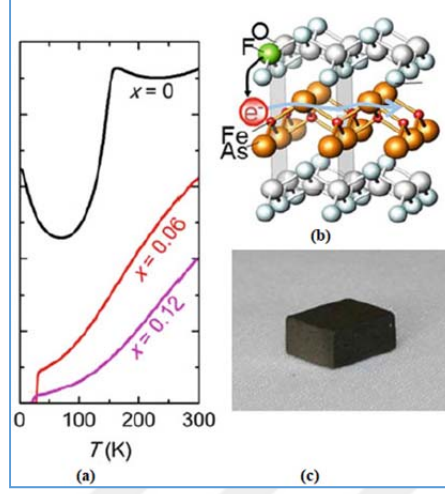
#### 1.4.1. Demir Tabanlı Süperiletkenlerin Ortaya Çıkış Süreci

Hosono ve arkadaşları 90'lı yıllarda şeffaf yarı iletken p tipi  $\text{CuAlO}_2$  çalışıyorlardı. Bu malzemeden hareket ederek  $\text{LaCuChO}$  (Ch: Kalkojen) yapısını keşfettiler. Daha sonra bu yapıdaki bakır yerine manyetik özellik gösteren Fe ve Mn katkılması yapmayı düşündüler. Burada ilginç olan durum, Hosono bu katkılmaları düşünürken süperiletkenlik fazı elde etme gibi bir amaçlarının olmamasıdır. Bir dizi deney sonucunda  $\text{Cu}^+$  yerine  $\text{Fe}^{+2}$  ya da  $\text{Ni}^{+2}$ ,  $\text{Ch}^{-2}$  yerine  $\text{P}^{-3}$  ya da  $\text{As}^{-3}$  katkılmaları yaparak kritik sıcaklıkları sırasıyla 5, 3 ve 2.4 K olan  $\text{LaFePO}$ ,  $\text{LaNiPO}$  ve  $\text{LaNiAsO}$  süperiletken malzemeleri buldular. Bu malzemelerin kritik sıcaklıklarının düşük olmasından dolayı çok da ilgi

çekmemiştir. LaFeAsO yapısında ise herhangi bir süperiletkenlik geçişi bulmadılar. Bunun üzerine doktora sonrası araştırmacı olarak çalışan Yoichi Kamihara LaFeAsO yapısını detaylı olarak çalışmaya başladı. Yapıyı oluşturan her element yerine çeşitli katkılar yaptı. La yerine Ca katkılması herhangi bir sonuç vermezken O yerine F katkılması, LaFeAsO<sub>1-x</sub>F<sub>x</sub> yapısında 26 K'de ortaya çıkan süperiletkenliği doğurdu. Bu keşif çok sayıda demir tabanlı süperiletken malzemenin bulunmasının yolunu açmıştır. LaFeAsO<sub>1-x</sub>F<sub>x</sub> ortaya çıkış süreci Şekil 1.24'de şematik olarak özetlenmiştir. Şekil 1.25'de ise LaFeAsO<sub>1-x</sub>F<sub>x</sub> yapısının direnç sıcaklık grafiği, kristal yapısı ve üretilen örneğin fotoğrafı görülmektedir.



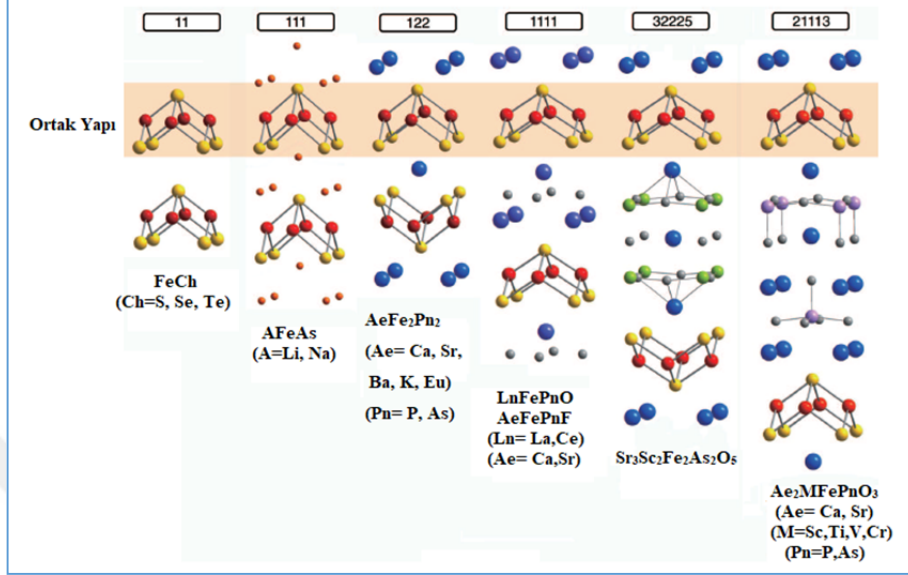
Şekil 1.24. LaFeAsO<sub>1-x</sub>F<sub>x</sub> süperiletkeninin ortaya çıkış süreci



Şekil 1.25.  $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$  yapısının (a) direnç sıcaklık grafiği, (b) kristal yapısı ve c) üretilen örneğin fotoğrafı (Wang, 2013)

#### 1.4.2. Demir Tabanlı Süperiletkenlerin Sınıflandırılması

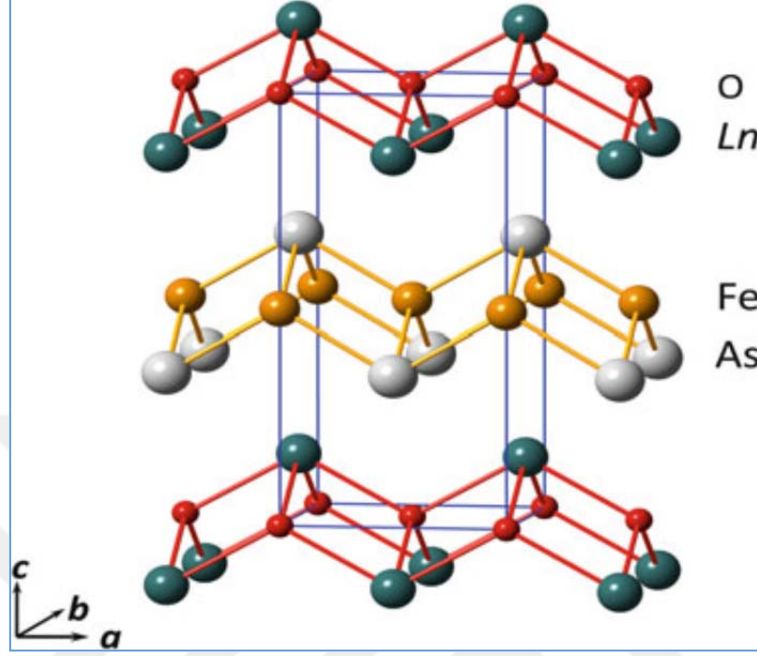
Demir tabanlı süperiletkenler, yapıyı oluşturan elementlerin molar oranlarına göre 1111-Tip, 111-Tip, 122-Tip, 11-Tip, 32225-Tip ve 21113-Tip şeklinde sınıflandırılır. Şekil 1.26'da her tipin kristal yapısı incelendiğinde FeCh/FePn tabakasının ortak olarak bulunduğu görülebilir.



Şekil 1.26. Demir tabanlı süperiletkenlerin kristal yapısı (Wang, 2013)

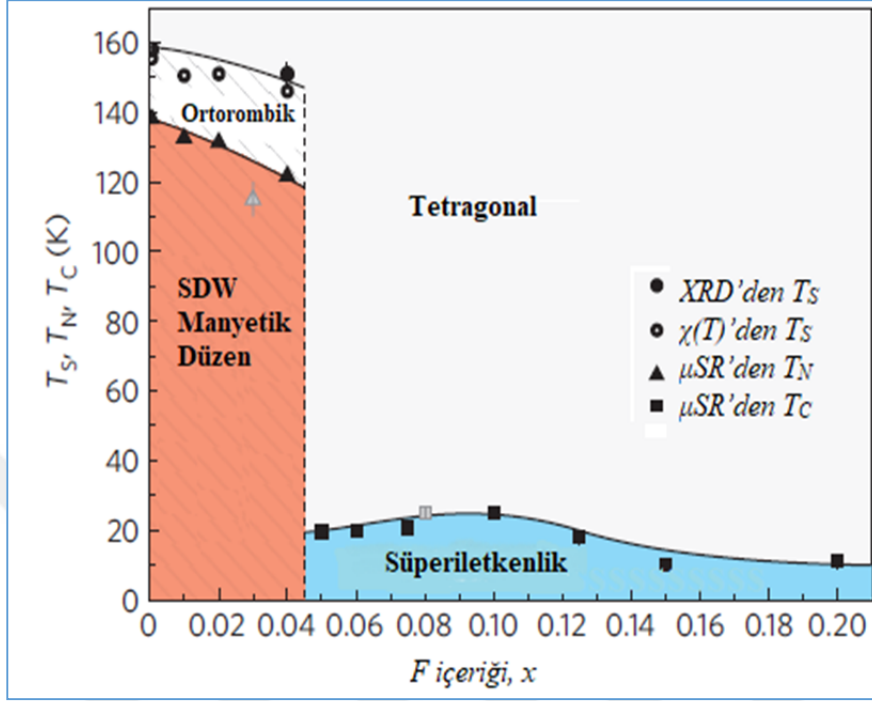
#### 1.4.2.1. 1111-Tip

1111-Tip yapısı ilk çıkan demir tabanlı süperiletkendir.  $\text{LnFePnO}$  genel formülünde var olan dört elementin de molar oranları da 1 olduğu için 1111-Tip adını alır. Burada Ln yerine La, Ce ve Sm gibi lantanitler olarak isimlendirilen nadir toprak elementleri gelir. Pn yerine ise As ve P gelir. Nikel tabanlı  $\text{LaNiPO}$  ve  $\text{LaNiAsO}$  yapıları da bu gruba dâhil edilebilir. Kristal yapıları  $P4/nmm$  uzay grubuna ait tetragonal yapıdaki  $\text{ZrCuSiAs}$  tipindedir. Şekil 1.27'de  $\text{LnFeAsO}$  sisteminin kristal yapısı verilmiştir. Şekilden de görüldüğü gibi  $\text{LnFeAsO}$  kristal yapısı c eksenini boyunca pozitif yüklü LnO katmanları ile negatif yüklü FeAs katmanlarının istiflenmesinden oluşur. Örgü parametreleri  $a=b=0.4 \text{ nm}$  ve  $c=0.8 \text{ nm}$  civarında olup LnO ve FeAs katmanları arasındaki mesafe ise  $1.8 \text{ \AA}$  mertebesindedir.  $\text{LnFeAsO}$  yapısındaki elementlerin değerlikleri  $\text{Ln}^{+3}$ ,  $\text{Fe}^{+2}$ ,  $\text{As}^{-3}$  ve  $\text{O}^{-2}$ 'dir.  $\text{Fe}^{+2}$  kationunun beş 3d orbitalindeki altı elektron da Fermi seviyesine katıldığından demirin 3d elektronları süperiletkenlikte kritik rol alır.



Şekil 1.27. LnFeAsO sisteminin kristal yapısı (Johnson, 2015)

Bilindiği gibi süperiletkenlik LaFeAsO yapısında değil flor katkılı LaFeAsO<sub>1-x</sub>F<sub>x</sub> yapısında ortaya çıkar. Burada LaFeAsO yapısı LaFeAsO<sub>1-x</sub>F<sub>x</sub> süperiletkeninin ana bileşiği olarak bilinir. Aslında demir tabanlı süperiletkenleri 1111-Tip ya da 11-Tip şeklinde sınıflandırırken ana bileşikler üstünden sınıflandırdık. Bu sınıflandırmada bazen ana bileşiklerin kendisi süperiletken iken (LaNiAsO, FeSe gibi) bazen de ana bileşiklerin kendisi antiferromanyetik davranış gösterirken elektron ya da deşik katkılması yapılarak süperiletkenlik faz elde edilir. İşte LaFeAsO<sub>1-x</sub>F<sub>x</sub> yapısında 26 K'de ortaya çıkan süperiletkenlik LaFeAsO ana bileşiğine elektron katkılmasının sonucudur. Bu durum Şekil 1.28'de verilmiştir.



Şekil 1.28. LaFeAsO<sub>1-x</sub>F<sub>x</sub> yapısının elektronik faz diyagramı (Luetkens, 2009)

LaFeAsO yapısı antiferromanyetik tipteki SDW manyetik düzene sahip olup 150-160K sıcaklıkları arasında tetragonal yapıdan ortorombik yapıya dönüşmektedir. Şekil 1.28'de *XRD*'den ve  $\chi(T)$ 'den belirlenen yapısal geçiş sıcaklıkları,  $T_s$ , verilmiştir. Ayrıca bu yapının  $\mu SR$  deneyleriyle belirlenen 140 K civarında Néel geçiş sıcaklığına sahiptir.  $F$  katkılmasının artmasıyla Néel geçiş sıcaklığı da düşer ve 0.04  $F$  oranında antiferromanyetik faz kaybolup süperiletkenlik faz ortaya çıkar. LaFeAsO<sub>1-x</sub>F<sub>x</sub> yapısı La yerine daha düşük iyonik çaplı Ce, Pr ve Sm gibi lantanitler kullanılarak daha yüksek kritik sıcaklığa ulaşılabilir. Çizelge 1.2'de her kullanılan lantanitle birlikte yapıdaki kritik sıcaklık ve yapısal geçiş sıcaklığının değişimi ve örgü sabitleri verilmiştir.

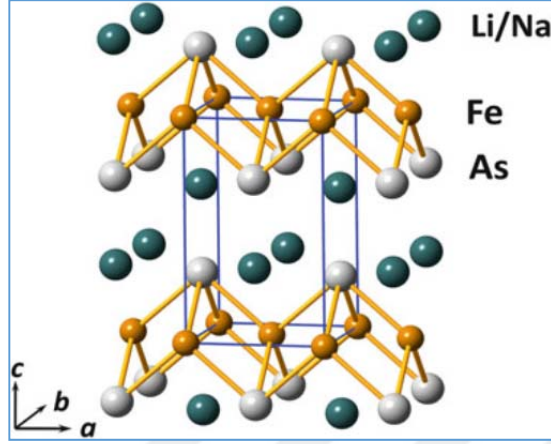


Çizelge 1.2. LnFeAsO yapısındaki Ln=La, Ce, Pr, Nd, Sm ve Gd için kritik sıcaklık, yapısal geçiş sıcaklığı ve örgü sabitlerinin değişimi (Johnson, 2015)

LnFeAsO	La	Ce	Pr	Nd	Sm	Gd
$T_c$ (K)	26	41	52	51.9	56	53.5
$T_s$ (K)	155	155	153	150	144	135
$a$ (Å)	4.035	3.996	3.985	3.940	3.940	3.915
$c$ (Å)	8.740	8.648	8.595	8.496	8.496	8.435

#### 1.4.2.2. 111-Tip

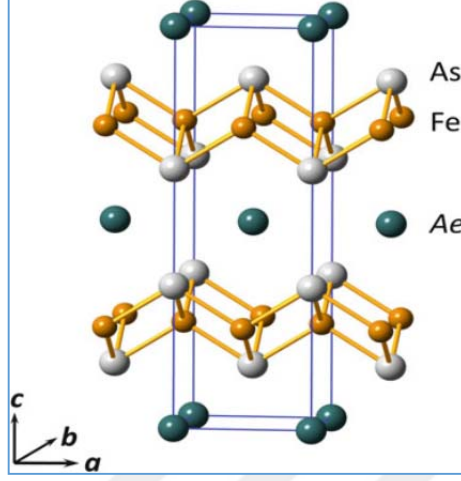
Bu tipin genel formülü AFeAs şeklinde olup A= Li, Na gibi iki alkali metaldir. LiFeAs yapısındaki süperiletkenlik X.C. Wang ve ark. tarafından keşfedilmiş olup 18 K kritik sıcaklığa sahiptir. NaFeAs yapısı ise ilk olarak D.R. Parker ve ark. tarafından üretilmiş olup 10 K civarı bir süperiletkenlik geçiş sıcaklığına sahiptir. Bu tipte diğer demir arsenik tabanlı süperiletkenler gibi FeAs ortak yapısına sahiptir. 111-Tip yapısı FeAs düzlemi arasına Li veya Na elementlerinin yerleşmesiyle oluşur. Anti-PbFCl tipi tetragonal yapıya sahip olan bu tipin kristal yapısı Şekil 1.29'da verilmiştir. Ayrıca NaFeAs 50 K'de tetragonal yapıdan ortorombik yapıya bir faz dönüşümüne uğradığı S. Li ve ark. tarafından raporlanmıştır.



Şekil 1.29. 111-Tip süperiletkenin kristal yapısı (Johnson, 2015)

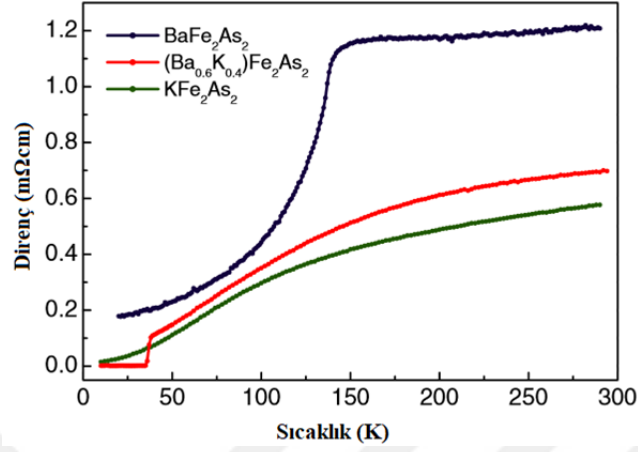
#### 1.4.2.3. 122-Tip

$AeFe_2Pn_2$  genel formülüyle gösterilen bu tipte  $Ae=Ca, Sr, Ba, K$  gibi toprak alkali ve alkali metallerin yanı sıra lantanit grubundan  $Eu$ 'dan oluşur.  $Pn$  ise arsenik ya da fosfor olabilir. Bu yapının kristal yapısı tetragonal yapıda olan ve  $I4/mmm$  uzay grubuna ait  $ThCr_2Si_2$  tipindedir. Şekil 1.30'da 122-Tip yapısının kristal yapısı verilmektedir. Bu yapıda diğer tiplerde olduğu gibi  $FeAs_4$  tetrahedronlarından oluşan  $FeAs$  tabakası ortak yapı olarak bulunur. Bu tabaka arasına  $Ca^{+2}$  gibi iyonlardan oluşan  $Ae$  tabakası bulunur.  $Ae$  tabakasının kalınlığı 1111 tipindeki  $LnO$  tabakasından daha incedir. Bu yüzden iki  $FeAs$  tabakası arasındaki mesafe 0.5-0.6 nm arasında olup 1111-Tip'teki  $FeAs$  tabakasına göre daha kısadır.

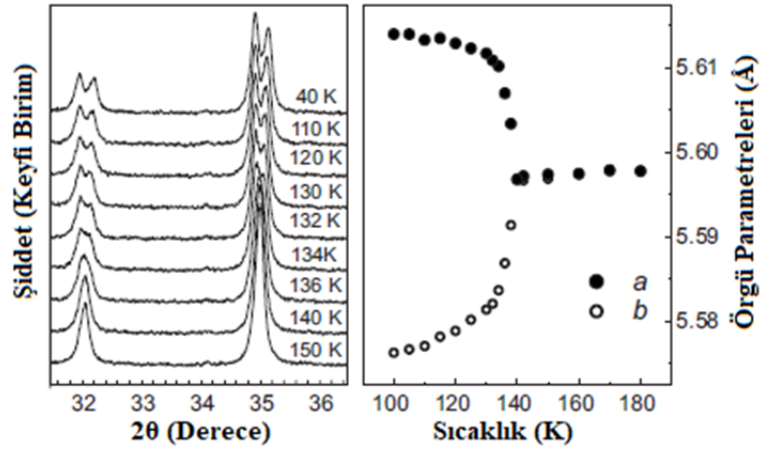


Şekil 1.30. 122-Tip süperiletkenin kristal yapısı (Johnson, 2015)

Bu tipin ilk üyesi Rotter ve arkadaşları tarafından üretilen K katkılı  $BaFe_2As_2$  yapısı olup 38 K süperiletkenlik geçiş sıcaklığına sahiptir. Şekil 1.31'deki direnç sıcaklık grafiğine göre katkısız  $BaFe_2As_2$  örneği süperiletken duruma geçmezken, %40 K katkılı  $(Ba_{0.6}K_{0.4})Fe_2As_2$  yapısı 38 K'de süperiletken duruma geçmiştir. Ayrıca bu yapı 1111-Tip'inde olduğu gibi bir yapısal faz değişimi geçirerek  $I4/mmm$  tetragonal fazdan  $F/mmm$  ortorombik faza dönüşür. Şekil 1.32'de  $BaFe_2As_2$  yapısal faz değişimine bağlı olarak XRD desenindeki 110 ve 112 yansımaların sıcaklıkla birlikte yarılmaları ve örgü parametreleri  $a$  ve  $b$ 'nin değişimi gösterilmektedir. Örgü parametreleri  $a$  ve  $b$  tetragonal fazda birbirine eşitken, 140 K'deki yapısal faz değişiminden dolayı  $a$  ve  $b$  örgü parametreleri farklılaşmaktadır.

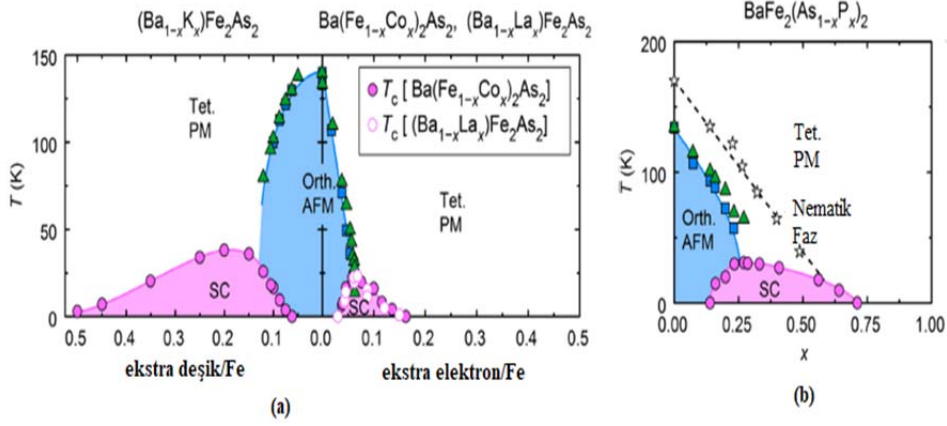


Şekil 1.31.  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ ,  $(\text{Ba}_{0.6}\text{K}_{0.4})\text{Fe}_2\text{As}_2$  ve  $\text{KFe}_2\text{As}_2$  yapıları için elektriksel direnç sıcaklık grafiği (Rotter, 2008)



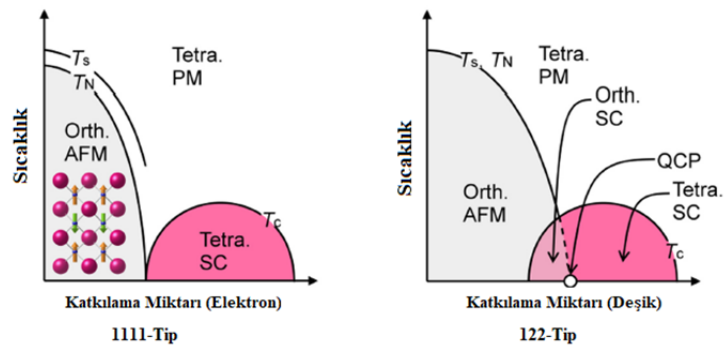
Şekil 1.32. Sıcaklığın düşmesiyle birlikte  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  yapısının XRD desenindeki 110 ve 122 yansımaların yarılması ve örgü parametrelerinin değişimi (Rotter, 2008)

122-Tip ana bileşikleri elektron katkılması, deşik katkılması ve eş değerlikli doplama yoluyla süperiletkenlik fazı elde edilebilir. Şekil 1.33'de  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  yapısına yapılan elektron, deşik ve eş değerlikli doplama sonuca ortaya çıkan fazlar verilmiştir.



Şekil 1.33. BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> yapısına (a) deşik ve elektron katkılması (b) As ile eş değerlikli P ile doplama sonucu oluşan fazlar (Hosono, 2018)

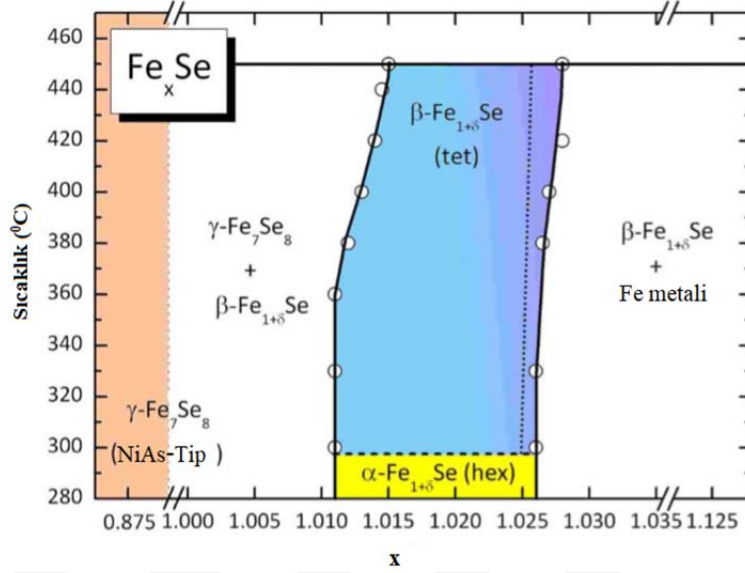
122-Tip yapısının ilk çıkan 1111-Tip yapısına göre faz diyagramlarında bir farklılık söz konusudur. 122-Tip’inde elektron ve deşik katkılmasının belli değerlerinde antiferromanyetik ve süperiletkenlik faz bir arada bulunurken 1111-Tip’inde elektron katkılması sonucu antiferromanyetik faz kaybolduktan sonra süperiletkenlik fazı ortaya çıkar. Ayrıca 1111-Tip’inde Néel sıcaklığı ile yapısal geçiş sıcaklıkları farklı iken 122-Tip’inde Néel sıcaklığında yapısal faz geçişi de olmaktadır. Bu durum Şekil 1.34’de şematik olarak verilmiştir.



Şekil 1.34. 1111 ve 122-Tip için şematik faz diyagramlarının karşılaştırılması (Hosono 2018)

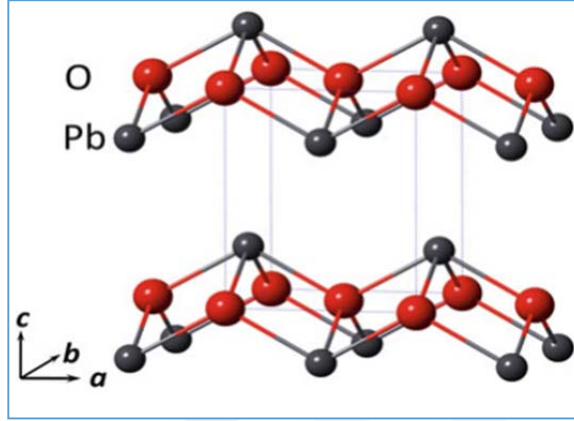
#### 1.4.2.4. 11-Tip

11-Tip üyesi FeSe kristalidir. Bu yapı, demir tabanlı süperiletkenler içerisinde en basit kristal yapıya sahip olduğundan ilgi çekicidir. Ayrıca yapısında arsenik olmadığı için diğer demir tabanlı süperiletkenlerden daha az toksiktir. Çok uzun yıllar çalışılan bir yapı olmasına rağmen FeSe'deki süperiletkenlik 2008 yılında Hsu ve ark. tarafından keşfedilmiştir. Bu yapıdaki süperiletkenlik, selenyum miktarının %49.0-%49.4 olduğu dar bir bölgede oluşan  $\beta$ -FeSe fazında 8 K'de ortaya çıkar. Ayrıca bu faz 300°C'nin altında süperiletken olmayan  $\alpha$ -FeSe fazına dönüşür. Şekil 1.35'de demir miktarına bağlı olarak Fe<sub>x</sub>Se yapısında ortaya çıkan süperiletken  $\beta$ -FeSe fazının oluşum aralığı gösterilmektedir. Demir miktarı 1.010 ile 1.025 arasında olduğu takdirde süperiletkenlik ortaya çıkmakta bu değerler aşıldığında ise süperiletken olmayan FeSe fazları oluşmaktadır. Bu çerçevede süperiletken  $\beta$ -FeSe fazı çok dar bir aralıkta oluşmaktadır.  $\beta$ -FeSe, birbiri ardına dizilmiş anti-PbO yapıdaki FeSe tabakalarından oluşur. FeSe tabakaları diğer demir tabanlı yapılarda bulunan FeAs tabakalarıyla benzer yapı oluşturur.  $\beta$ -FeSe kristal yapısı, tetragonal yapıda olup  $P4/nmm$  uzay grubuna ait PbO kristal yapısı tipindedir. Şekil 1.36'da PbO'nun ve Şekil 1.37'de  $\beta$ -FeSe'nin kristal yapısı verilmiştir. Kristal yapılar incelendiğinde FeSe yapısındaki Fe<sup>+2</sup> katyonu, PbO yapısındaki O<sup>-2</sup> anyonunun yerini aldığı, FeSe yapısındaki Se<sup>-2</sup> anyonunun ise PbO yapısındaki Pb<sup>+2</sup> katyonunun yerini aldığı görülebilir. Anyon ve katyonlardaki bu farklılıktan dolayı  $\beta$ -FeSe kristal yapısı anti-PbO yapısı olarak isimlendirilir.

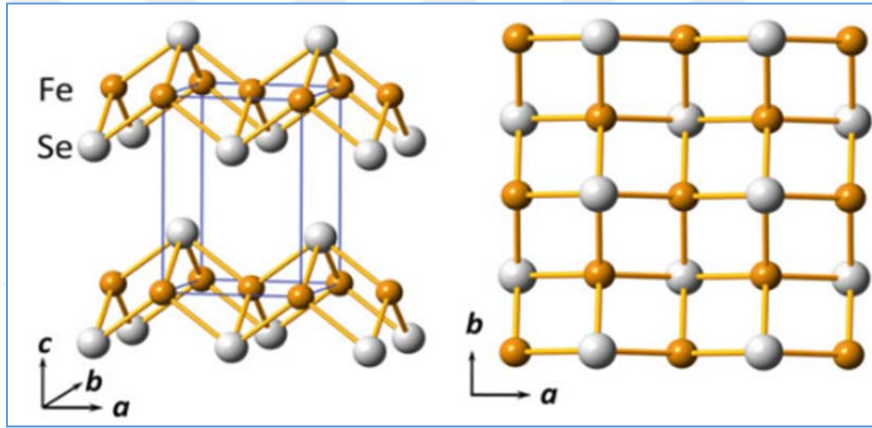


Şekil 1.35.  $\beta\text{-FeSe}$  fazının oluşum bölgesi (McQueen, 2009)

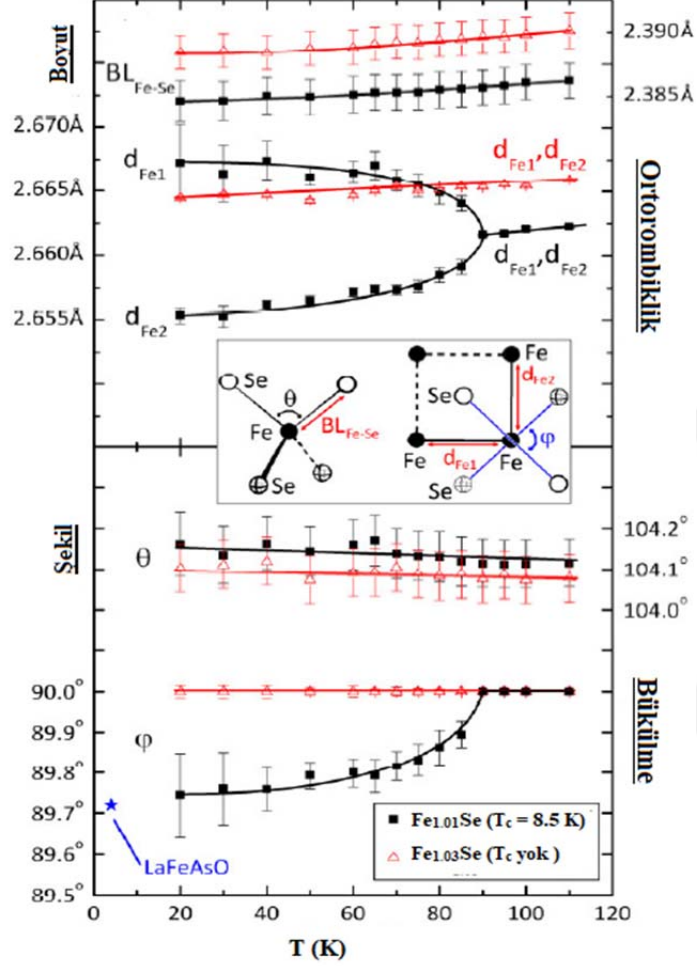
Süperiletken özellik gösteren  $\beta\text{-FeSe}$  fazı küçük bir bölgede olduğu için demir miktarının küçük miktarda değişimi süperiletkenlik fazının kaybolmasına yol açar. Örneğin T. M. McQueen ve ark. yaptıkları çalışmada  $\text{Fe}_{1.01}\text{Se}$  kompozisyonu 8.5 K'de süperiletken duruma geçerken  $\text{Fe}_{1.03}\text{Se}$  kompozisyonu ise süperiletken özellik göstermemektedir. Ayrıca süperiletken  $\text{Fe}_{1.01}\text{Se}$  örneği 90 K'de tetragonal yapıdan ortorombik yapıya dönüşürken süperiletken olmayan  $\text{Fe}_{1.03}\text{Se}$  örneğinde sıcaklığın düşmesiyle birlikte bir yapısal faz dönüşümü gözlenmemektedir. Bu durum Şekil 1.38'de verilmiştir. Soğutmayla birlikte süperiletken  $\text{Fe}_{1.01}\text{Se}$  örneğinde bulunan dört yüzlü (tetrahedra) FeSe yapısının bükülmesiyle birlikte Fe-Fe mesafeleri iki ayrı değer alırken süperiletken olmayan  $\text{Fe}_{1.01}\text{Se}$  örneğinde ise bükülme olmamakta ve ortorombiklik görülmemektedir.



Şekil 1.36. PbO'nun kristal yapısı (Johnson, 2015)

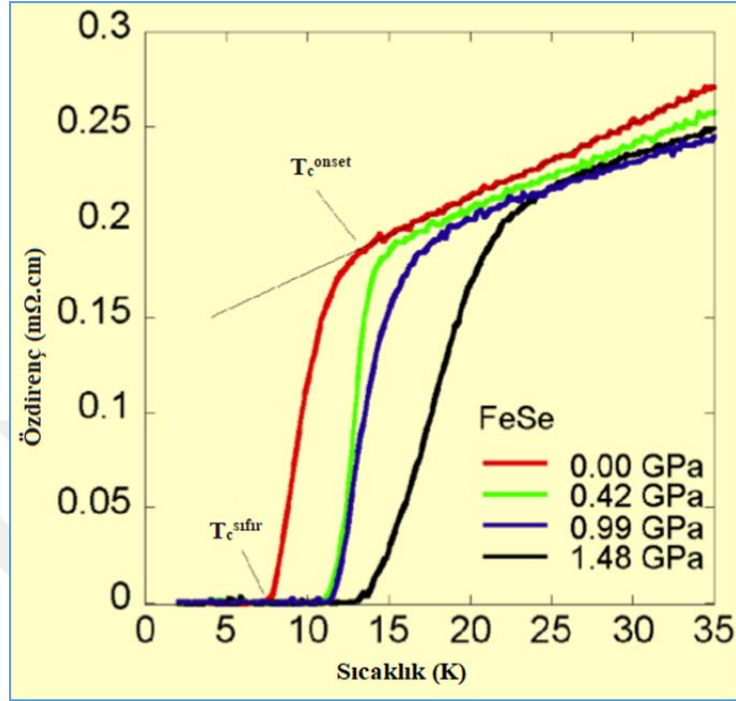
Şekil 1.37.  $\beta$ -FeSe'nin kristal yapısı (Johnson, 2015)





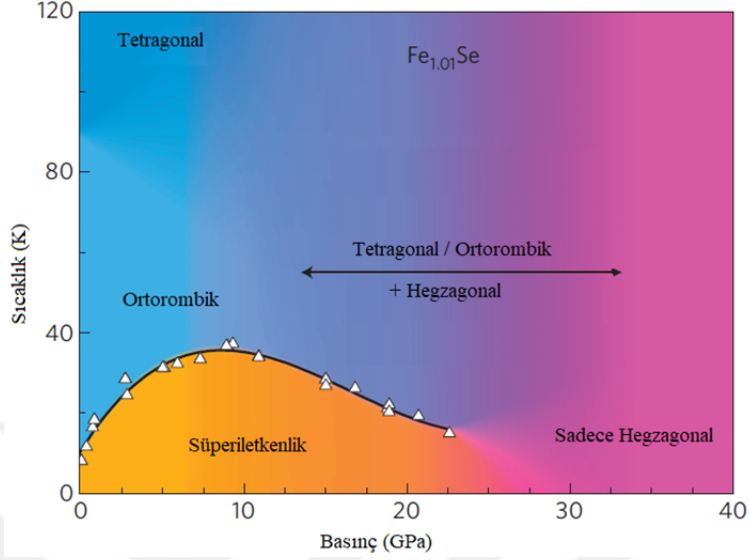
Şekil 1.38. Sinkrotron XRD (SXR) ölçümü sonucu süperiletken  $Fe_{1.01}Se$  ve süperiletken olmayan  $Fe_{1.03}Se$  örneklerindeki soğutmayla birlikte Fe-Fe mesafeleri arasındaki değişim (McQueen, 2009)

$FeSe$ 'deki süperiletkenliğin keşfinden kısa bir süre sonra Y. Mizuguchi ve ark. basınç uygulayarak  $FeSe$ 'deki kritik geçiş sıcaklığını artırdığını gözlemlediler. 1.48 GPa basınç değerinde süperiletkenlik başlangıç sıcaklığının,  $T_c^{onset}$ , 27 K'ye kadar çıktığını raporladılar. Şekil 1.39'da basıncın artmasıyla  $T_c^{onset}$  değerinin arttığı görülmektedir.



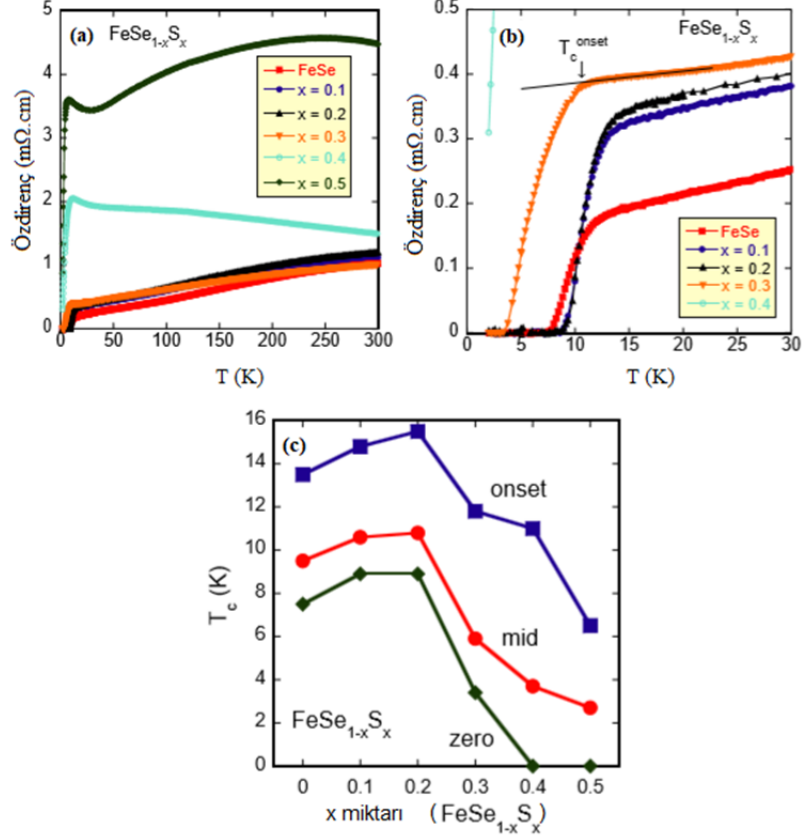
Şekil 1.39. Basıncın artmasıyla süperiletkenlik geçiş sıcaklığının artması (Mizuguchi, 2008)

Bu çalışmadan sonra 2009 yılında S. Medvedev ve ark. basınç değerini 8.90 Gpa kadar çıkardıklarında süperiletkenlik geçiş sıcaklığının da 36.7 K'ye kadar çıktığını buldular. Ayrıca basıncın artmasına bağlı olarak önerdikleri FeSe'nin elektronik faz diyagramı Şekil 1.40'da gösterilmiştir. Maksimum  $T_c$  36.7 K olup 8.90 Gpa değerinde gözlemlendikten sonra basıncın artmasıyla  $T_c$  de kademeli olarak düşmüştür. Daha yüksek basınç değerlerinde FeSe'deki süperiletkenlik kaybolarak yarıiletken tipte bir davranış ortaya çıkmaktadır.



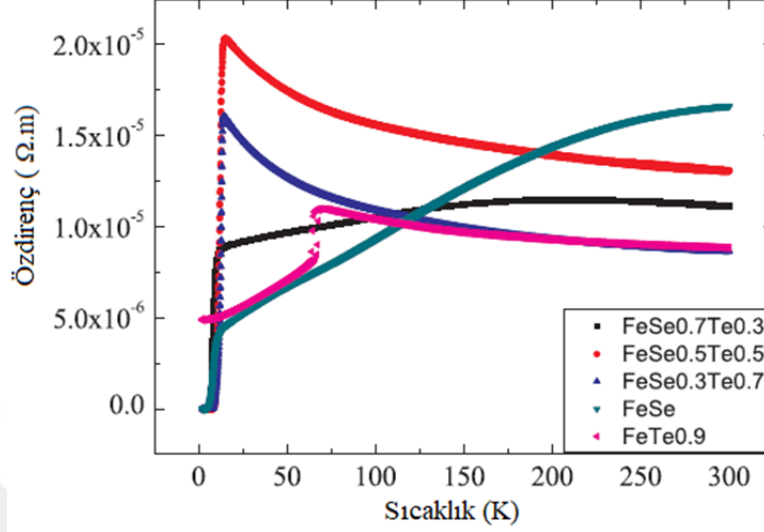
Şekil 1.40.  $\text{Fe}_{1.01}\text{Se}$ 'nin basınca bağlı elektronik faz diyagramı (Medvedev, 2019)

$\text{FeSe}$  sistemindeki süperiletkenliğe geçiş sıcaklığının hidrostatik basınçla artması kimyasal basınçla da artırılabilme düşüncesini getirir. Selenyum yerine aynı değerlikli ancak daha düşük iyonik yarıçapa ait sülfürün katılmasına da sisteme pozitif bir basınç etkisi yapar. Şekil 1.41'de farklı sülfür katılmasına bağlı olarak özdirenç sıcaklık, süperiletkenliğe geçiş başlangıç sıcaklığı,  $T_c^{\text{onset}}$ , sıfır direnç sıcaklığı,  $T_c^{\text{zero}}$ , ve  $T_c^{\text{onset}}$  sıcaklığındaki özdirenç değerinin yarıya düştüğü sıcaklık olan süperiletkenliğe geçiş orta sıcaklığı,  $T_c^{\text{mid}}$ , değişimleri gösterilmektedir. Bu sıcaklıklar katılama miktarı  $x \leq 0.2$  için artarken,  $x \geq 0.3$  için düşmektedir. Maksimum  $T_c^{\text{onset}}$  sıcaklığı ise 15.5 K'dir.



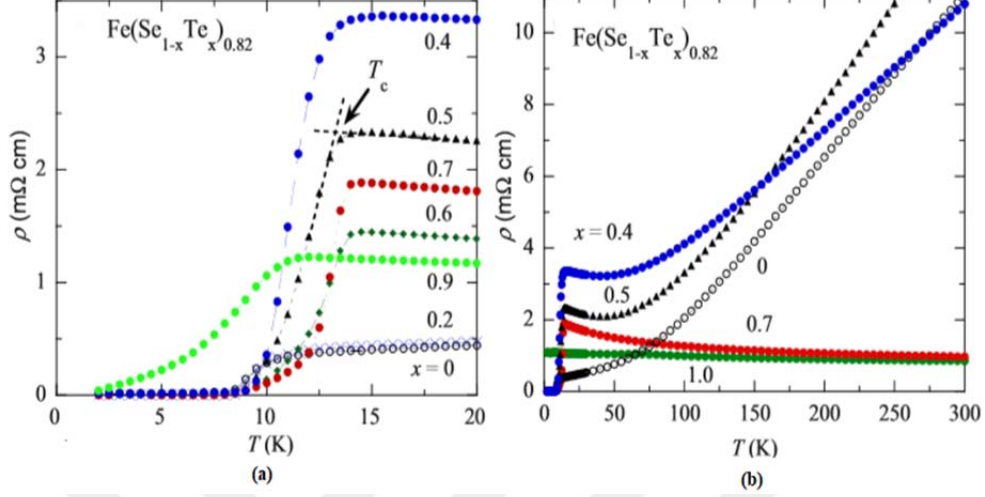
Şekil 1.41. (a) Farklı sülfür katkılarında özdirenç sıcaklık değişimi, (b) 0 ile 30 K arası özdirenç sıcaklık değişimi, (c)  $T_c^{\text{onset}}$ ,  $T_c^{\text{zero}}$  ve  $T_c^{\text{mid}}$  sıcaklıklarının değişimi (Mizuguchi, 2009)

FeSe'deki 8K'deki süperiletkenlik geçişi Se yerine Te katkılmasıyla birlikte 15K'lere kadar çıkabilir. FeSe sisteminde Se yerine Te katkılması, FeSe'deki süperiletkenlik keşfedildikten kısa bir süre sonra birçok grup tarafından gerçekleştirilmiştir. Örneğin KuO-Wei Yeh ve ark, FeSe<sub>1-x</sub>Te<sub>x</sub> (x=0-1) sisteminde tellür miktarının artmasıyla birlikte süperiletkenlik geçiş sıcaklığının arttığını gözlemlemişlerdir. Geçiş sıcaklığı %50 tellür katkılmasında 15.2 K'ye kadar çıkarak maksimum olmuş %100 tellür katkılmasında yani FeTe'de süperiletkenlik geçiş gözlenmemiştir. Şekil 1.42'de farklı tellür katkılmasına bağlı olarak direnç sıcaklık grafiği verilmektedir.



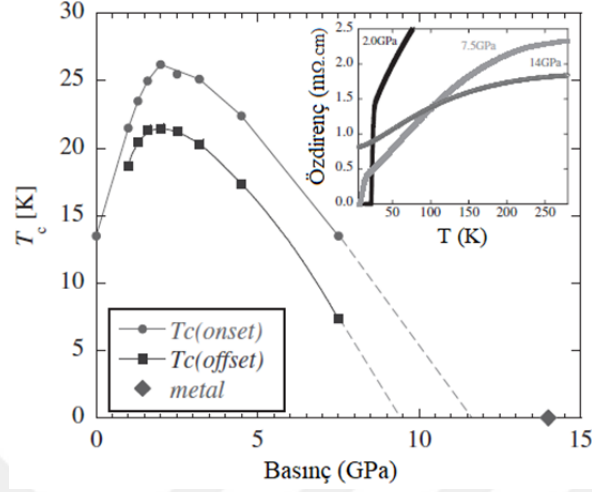
Şekil 1.42. Sıfır manyetik alanda çeşitli Te konsantrasyonlarında öz direnç-sıcaklık bağımlılığı (Yeh, 2008)

M.H. Fang ve ark.,  $\text{Fe}(\text{Se}_{1-x}\text{Te}_x)_{0.82}$  ( $0 \leq x \leq 1$ ), biri  $0 \leq x < 0.15$  diğeri de ( $0.3 < x < 1.0$ ) aralığında olmak üzere iki farklı süperiletkenlik fazı bulmuşlardır. Bu iki faz ( $0.15 \leq x \leq 0.3$ ) aralığında ortak olarak bulunur ve ( $0 \leq x \leq 1.0$ ) aralığındaki fazın kritik geçiş sıcaklığı daha yüksek olup 14 K civarındadır. Ayrıca katkılama sınırındaki,  $x=1$ ,  $\text{FeTe}_{0.82}$  örneğinde ise süperiletkenlik ortadan kaybolur. Şekil 1.43'de çeşitli Te katkılarlarına bağlı olarak  $\text{Fe}(\text{Se}_{1-x}\text{Te}_x)_{0.82}$  sistemindeki direnç-sıcaklık grafiği verilmiştir. Tüm örnekler süperiletken duruma geçerken selenyumun olmadığı  $\text{FeTe}_{0.82}$  örneğinde süperiletken geçiş gözlenmemiştir.



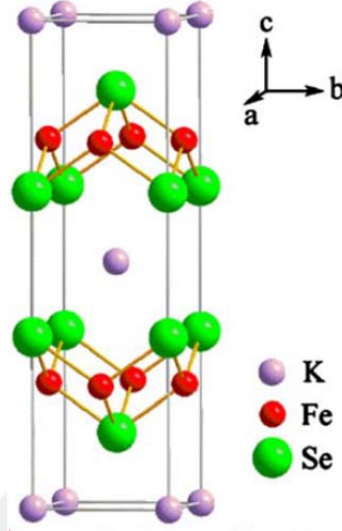
Şekil 1.43.  $\text{Fe}(\text{Se}_{1-x}\text{Te}_x)_{0.82}$  sisteminde sıcaklık-özdirenç grafiği (Fang, 2008)

FeSe sisteminde olduğu gibi Fe-Se-Te sistemine de basınç uygulayarak kritik geçiş sıcaklığını artırabiliriz. Örneğin  $\text{FeSe}_{0.5}\text{Te}_{0.5}$  sisteminde basıncın 2 GPa'ya artırılmasıyla süperiletkenliğe geçiş başlangıç sıcaklığı,  $T_c^{\text{onset}}$ , 13.5 K'den 26.2 K'ye kadar çıkabilir. 2 Gpa'nın üstünde  $T_c$  lineer olarak azalır ve 14 GPa basınç değerinde metalik faz gözlenir (Horigane, 2009). Şekil 1.44'te basınca bağlı olarak  $T_c^{\text{onset}}$  ve süperiletkenliğe geçiş bitiş sıcaklığı,  $T_c^{\text{offset}}$ , değerlerinin değişimi görülmektedir.



Şekil 1.44. Basınç- $T_c$  faz diyagramı (Horigane, 2009)

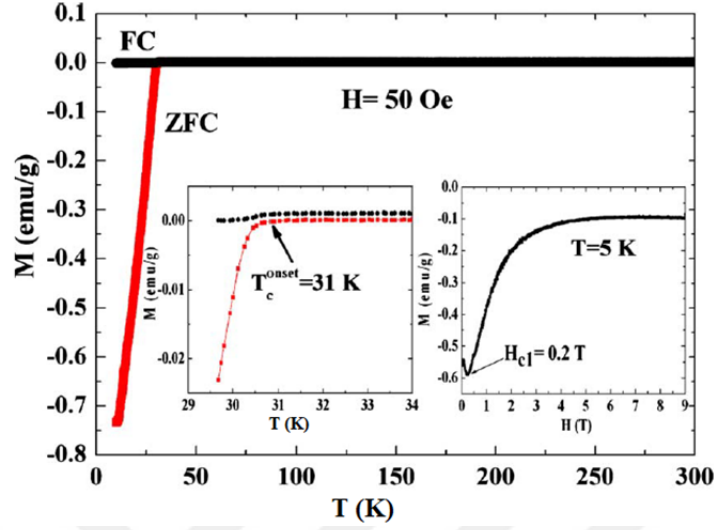
FeSe düzlemleri arasında  $A = K, Cs, Rb, Tl/K$  ve  $Tl/Rb$  gibi katyonlarla eklemeler yapılarak oluşturulan  $A_xFe_2Se_2$  yapısında süperiletkenlik geçiş sıcaklığı 30 K civarına çıkarılabilir. Bu yapının ilki Guo ve ark. tarafından üretilen  $K_{0.8}Fe_2Se_2$ 'dir. FeSe düzlemleri arasında K konularak elde edilen bu yapının kristal yapısı  $ThCr_2Si_2$  tipinde olup Şekil 1.45'de şematik olarak gösterilmiştir.  $I4/mmm$  uzay gurubuna ait tetragonal yapıda olan bu sistemin örgü parametreleri  $a=b=3.9136 \text{ \AA}$  ve  $c=14.0367 \text{ \AA}$  civarındadır. Yapıdaki  $(Fe_2Se_2)^{\delta-}$  katmanları iletken katmanları olarak işlev görürken  $K^+$  iyonları da bu katmanlara yük sağlama görevini üstlenir.



Şekil 1.45.  $K_{0.8}Fe_2Se_2$ 'nin kristal yapısı (Guo, 2010)

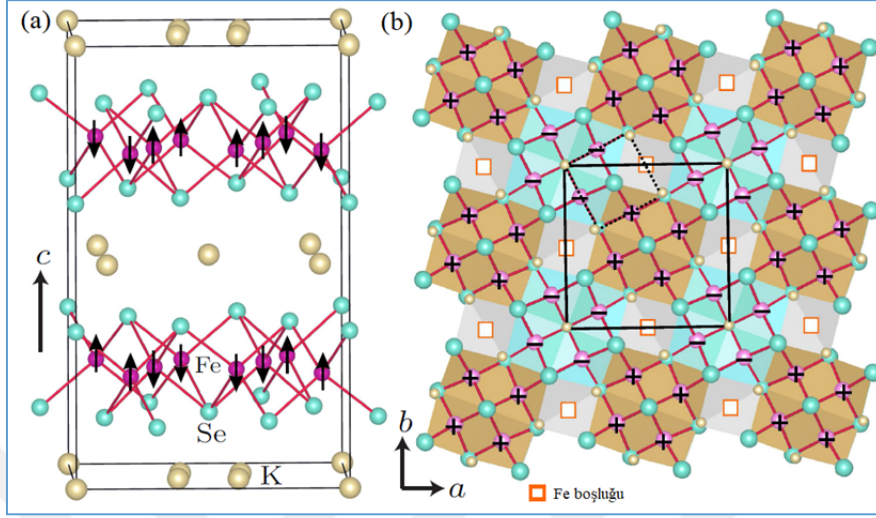
$K_{0.8}Fe_2Se_2$  sistemine ait manyetizasyon-sıcaklık ( $M-T$ ) grafiği Şekil 1.46'da verilmiştir. Grafiğin iç kısmında ise 5 K'de ölçülen manyetizasyon-manyetik alan ( $M-H$ ) grafiği verilmiştir. Grafik incelendiğinde örneğin 31 K civarında keskin bir şekilde süperiletken duruma geçtiği görülebilir. 50 Oe alan altında alınan sıfır alan soğutmalı (ZFC) ve alan soğutmalı (FC) eğrilerinin normal durum sıcaklıklarında düz ve sıcaklıktan bağımsız bir meyil seyretmesi örneğin Pauli paramagnet olduğunu gösterir. ZFC ve FC eğrilerinde histerezisin görülmesi örneğin tipik II. Tip süperiletken olduğunu gösterir (Guo, 2010). Ayrıca  $M-H$  eğrisinden örneğin alt kritik alanı  $H_{c1}$  yaklaşık 0.2 T olduğu görülebilir.



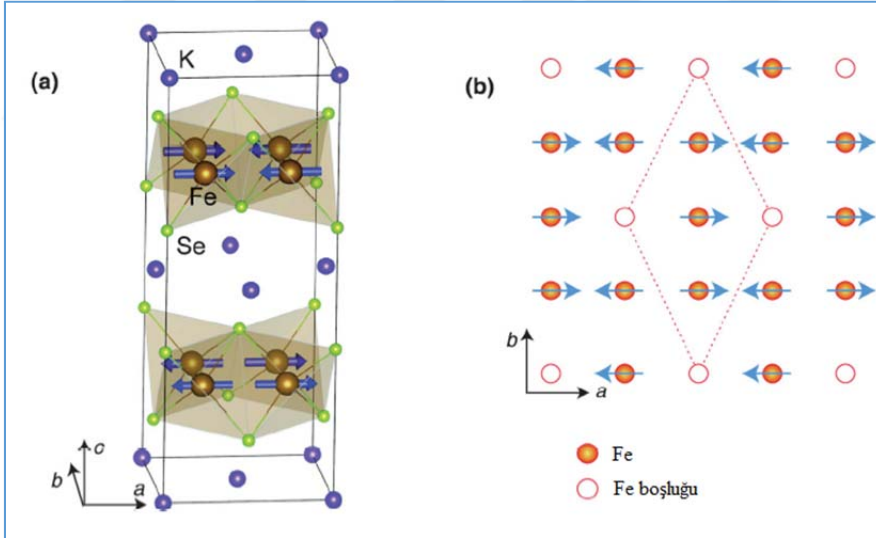


Şekil 1.46.  $K_{0.8}Fe_2Se_2$  kristalinin  $M-T$  ve  $M-H$  eğrisi (Guo, 2010).

FeSe katmanları arasında  $K^+$  katyonların yerleştirilmesi süperiletkenlik dışında FeSe katmanlarında demir boşluklu bir yapının da oluşmasına neden olur. Demir boşluklarının varlığı birçok grup tarafından TEM, STEM, XRD ve nötron kırınımı deneyleriyle gösterilmiştir. Şekil 1.47-48'de iki farklı grup tarafından nötron kırınımı sonucu şematik olarak ortaya çıkarılan  $K_{0.8}Fe_{1.6}Se_2$  ve  $K_{0.85}Fe_{1.54}Se_2$  yapıların kristal ve manyetik yapıları gösterilmiştir.

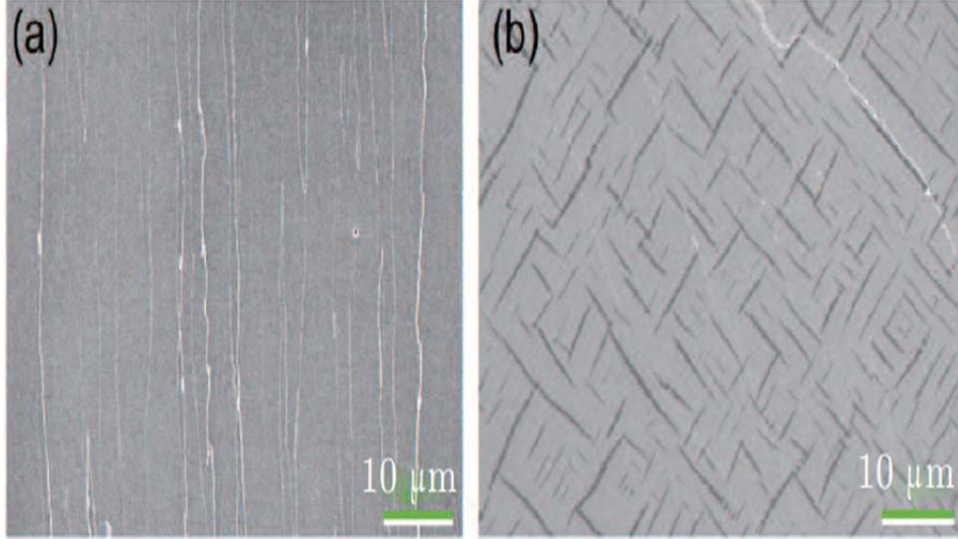


Şekil 1.47.  $K_{0.8}Fe_{1.6}Se_2$  kristal ve manyetik yapıları, (a) Alt ve üst Fe-Se katmanları ve manyetik momentlerinin yönelimleri, (b) Fe-Se katmanının üstten görünüşü (Bao, 2011)



Şekil 1.48.  $K_{0.85}Fe_{1.54}Se_2$  kristalindeki nötron-kırınımı verilerinden elde edilen (a) üç boyutlu şerit tipi manyetik yapı ve (b) eşkenar dörtgen yapıdaki Fe boşluğu (Zhao, 2012).

Demir boşluklu bu yapı antiferromanyetik yarıiletken bir davranış gösterip  $K_2Fe_4Se_5$  fazı olarak bilinir. Süperiletkenlik fazı da bu faz içerisinde büyür.  $K_2Fe_4Se_5$  fazı hacimce %80-%90 civarında iken süperiletken fazı ise %10-%20 civarındadır. Şekil 1.49'da  $K_{0.8}Fe_{1.6+x}Se_2$  örneğine ait SEM görüntüleri görülmektedir.  $K_{0.8}Fe_{1.6}Se_2$  ( $x=0$ ) yapısındaki demir miktarı bir miktar artırıldığında şerit tipi yapılarla birlikte süperiletkenlik ortaya çıkar. Böylece antiferromanyetik  $K_2Fe_4Se_5$  fazı ve şerit tipinde büyümüş süperiletkenlik fazı iç içe bulunur.

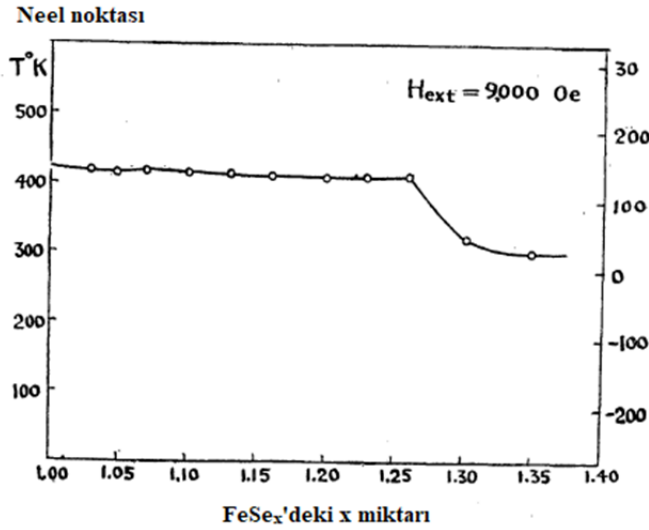


Şekil 1.49.  $K_{0.8}Fe_{1.6+x}Se_2$  kristalinin, (a)  $x=0$  ve (b)  $x=0.06$  için SEM görüntüleri (Wang, 2013)

## 2. ÖNCEKİ ÇALIŞMALAR

Litaratüre bakıldığında FeSe kristalinin 1900'lerin başından beri çalışıldığı görülebilir. Demir tabanlı süperiletkenliğin keşfi  $\beta$ -FeSe fazında da süperiletkenliğin bulunmasının yolunu açmış ve FeSe'ye ait çalışmalarının sayısı son yıllarda hızla artmıştır. Bu bölümde belli başlı çalışmalara kısaca yer verilecektir.

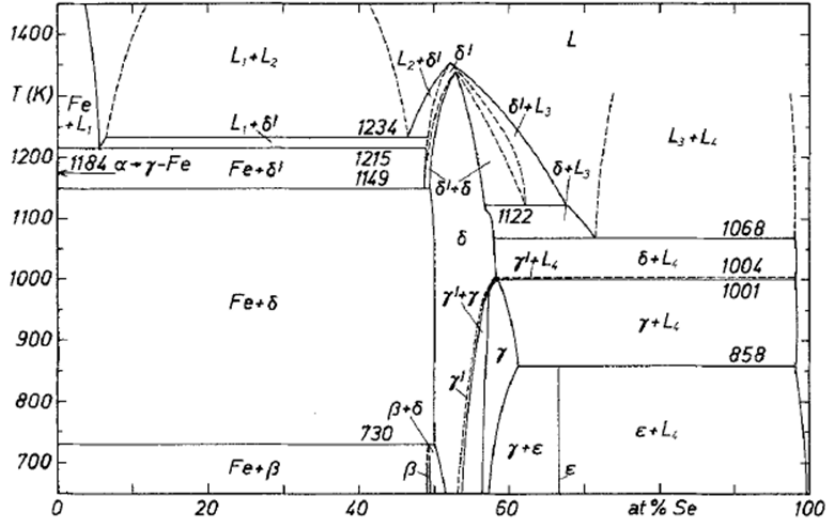
Hirone ve ark. (1954),  $\text{FeSe}_x$  yapısında selenyum miktarına bağlı olarak Néel sıcaklığının değişimini incelemiştir. 1 ile 1.26 arası selenyum konsantrasyonlarında Néel sıcaklığı  $150^\circ\text{C}$  civarında seyrederken selenyum miktarının artmasıyla birlikte Néel sıcaklığı düşmüş ve 1.35 selenyum miktarında  $30^\circ\text{C}$ 'ye kadar düşmüştür. Bu durum Şekil 2.1'de verilmiştir.



Şekil 2.1. Selenyum miktarına bağlı olarak Néel sıcaklığının değişimi (Hirone,1954)

Schuster ve ark. (1979), termoanalitik, isopiestic ve XRD analizlerini kullanarak demir selenyum faz diyagramını incelediler. Bu analizler sonucunda

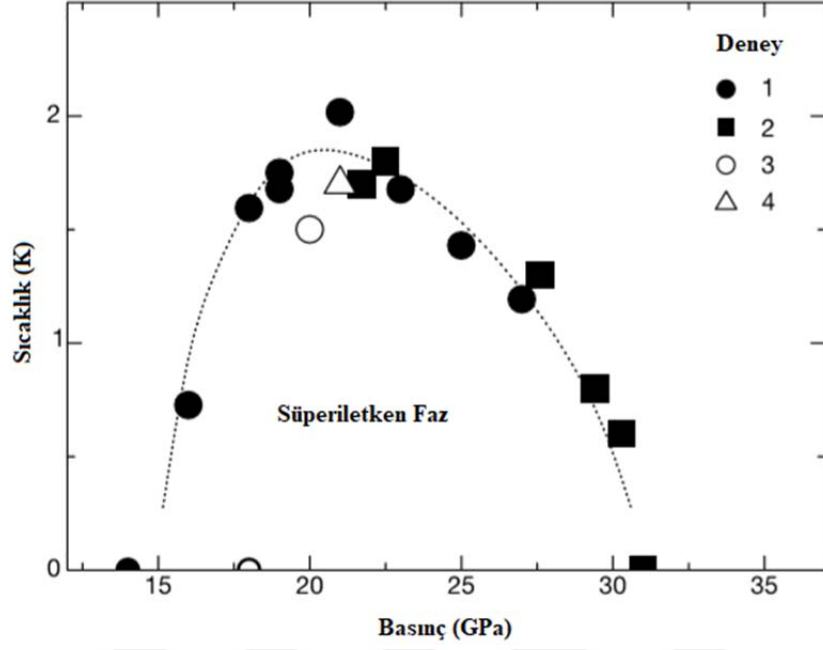
selenyum miktarının %20 ile %66 olduğu ve 623 ile 1373 K sıcaklık aralığındaki demir selenyum faz diyagramını çıkardılar. Şekil 2.2'de yaptıkları çalışmalar sonucu oluşturdukları Fe-Se ikili faz diyagramı verilmektedir.



Şekil 2.2. Demir-Selenyum Faz Diyagramı (Schuster, 1979)

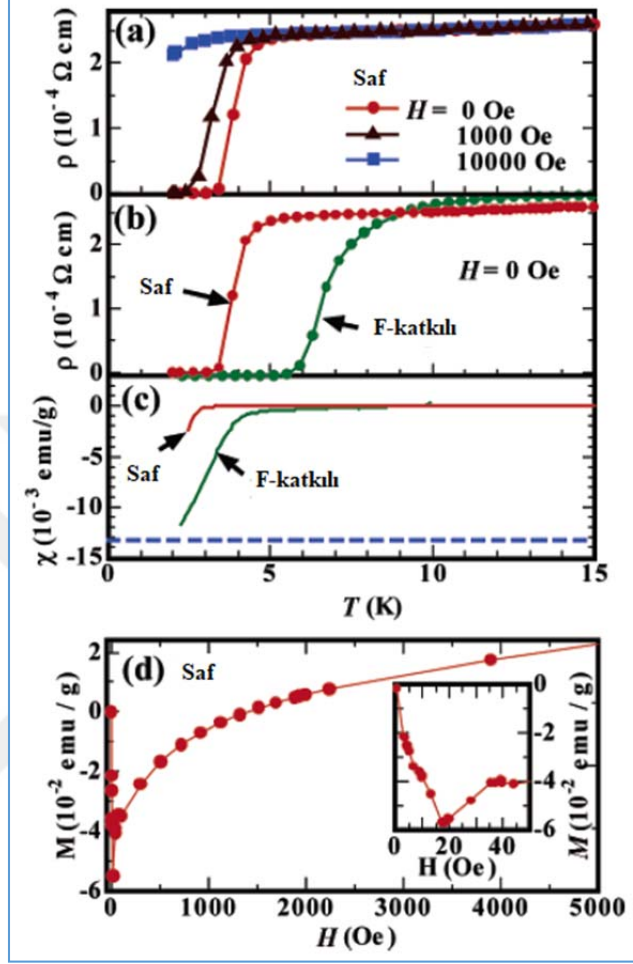
Okamoto (1991), Schusterin geliştirdiği faz diyagramını daha da genişleterek, Şekil 1.1'de verilen diyagramı önerdi. Bu diyagramdaki belli başlı fazlar  $\alpha\text{-Fe}_7\text{Se}_8$ ,  $\beta\text{-Fe}_7\text{Se}_8$ ,  $\delta$ ,  $\gamma$ ,  $\gamma'$ ,  $\text{FeSe}_2$  ve  $\beta$  fazlarıdır.

Shimuzu ve ark. (2001), yaptıkları çalışmada demirin 15 ve 30 GPa basınç aralığında 2 K'nin altında süperiletken duruma geçtiğini raporlamışlardır. Süperiletken durumu, hem direnç sıcaklık grafiğindeki anormal direnç düşüşü hem de manyetizasyon sıcaklık grafiğinde Meissner etkisinin gözlenmesiyle teyit etmişlerdir. Ayrıca basınç ve sıcaklığa bağlı olarak demirin süperiletken fazını Şekil 2.3'de verildiği gibi ortaya çıkarmışlardır.



Şekil 2.3. Demirin süperiletken faz diyagramı (Schimuzu, 2001)

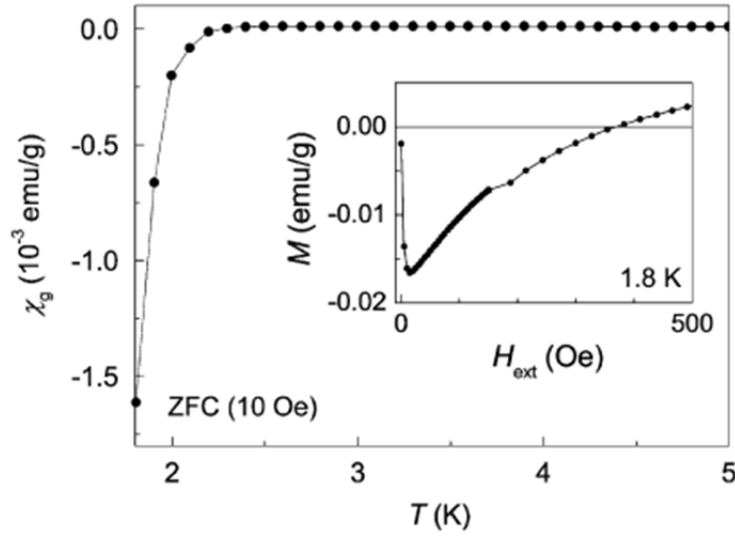
Kamihara ve ark. (2006), LaOFeP yapısında yaklaşık 5 K geçiş sıcaklığına sahip süperiletkenliği buldular. Normal durumda metalik özellik gösteren LaOFeP yapısındaki süperiletkenlik davranışını Şekil 2.4'de verilen öz direnç-sıcaklık, manyetik alınganlık-sıcaklık, manyetik alan-manyetizasyon ölçümleri yaparak gözlemlemişlerdir. Ayrıca LaOFeP yapısına flor katkılanması süperiletkenlik geçiş sıcaklığını 2-3 K arttırdığını gözlemlemişlerdir.



Şekil 2.4. (a) Saf LaOFeP yapısının farklı manyetik alan altındaki özdirenç-sıcaklık grafiği, (b) Saf ve F katkılı LaOFeP yapısının özdirenç-sıcaklık grafiği, (c) Saf ve F katkılı LaOFeP yapısının manyetik alınganlık-sıcaklık grafiği, (d) Saf LaOFeP yapısının manyetizasyon-manyetik alan grafiği (Kamihara, 2006)

Watanabe ve ark. (2007), katıhal yöntemiyle hazırladıkları LaNiOP yapısında 3 K geçiş sıcaklığına sahip süperiletkenliği buldular. Bu yapının 4-300 K arası normal durumda ise metalik ve Pauli tipi paramanyetik davranış gösterdiğini ifade ettiler.

Watanabe ve ark. (2008), tetragonal ZrCuSiAs tipindeki LaNiOAs yapısında 2.4 K geçiş sıcaklığına sahip süperiletkenliği buldular. Bu yapı geçiş sıcaklığının üstünde metalik iletkenlik ve Pauli paramanyetizma özelliği gösterir. Ayrıca bu yapının %20 oranındaki mükemmel diyamanyetik alınganlık göstermesi yapıdaki bulk tipi süperiletkenliğin varlığını gösterir. Şekil 2.5’de manyetik alınganlık-sıcaklık grafiği ve şeklin iç kısmında da manyetik alan-manyetizasyon grafiği gösterilmektedir.

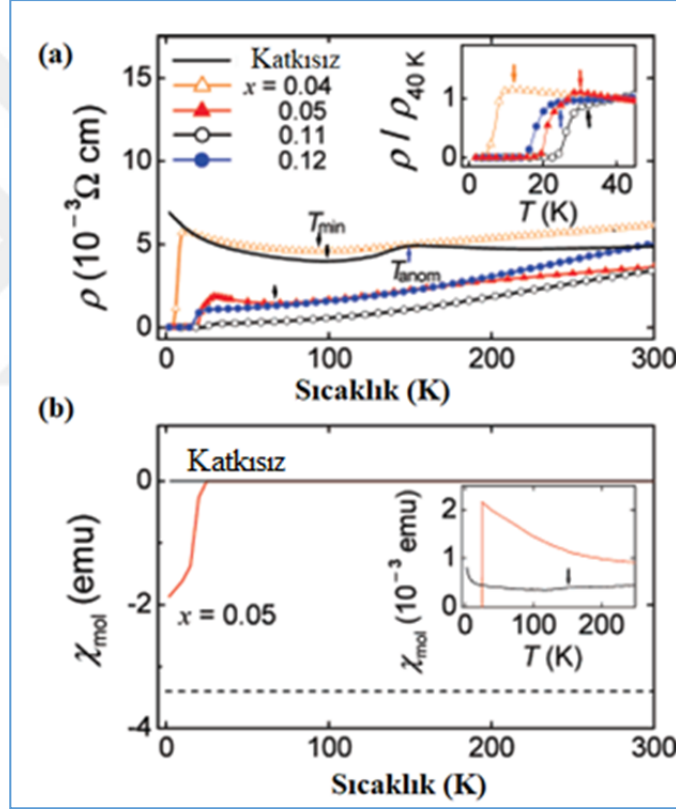


Şekil 2.5. LaNiOAs için manyetik alınganlık-sıcaklık grafiği (Watanabe, 2008)

LaOFeP, LaNiOP, LaNiOAs yapılarındaki süperiletkenliğin düşük sıcaklıklarda gerçekleşmesinden dolayı bilim dünyasının dikkatini çok çekmemiştir. Bu konudaki asıl gelişme Kamihara ve ark. (2008), LaFeOAs yapısına flor katkılayarak 26 K geçiş sıcaklığına sahip süperiletkenlik fazını bulmalarındır. Burada katkısız örnekte süperiletkenlik gözlenmemiş flor katkılamasıyla birlikte geçiş sıcaklığı 26 K’ye kadar çıkmıştır. Şekil 2.6’da LaFeOAs yapısının özdirenç-sıcaklık ve molar alınganlık-sıcaklık grafiği verilmiştir. Flor katkılı LaFeOAs yapısında bulunan süperiletkenlik bilim dünyasında sürprizle karşılanmış ve çoğu bilim insanı yeni tipte demir tabanlı

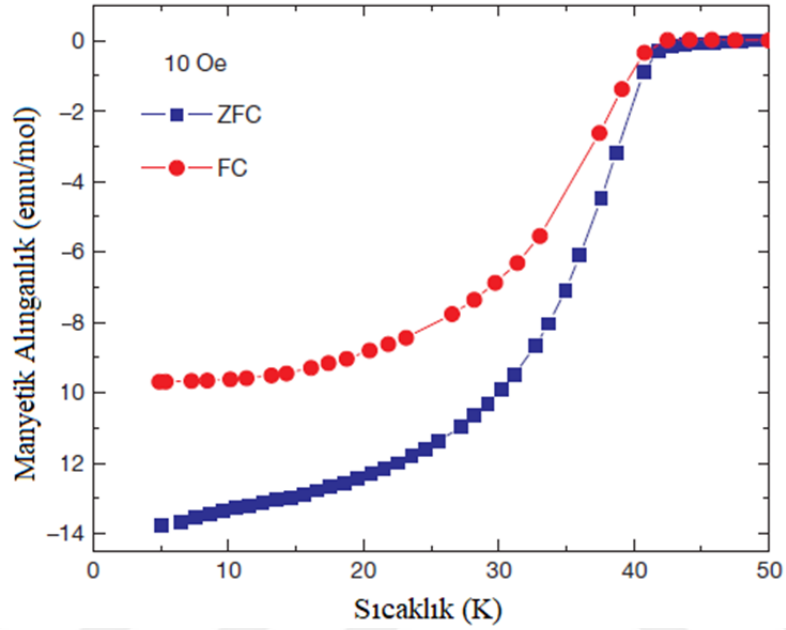


süperiletken malzeme arayışına yönelmiştir. Bu arayışlar çok geçmeden önemli bir gelişmeyle sonuçlanmıştır. Takanashi ve ark. (2008)  $\text{LaFeAsO}_{0.9}\text{F}_{0.1}$  yapısındaki süperiletkenlik geçiş sıcaklığını basınçla birlikte 43 K'ye kadar çıkabileceğini buldular. Bu geçiş sıcaklığı bakır-oksit tabanlı süperiletkenler dışındaki en yüksek geçiş sıcaklığıydı. Basınçla birlikte geçiş sıcaklığını artması La yerine diğer lantanitlerin kullanılması fikrini doğurdu ve kısa sürede yeni demir tabanlı süperiletken malzemeler bulundu.



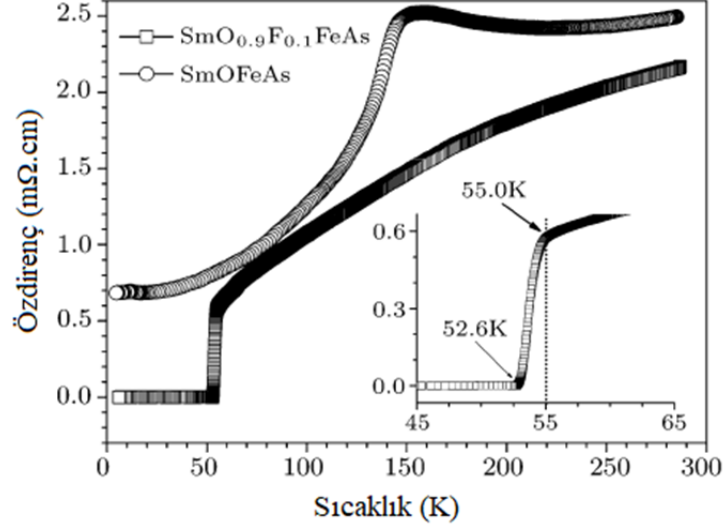
Şekil 2.6.  $\text{LaFeOAs}$  yapısının (a) öz direnç-sıcaklık ve (b) molar alınganlık-sıcaklık grafiği (Kamihara, 2008)

Chen (X.H. Chen) ve ark. (2008),  $\text{SmFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$  yapısında 43 K geçiş sıcaklığına sahip süperiletkenliği buldular. Şekil 2.7’de hazırladıkları örneğin manyetik alınganlık-sıcaklık grafiği verilmiştir.



Şekil 2.7.  $\text{SmFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$  örneğinin manyetik alınganlık-sıcaklık grafiği (Chen, 2008)

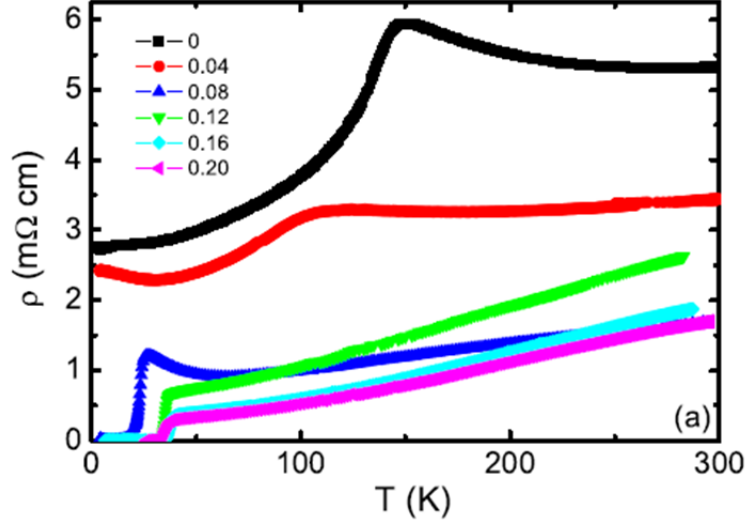
Bu çalışmadan kısa bir süre sonra Ren ve ark. (2008), yüksek basınç tekniğiyle ürettikleri  $\text{SmFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$  örneklerdeki süperiletkenliğe geçiş sıcaklıklarını 55 K’ye kadar çıkardılar. Şekil 2.8’de yüksek basınç tekniğiyle üretilen  $\text{SmO}_{0.9}\text{F}_{0.1}\text{FeAs}$  örneğinin öz direnç-sıcaklık grafiği verilmektedir.



Şekil 2.8. Katısız SmOFeAs ve  $\text{SmO}_{0.9}\text{F}_{0.1}\text{FeAs}$  örneklerinin özdirenç-sıcaklık grafiği (Ren, 2008)

$\text{SmFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$  yapısından oksijen eksiltip flor katkılarını sisteme elektron katkılama anlamı taşıdığından Hanna ve ark. (2011),  $\text{H}^-$  iyonları kullanarak  $\text{SmFeAsO}_{1-x}\text{H}_x$  yapısında da 55 K geçiş sıcaklığına sahip süperiletkenliği buldular.

Chen (G.F. Chen) ve ark. (2008),  $\text{CeFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$  yapısında 41 K geçiş sıcaklığına sahip süperiletkenliği buldular. Katı hal yöntemiyle ürettikleri  $\text{CeFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$  örneklerinde direnç sıcaklık grafiğinde 145 K civarında  $\text{LaFeOAs}$  yapısındaki benzer bir anormallik gözlemlenildi ve bu anormalliğin spin yoğunluk dalgasından (SDW) kaynaklandığını önerdiler. Flor katkısıyla birlikte bu anormalliğin ortadan kalkarak süperiletken fazın ortaya çıktığını raporladılar. Şekil 2.9’da farklı flor katkılarındaki  $\text{CeFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$  yapısının direnç-sıcaklık grafiği verilmektedir.



Şekil 2.9. Farklı flor katkılamalarındaki  $\text{CeFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$  yapısının özdirenç-sıcaklık grafiği (Chen, 2008)

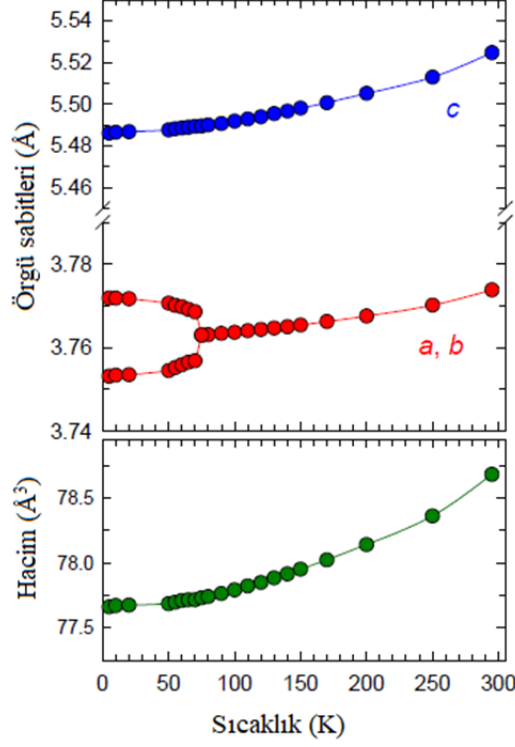
Rotter ve ark. (2008),  $(\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x)\text{Fe}_2\text{As}_2$  yapısında 38 K’de süperiletkenliği buldular.  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  yapısından baryum eksiltip potasyum konularak bir anlamda deşik (hole) katkılama yapan grup  $x=0.4$  katkılama değerinde süperiletkenlik fazını bulmuşlardır.

Hsu ve ark. (2008), FeSe bileşiğinde kritik sıcaklığı 8K olan süperiletkenliği buldular. FeSe’deki süperiletkenliğin sadece selenyum eksikliğinde  $\alpha$ -FeSe’de ortaya çıktığını ve bu fazın kristal yapısının tetragonal PbO tipinde olduğunu ifade ettiler.

McQueen ve ark. (2009), Hsu ve arkadaşlarının  $\alpha$ -FeSe olarak belirttikleri süperiletkenlik fazın  $\alpha$ -FeSe değil  $\beta$ -FeSe olduğunu ortaya koymuşlardır. Ayrıca bu fazda ortaya çıkan süperiletkenliğin çok küçük bir aralıkta ortaya çıktığını belirtmişlerdir.  $\beta$ -Fe<sub>1.01</sub>Se, 8.5 K’de süperiletken duruma geçerken demir miktarının az miktar arttırıldığı  $\beta$ -Fe<sub>1.02</sub>Se’de süperiletken geçiş sıcaklığı 5K’ye düşmüş,  $\beta$ -Fe<sub>1.03</sub>Se kompozisyonunda ise süperiletkenlik tamamen kaybolmuştur.

Margadonna ve ark. (2008), süperiletken duruma geçen FeSe’nin 70 K’de yapısal faz değişimi göstererek tetragonal yapıdan ortorombik yapıya dönüştüğünü

ifade etmişlerdir. Şekil 2.10’da örgü parametrelerinin ve birim hücre hacminin sıcaklığa bağlı değişimi görülmektedir.

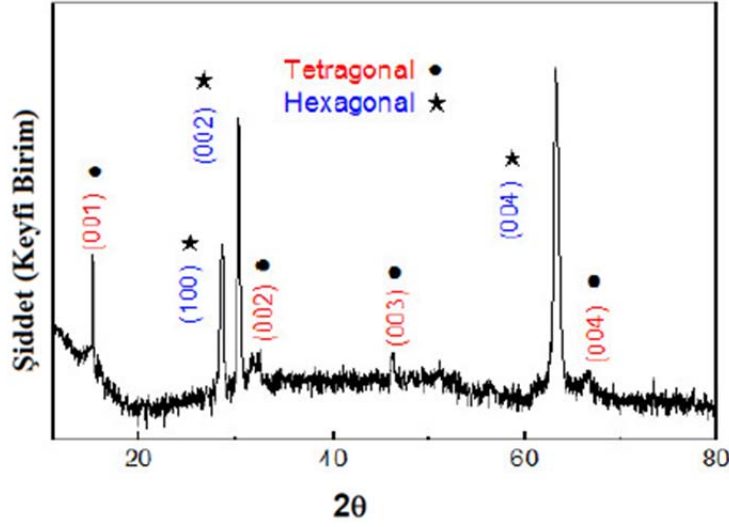


Şekil 2.10. Süperiletken FeSe’deki örgü sabitleri ve birim hücre hacminin sıcaklığa bağlı değişimi (Margadonna, 2008)

Y. Mizuguchi ve ark.(2008), FeSe’deki süperiletkenlik geçiş sıcaklığının basınçla birlikte arttığını gözlemlediler. Yaptıkları çalışmada 1.48 GPa basınç değerinde süperiletkenlik başlangıç sıcaklığını,  $T_c^{\text{onset}}$ , 27 K’ye kadar çıkardılar. Bu çalışmadan kısa bir süre sonra Medvedev ve ark. (2009), basınç değerini 8.90 Gpa kadar çıkardıklarında süperiletkenlik geçiş sıcaklığının da yaklaşık 37 K’ye kadar çıktığını raporladılar.

FeSe’deki süperiletkenlik demir ve selenyum oranının Fe:Se=1:0.98 gibi selenyumun demire göre %2 daha eksik olduğu bölgede ortaya çıkar. Bu bölgenin dar olması sebebiyle katıhal yöntemiyle hazırlanan örnekler süperiletken fazının

yanında ferrimagnetik hekzagonal  $\delta$ -FeSe, ferromanyetik hekzagonal  $\text{Fe}_7\text{Se}_8$  ve monoklinik  $\text{Fe}_3\text{Se}_4$  gibi fazlarını da içermektedir. Bu ikincil fazların azaltılması için katıhal yönteminin yanında farklı yöntemler de denenmiştir. Örneğin Zhang ve ark. (2009), akı (flux) olarak NaCl/KCl karışımını kullanarak süperiletken  $\text{FeSe}_x$  örneklerini hazırlamışlardır. Hazırlanan örnek yaklaşık 10K'de süperiletken duruma geçerken, örneğin kristal yapısında hekzagonal ve tetragonal yapılar gözlenmiştir. Örneğin XRD deseni Şekil 2.11'de verilmiştir.

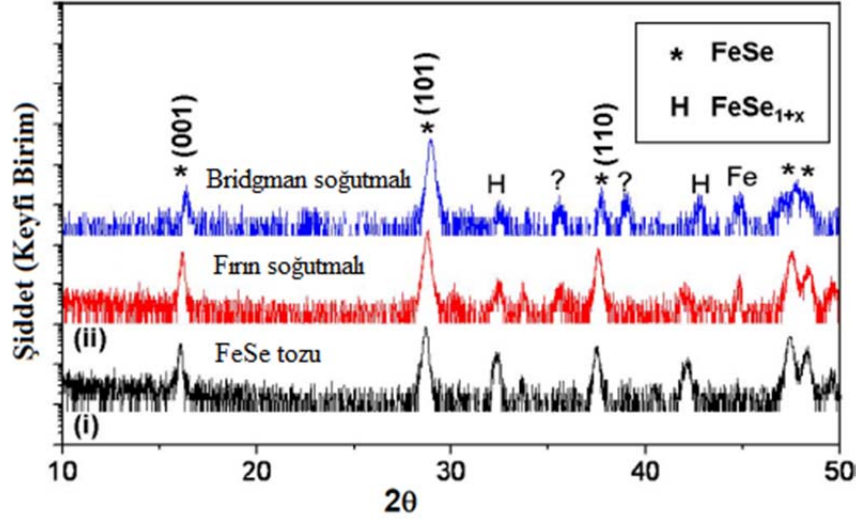


Şekil 2.11.  $\text{FeSe}_x$  örneğinin XRD deseni (Zhang, 2009)

Hu ve ark. (2011), akı olarak LiCl/CsCl kullanarak  $\beta\text{-Fe}_{1.00(2)}\text{Se}_{1.00(3)}$  tek kristallerini üretmişlerdir. Akı olarak LiCl/CsCl kullanmalarındaki amaç bu akının  $\beta$ -FeSe'nin Fe ve  $\delta$ -FeSe'ya ayrıldığı sıcaklık olan  $457^\circ\text{C}$ 'den düşük sıcaklıktaki  $326^\circ\text{C}$ 'de ötekinik noktasına sahip olmasındandır. Üretilen örnek büyük oranda süperiletken  $\beta$ -FeSe içerirken az da olsa  $\alpha$ -FeSe,  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  ve Fe safsızlıklarına rastlanılmıştır.

Yang ve ark. (2011), Bridgman metodu kullanarak FeSe süperiletken kristali elde etmişlerdir. Ancak Şekil 2.12'deki XRD sonuçlarına bakılırsa

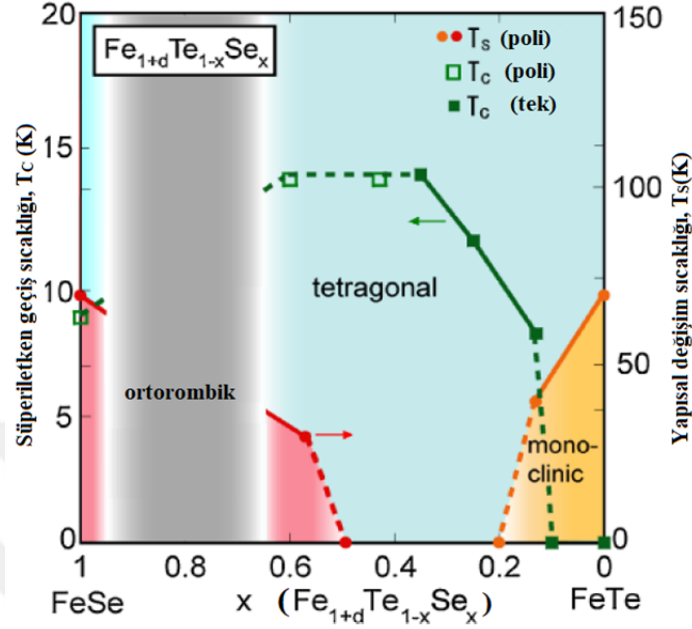
süperiletken fazın yanında süperiletken olmayan hekzagonal yapılar ve demire ait pikler de gözlenmiştir.



Şekil 2.12. Fırın soğutmalı ve Bridgman soğutmalı örnekler için XRD desenleri (Yang, 2011)

Yeh ve ark. (2008),  $\text{FeSe}_{1-x}\text{Te}_x$  ( $x=0-1$ ) sisteminde selenyum yerine tellür katkılmasıyla süperiletkenlik geçiş sıcaklığının arttığını gözlemlemişlerdir. Geçiş sıcaklığı  $\text{FeSe}_{0.8}\text{Te}_{0.2}$  kompozisyonunda 13.7 K,  $\text{FeSe}_{0.5}\text{Te}_{0.5}$  kompozisyonunda 15.2 K ile en yüksek değerini aldıktan sonra tellür miktarının artmasıyla geçiş sıcaklığı  $\text{FeSe}_{0.1}\text{Te}_{0.9}$  11.4 K'ye düşmüştür. FeTe ise süperiletken duruma geçmemiştir.

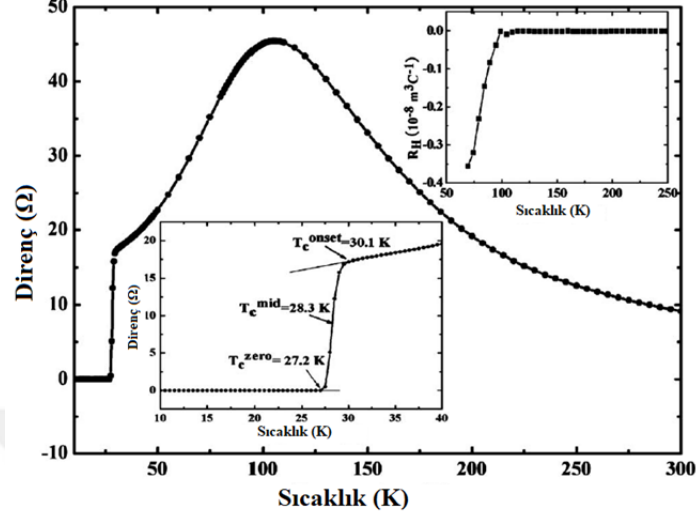
Mizuguchi ve ark. (2010), Şekil 2.13'de verilen  $\text{Fe}_{1+d}\text{Te}_{1-x}\text{Se}_x$  sisteminin faz diyagramını geliştirmişlerdir. FeSe sisteminde görülen yapısal faz dönüşümünün tellür artışıyla birlikte baskılandığını ifade etmişlerdir. En yüksek  $T_c$  tetragonal fazda ve  $x=0.5$  durumunda gerçekleşirken tellür artışıyla birlikte  $T_c$  kademeli olarak azaldığını antiferromanyetik düzenin ortaya çıkarak bulk tipi süperiletkenliğin yok olduğunu ifade etmişlerdir.



Şekil 2.13.  $\text{Fe}_{1+d}\text{Te}_{1-x}\text{Se}_x$  sisteminin faz diyagramı (Mizuguchi, 2010)

Guo ve ark. (2010),  $\text{K}_{0.8}\text{Fe}_2\text{Se}_2$  sisteminde 30K'nin üstünde süperiletkenliği buldular. Kristal yapısı  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  yapısına benzeyen bu sistemin iletim mekanizması elektronlar tarafından olduğu Hall etkisi ölçümlerinden ortaya çıkarılmıştır. Şekil 2.14'de  $\text{K}_{0.8}\text{Fe}_2\text{Se}_2$ 'nin direnç-sıcaklık grafiği ve grafiğin iç kısmında da Hall katsayısı sıcaklık değişimi verilmektedir.  $\text{K}_{0.8}\text{Fe}_2\text{Se}_2$  direnci yüksek sıcaklıklarda yarıiletken tipi bir davranış sergiledikten sonra merkezi 105 K olan geniş bir tepe çizdikten sonra düşük sıcaklıklarda metalik davranış göstermiş ve 30 K'de ani bir düşüş göstererek süperiletken duruma geçmiştir.





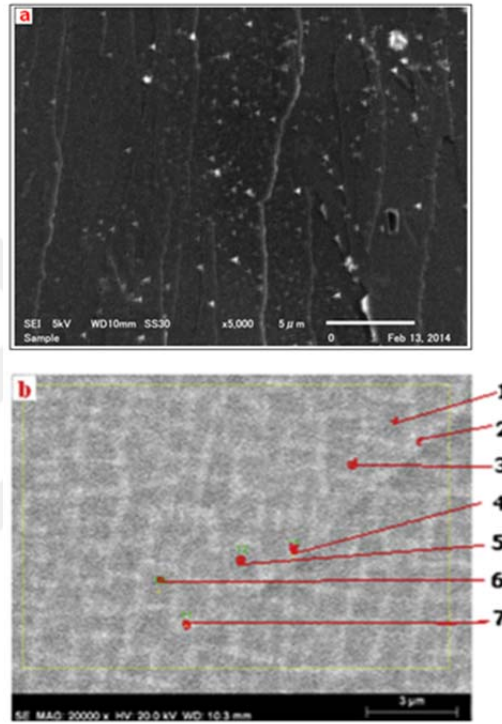
Şekil 2.14.  $K_{0.8}Fe_2Se_2$  örneği için direnç-sıcaklık grafiği (Guo, 2010)

Bao ve ark. (2011),  $K_{0.8}Fe_{1.6}Se_2$  örneğinin nötron-kırınımı deneylerini yapmışlardır. 30 K'de süperiletken durum gösteren örneğin kompozisyonu demir boşluklu yapıdaki  $K_{0.83(2)}Fe_{1.64(1)}Se_2$  olarak belirlemişlerdir. Bu yapının  $3.31 \mu_B/Fe$  gibi manyetik momentli bir antiferromanyetik düzene ve 559 K'lik bir Néel sıcaklığına sahip olduğunu ifade ettiler.

Wang ve ark. (2011),  $K_{0.8}Fe_xSe_2$  ve  $KFe_xSe_2$  kristallerinin yapısal özelliklerini TEM ile analiz etmişlerdir.  $1.5 \leq x \leq 1.6$  aralığındaki malzemeler demir boşluklu bir yapı sergilediğini ifade etmişlerdir. Süperiletken  $K_{0.8}Fe_xSe_2$  ve  $KFe_xSe_2$  ( $1.5 \leq x \leq 1.6$ ) kristallerin ise özellikle c eksenini boyunca net bir faz ayrımı içerdiğini gözlemlemişlerdir.

Kantarıcı Güler ve ark. (2015),  $K_{0.8}Fe_{2-y}Se_2$  kristalini one-step yöntemiyle sentezlemişlerdir. Şekil 2.15'deki ikincil (SE) modunda çekilen SEM fotoğrafında görüldüğü örnek birbirini ardına dizilmiş tabak benzeri düzlemlerden oluşmuştur. Geri saçılan elektron modunda (BSE) çekilen SEM fotoğrafına bakılırsa örnek içerisinde siyah ve beyaz bölgelerin olduğu görülür. Siyah ve beyaz bölgelerin kompozisyonlarını sırasıyla  $K_{0.78(2)}Fe_{1.62(3)}Se_2$  ve  $K_{0.63(7)}Fe_{1.89(1)}Se_2$  olarak

belirlenmiştir. Siyah bölgedeki Fe'nin Se oranı siyah bölge için yaklaşık 4:5 olduğundan bu faz yalıtkan Fe-boşluklu, anti-ferromagnetik  $K_2Fe_4Se_5$  fazına karşılık geldiğini, siyah bölgeye göre daha fazla demir içeren beyaz bölgelerin ise süperiletkenlik fazına karşılık geldiğini ifade edilmiştir.



Şekil 2.15.  $K_xFe_{2-y}Se_2$  kristalinin (a) SE ve (b) BSE modunda çekilen SEM fotoğrafları (Kantarcı Güler, 2015)



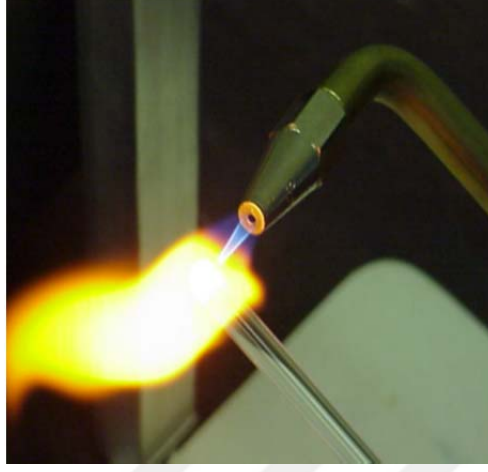
### 3. MATERYAL VE METOT

#### 3.1. Materyal

Bu tez kapsamında üretilen FeSe tabanlı kristallerinin oksijene aşırı duyarlılığı, özellikle selenyumun toksik oluşu ve uçucu özelliği gibi sebeplerden dolayı reaksiyonlar kapalı kuvars tüp içerisinde gerçekleştirilmiştir. Örneklerin tartımı ve kuvars tüpe yerleştirilmesi O<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O miktarının 0.1 ppm değerinden az olduğu glove-box (eldivenli kutu) ortamında gerçekleştirilmiştir. Kuvars tüpün kapatılması, oksijen ve hidrojen gazları kullanılarak kuvars tüpün eritilmesi suretiyle yapılır. Şekil 3.1'de glove-box ve Şekil 3.2'de ise kuvars tüpün kapatılmasında kullanılan pürmüz (flame-torch) görülmektedir.



Şekil 3.1. Glove-Box (www.vigorgb.com)



Şekil. 3.2. Pürmüz (<http://www.eas.slu.edu/isotope/torch2.jpg>)

### 3.2. Metot

FeSe ve FeAs tabanlı yapıların sentezlenmesinde kullanılan başlıca yöntemler katıhal, yüksek basınç, sıvı amonyak ve Bridgman yöntemleridir.

#### 3.2.1. Katıhal Yöntemi

Katıhal yöntemi, az maliyetli olması, polikristal malzemelerin hazırlanmasında kolaylık sağlaması sebebiyle araştırmacılar tarafından sıklıkla başvurulan bir yöntemdir. Ayrıca yeni malzemelerin keşfinde ya da üretilecek malzemenin sentezlenme koşullarıyla ilgili bilgi birikimi olmadığı zaman ilk başvurulan yöntemdir. Genel prensip, toz haldeki katı başlangıç malzemelerin stokiyometrik oranlarda tartılıp yüksek sıcaklıklara çıkılarak reaksiyonun sağlanmasıdır. Bu yöntemde reaksiyonlar katı halde gerçekleştiğinden erime olayı gözlenmez. Reaksiyon tanecik sınırlarında iyonların difüzyonu yoluyla gerçekleşir. Yüzey alanını artırıp difüzyon hızını ve homojenliği artırmak için başlangıç malzemeleri iyice karıştırılıp öğütülür. Daha sonra reaksiyon derecesini artırmak için karıştırılan toz pelet haline de getirilebilir. Örneğin, FeSe süperiletken kristalinin hazırlanması için demir ve selenyum tozları stokiyometrik oranlarda tartılır ( $\text{FeSe}_{1-x}$ ,  $x=0.03-0.18$ ), karıştırılır ve öğütülür. Sonrasında pelet haline

getirilen örnekler havası alınmış kuvars tüpe yerleştirilerek 700°C'de 24 saat bekletildikten sonra fırından çıkartılır. Öğütülüp pelet haline getirilen örnekler ikinci kez 700°C'de 24 saat bekletildikten sonra son kez 400°C'de 36 saat bekletilerek ısıl işlem süreci sonlandırılır (Hsu, 2009).

### 3.2.2. Yüksek Basınç Yöntemi

Yarı kararlı yapıların sentezlenmesinde kullanılan bir yöntemdir. Uygulanan yüksek basınç başlangıç malzemelerin çözünürlük limitleri artırarak daha düşük oksidasyon durumlarına sahip ürünlerin oluşmasını sağlar. Bu yöntem reaksiyon sürelerinin kısaltır ve uçucu elementlerin buharlaşmasını azaltır. Bu yöntemin en önemli dezavantajları ise kullanımının zor olması, küçük örnek haznesinden dolayı örneklerin çokça üretilmemesi ve kısa reaksiyon süreleri nedeniyle reaksiyona girmemiş yan ürünlere rastlanmasıdır. Örneğin Miyazawa ve ark.  $\text{LnFeAsO}_{1-y}$  (Ln= Nd, Sm, Gd, Tb ve Dy) yapısını 2-5.5Gpa basınç uygulayarak sentezlemişlerdir.

### 3.2.3. Sıvı Amonyak Yöntemi

Bu yöntemde erişilemeyen yarı kararlı fazların ya da yüksek sıcaklıklarda kararsız olan fazların sentezlenmesi sıvı amonyak kullanılarak sağlanır. Burada amonyak reaksiyonda hem çözücü hem de katalizör olarak görev alır. Örneğin Ying ve ark.  $\text{A}_x\text{Fe}_2\text{Se}_2$  (A= Li, Na, Ba, Sr, Ca, Yb ve Eu) yapısını sıvı amonyak yöntemini kullanarak sentezlemişlerdir.

### 3.2.4. Bridgman Yöntemi

Bridgman yöntemi, başlangıç malzemelerinin erime noktalarının biraz üzerine çıkılarak elde edilen eriyikten yavaş soğutma yöntemiyle ürün elde etme yöntemini ifade eder. Yüksek erime noktasına sahip malzemeleri eritmek için kullanılacak bir potayı bulmak zor olabileceğinden nispeten düşük erime noktasına

sahip malzemeleri hazırlamaya olanak verir. Reaksiyon boyunca kullanılan pota içerisinde bir sıcaklık farkı oluşturularak potanın soğuk kısmında kristaller eriyik içerisinden yavaşça büyütülür. Örneğin Sales ve ark. tarafından  $Fe_{1+y}Te_xSe_{1-x}$  örnekleri Bridgman yöntemi kullanılarak hazırlanmıştır. Uygun miktarlardaki Fe, Te ve Se parçaları Bridgman ampülüne alınarak  $1070^{\circ}C$ 'da 36 saat boyunca bekletilip eritildikten sonra  $3-6^{\circ}C/sa$  hızla soğutularak  $Fe_{1+y}Te_xSe_{1-x}$  örneklerini elde etmişlerdir.

### 3.2.5. Flux (Akı) Yöntemi

Yüksek sıcaklıklarda eriyen ya da erimeden ayrışmayan malzemelerin hazırlanmasında başvurulan bir yöntemdir. Bu yöntem başlangıç malzemelerinin bir flux ile karıştırılıp eritilmesi esasına dayanır. Kullanılan flux düşük erime noktasına sahip ve reaksiyona giren malzemeleri çözen bir çözelti olarak düşünülebilir. Flux olarak Sn, In, Zn, Ga gibi düşük erime noktasına sahip metaller, NaCl, KCl,  $SrCl_2$  gibi ötektik tuzlar ve FeAs, KAs gibi ikili sistemler kullanılabilir. İyi bir flux:

- Reaksiyona giren malzemelere iyi bir çözünme ve yayılabilme ortamı sağlamalıdır.
- Kolayca ürün kısmından ayrışmalıdır. Örneğin suda iyi çözünmelidir.
- Başlangıç malzemelerle reaksiyona girerek ürün kısmında kalıp safsızlık oluşturmamalıdır.

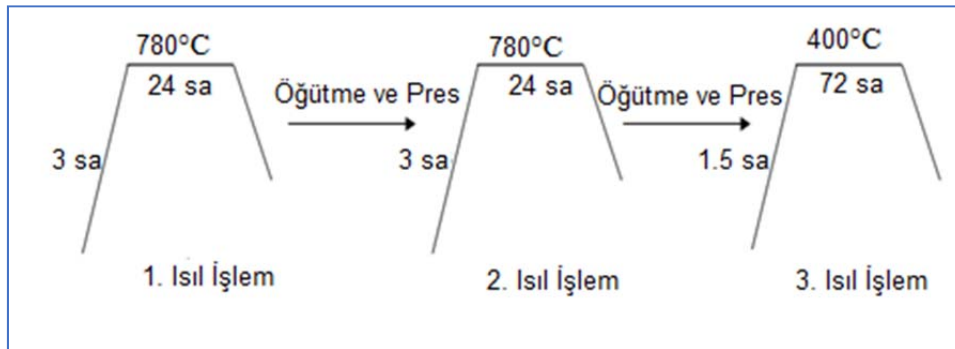
FeAs ve FeSe tabanlı süperiletkenlerde flux olarak ürünü oluşturan FeAs ya da Se kullanıldığı için self-flux (öz-akı) adını alır. Örneğin:

- $Ca_{1-x}Na_xFeAs$  için FeAs ( $T_{erime} = 1042^{\circ}C$ )
- $NaFe_{1-x}Co_xAs$  için NaAs ( $T_{erime} = 600^{\circ}C$ )
- FeSeTe için Se ( $T_{erime} = 221^{\circ}C$ ) flux olarak kullanılır.

Bu tez kapsamında ise katıhal ve self-flux yöntemleri kullanılarak örnekler sentezlenmiştir.

### 3.2.6. FeSe-11 Örneklerinin Hazırlanması

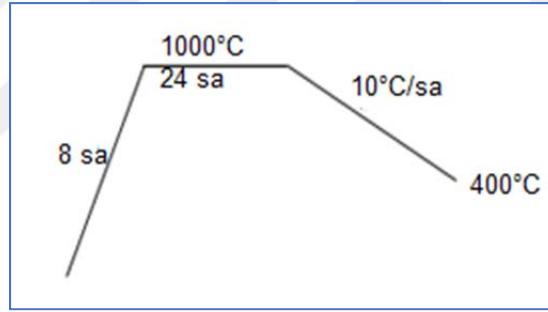
FeSe kristalleri iki farklı ısıl işlem süreci takip edilerek hazırlanmıştır. Örnek-A olarak isimlendirdiğimiz FeSe-11 örneğinde stokiometrik oran Fe:Se= 1:0.98 oranında alınmıştır. Demire göre selenyum %2 oranında daha az alınmıştır. Bunun sebebi süperiletken fazın selenyum azlığında ortaya çıkmasıdır. Demir ve selenyum molar oranları  $FeSe_{0.98}$  olacak şekilde tartılıp agat havanda 25 dakika öğütüldü. Öğütülen tozlar 10 dakika süreyle 7 barla preslenerek pelet yapıldıktan sonra kuvars tüpe yerleştirildi. Daha sonra kuvars tüp vakumlanıp kapatıldı. Sonrasında ise  $780^{\circ}C$ 'de 24 saat bekletildikten sonra tüp soğumaya bırakıldı. Soğuduktan sonra kuvars tüpten çıkarılan peletler agat havana aktarılıp 25 dakika öğütülmüştür. Toz haline getirilen örnek preslenerek tekrar pelet haline getirilerek kuvars tüpe yerleştirilmiştir. Sonrasında ise ikinci kez  $780^{\circ}C$ 'de 24 saat bekletildikten sonra tüp soğumaya bırakılmıştır. Öğütülüp pelet haline getirilen örnek son sinterleme işlemi olarak  $400^{\circ}C$ 'de 72 saat bekletildikten sonra soğutulmaya bırakılmış ve ölçüm için hazır hale gelmiştir. Şekil 3.3'de Örnek-A'nın ısıl işlem süreci gösterilmiştir.



Şekil 3.3. Örnek-A'nın ısıl işlem süreci



Örnek-B ise Örnek-A'daki gibi üç ısıl işlem yerine tek ısıl işlem uygulanarak üretilmiştir. Demir tozları ve selenyum granülleri molar oranları  $\text{FeSe}_{0.98}$  olacak şekilde tartılıp kuvars tüpe yerleştirildi. Daha sonra quartz tüp  $1000^{\circ}\text{C}$ 'ye kadar ısıtılarak bu sıcaklıkta 24 saat bekletildi. Bu sıcaklığa kadar çıkılmanın sebebi ise  $\text{FeSe}$ 'nin eritilerek sıvı faza dönüştürülmesi ve kristallerin sıva fazdan büyütülerek elde edilmesidir. 24 saat bekleme işleminden sonra kuvars tüp 60 saatte  $400^{\circ}\text{C}$ 'ye kadar soğutulurak ölçümlere hazır hale gelmiştir. Buradaki soğutma hızı  $10^{\circ}\text{C}/\text{sa}$ 'ya karşılık gelmektedir. Örnek-B'nin ısıl işlem süreci Şekil 3.4'de verilmiştir. Elde edilen kristallerin karakterizasyonu için X-Işını Kırınımı (XRD), Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM), Enerji Dağıtıcı X-Işını Spektroskopisi (EDS) ve manyetik ölçümler alındı. Manyetik ölçümler Fiziksel Özellikler Ölçüm Sistemi (PPMS, Quantum Design) kullanılarak yapıldı.

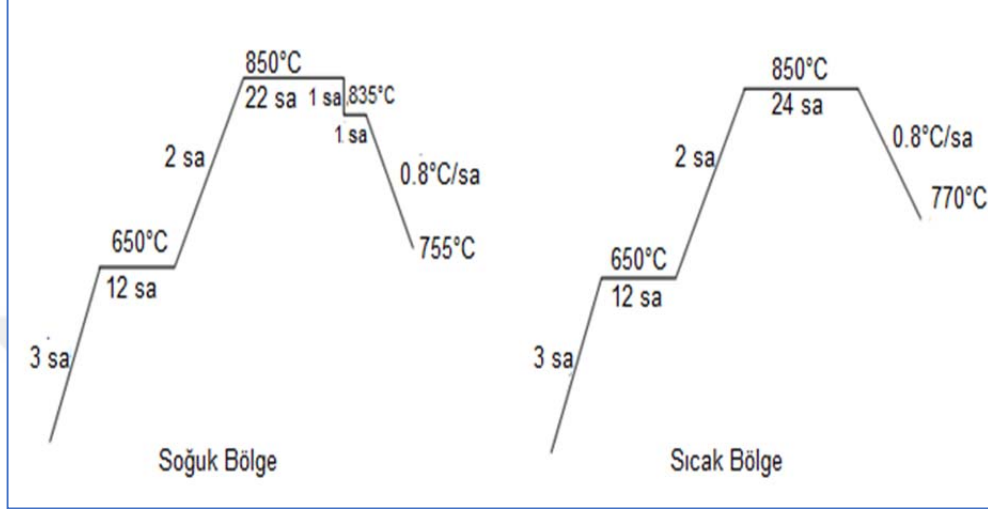


Şekil 3.4. Örnek-B'nin ısıl işlem süreci

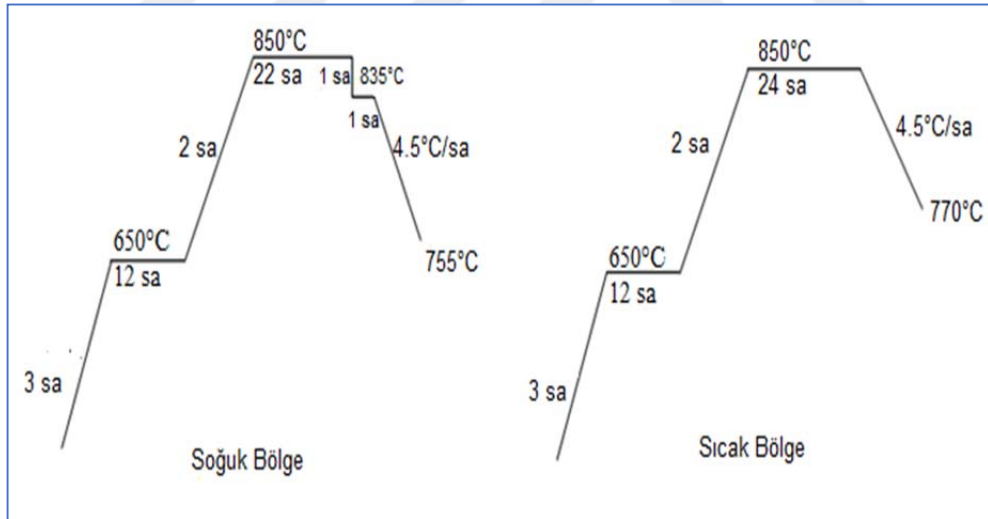
### 3.2.7. $\text{FeSe}_{0.4}\text{Te}_{0.6}$ Örneklerinin Hazırlanması

$\text{FeSe}_{0.4}\text{Te}_{0.6}$  örnekleri self-flux yöntemiyle hazırlanmıştır. %99.999 saflıktaki Fe, Se ve Te elementleri molar oranları  $\text{FeSe}_{0.4}\text{Te}_{0.6}$  olacak şekilde tartılıp kuvars tüpe konularak yüksek vakum altında kapatıldı. Daha sonra  $0.8^{\circ}\text{C}/\text{sa}$  ve  $4.5^{\circ}\text{C}/\text{sa}$  gibi iki farklı soğutma hızı kullanılarak Örnek-1 ve Örnek-2 olarak isimlendirdiğimiz örnekler hazırlanmıştır. Örnek-1 ve Örnek-2'nin ısıl işlem süreçleri Şekil 3.5 ve Şekil 3.6'da sırasıyla verilmiştir. Soğuk bölgede sıcaklık  $835^{\circ}\text{C}$ 'de bekletilerek sıcak bölge ile soğuk bölge arasında bir sıcaklık farkı

oluşturulmuştur. Böylece soğuk bölgede eriyik içerisinde kristaller yavaşça büyür. Bu yöntem değiştirilmiş Bridgman metodu olarak da bilinir.



Şekil 3.5. Örnek-1'in ısıtım süreci

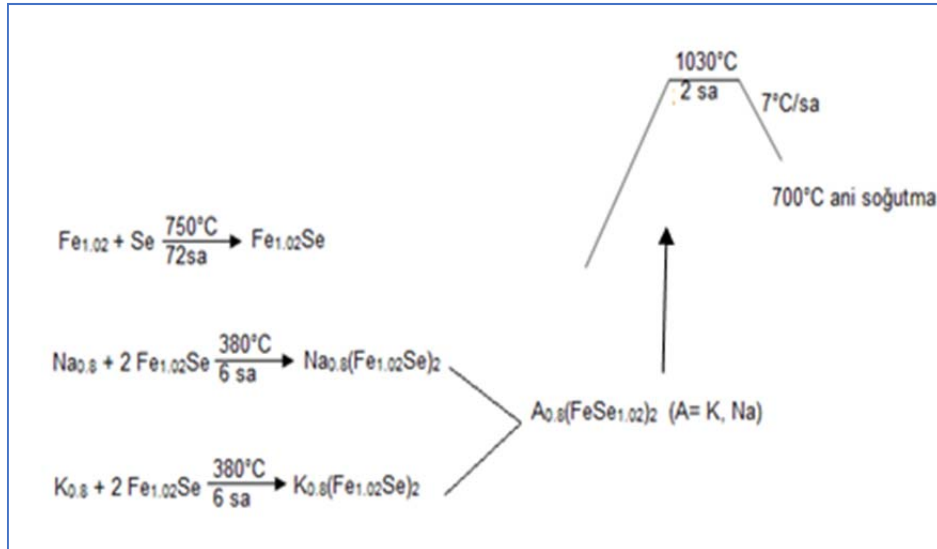


Şekil 3.6. Örnek-2'in ısıtım süreci

### 3.2.8. $(K_{1-x}Na_x)_{0.8}Fe_2Se_2$ Örneklerinin Hazırlanması

$(K_{1-x}Na_x)_{0.8}Fe_2Se_2$  kristalleri self-flux yöntemiyle hazırlandı. Bütün hazırlanma basamakları  $O_2-H_2O$  miktarının 0.1 ppm'den az olduğu argon gazıyla

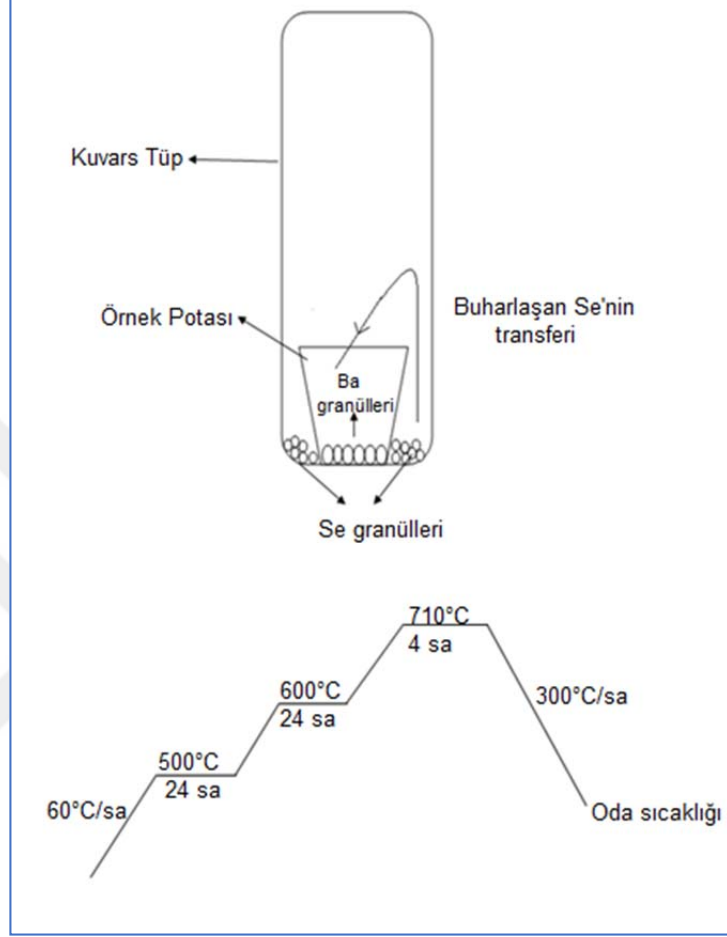
dolu glove-box ortamında hazırlandı. İlk olarak %99.999 saflıktaki Fe, Se elementleri  $Fe_{1.02}Se$  molar oranlarda tartılıp kuvars tüpe konularak yüksek vakum altında kapatıldı. Daha sonra kuvars tüp ısıtılıp  $750^{\circ}C$  sıcaklıkta 72 saat bekletilerek  $Fe_{1.02}Se$  kristalleri elde edilir. Sonraki basamakta  $FeSe_{1.02}$  kristalleri ile %99.999 saflıktaki Na, K elementleri ayrı ayrı  $A_{0.8}(FeSe_{1.02})_2$  ( $A=K,Na$ ) stokiometrik oranları sağlayacak şekilde karıştırılır ve  $380^{\circ}C$ 'de 6 saat boyunca reaksiyona sokulur. Elde edilen  $Na_{0.8}(FeSe_{1.02})_2$  ve  $K_{0.8}(FeSe_{1.02})_2$  kristalleri çeşitli oranlarda karıştırılarak bir kuvars tüpe yerleştirildi. Bu kuvars tüp daha büyük bir kuvars tüpe konulup kapatıldıktan sonra  $1030^{\circ}C$ 'de 2 saat bekletilerek  $700^{\circ}C$ 'ye kadar yavaşça soğutuldu. Daha sonra ani soğutma (quench) yapılarak örnekler fırından çıkarıldı. Şekil 3.7'de ısıl işlem süreçleri şematik olarak verilmiştir. Elde edilen kristallerin karakterizasyonu için X-Işını Kırınımı (XRD), Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM), Enerji Dağıtıcı X-Işını Spektroskopisi (EDS) ve manyetik ölçümler alındı. Manyetik ölçümler Fiziksel Özellikler Ölçüm Sistemi (PPMS, Quantum Design) kullanılarak yapıldı.



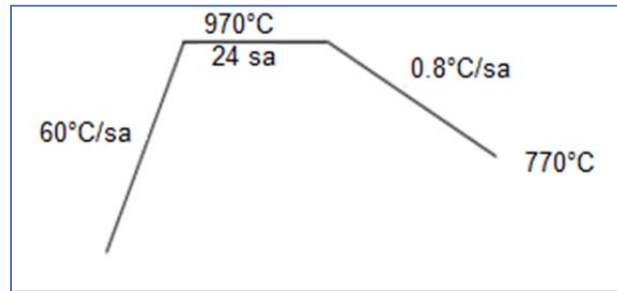
Şekil 3.7.  $(K_{1-x}Na_x)_{0.8}Fe_2Se_2$  örneklerinin ısıl işlem süreçleri

**3.2.9. BaFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> Örneklerinin Hazırlanması**

Bu çalışmada BaFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneği self-flux yöntemiyle hazırlandı. İlk olarak olarak %99.999 saflıktaki Ba ve Se elementleri stokiometrik oranlarda tartıldıktan sonra baryum granülleri kuvars tüp içerisindeki üst tarafı açık pota içerisine, selenyum granülleri ise kuvars tüp içerisine konuldu. Daha sonra kuvars tüp 60°C/sa hızla ısıtılarak 500°C ve 600°C'de 24 saat ve 710°C'de 4 saat bekletildikten sonra 300°C/sa hızla oda sıcaklığına kadar soğutularak fırından çıkartıldı. Deney düzeneği ve ısıl işlem süreci Şekil 3.8'de gösterilmiştir. Elde edilen BaSe örneğine uygun oranda FeSe ve Fe katılıp kuvars tüpe koyulup yüksek vakum altında kapatıldı. Daha sonra kuvars tüp 60°C/sa hızla ısıtılarak 970°C'de 24 saat bekletildikten sonra 770°C'ye 0.8°C/sa hızla soğutulduktan sonra ısıl işlem sonlandırıldı (Şekil 3.9). Fırının kendiliğinden soğuması beklenilerek oda sıcaklığında örnek fırından çıkartıldı Elde edilen örneğin karakterizasyonu için X-Işını Kırınımı (XRD), Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM), Enerji Dağıtıcı X-Işını Spektroskopisi (EDS) ve manyetik ölçümler alındı. Manyetik ölçümler Fiziksel Özellikler Ölçüm Sistemi (PPMS, Quantum Design) kullanılarak yapıldı.

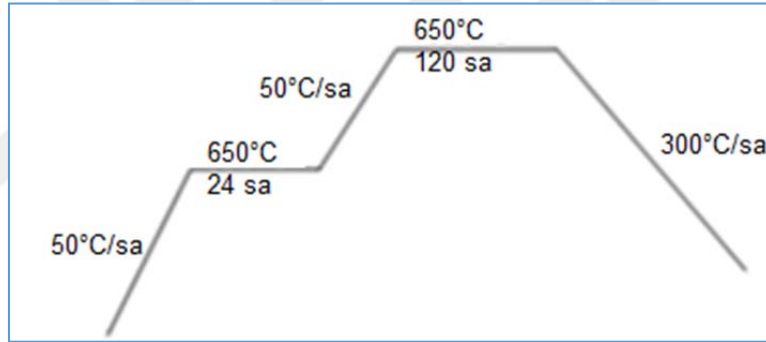


Şekil 3.8. BaSe için deney düzeneği ve ısıl işlem süreci

Şekil 3.9 BaFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> için ısıl işlem süreci

### 3.2.10. SrFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> Örneklerinin Hazırlanması

Bu çalışmada SrFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneği self-flux yöntemiyle hazırlandı. Burada başlangıç malzemesi (precursor) olarak %99.999 saflıktaki SrSe, Fe ve Se stokiyometrik oranlarda tartılıp kuvars tüpe konularak yüksek vakum altında kapatıldı. Daha sonra kuvars tüp 50°C/sa hızla ısıtılarak 650°C'de 24 saat bekletildikten sonra 50°C/sa hızla ısıtılarak 830°C'de 120 saat bekletilip 300°C/sa hızla oda sıcaklığına kadar soğutulularak fırından çıkartıldı (Şekil 3.10). Elde edilen örneğin karakterizasyonu için X-Işını Kırınımı (XRD), Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM), Enerji Dağıtıcı X-Işını Spektroskopisi (EDS) ve manyetik ölçümler alındı. Manyetik ölçümler Fiziksel Özellikler Ölçüm Sistemi (PPMS, Quantum Design) kullanılarak yapıldı.

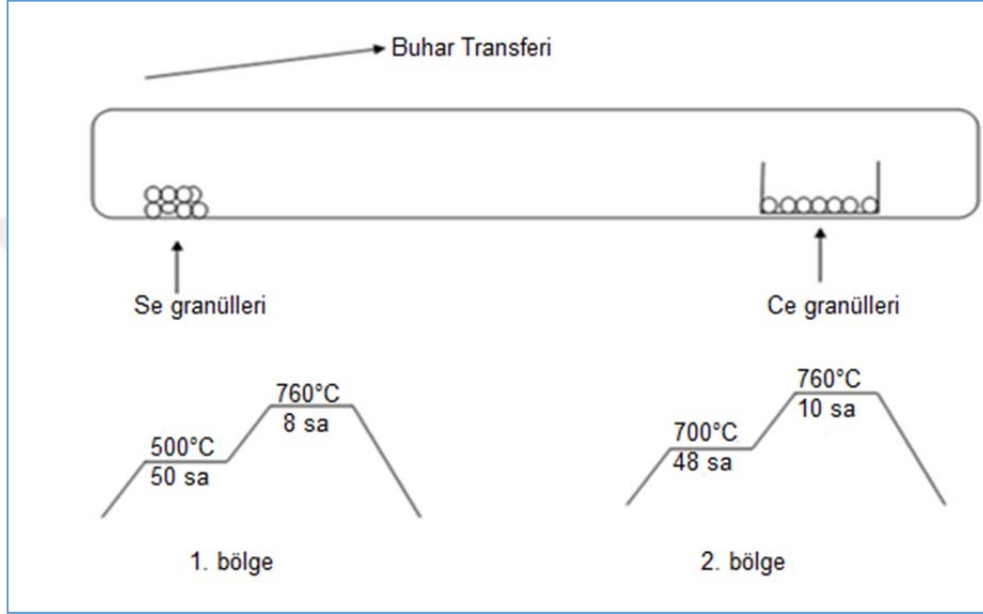


Şekil 3.10. SrFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneğinin ısıtma süreci

### 3.2.11. CeFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> Örneklerinin Hazırlanması

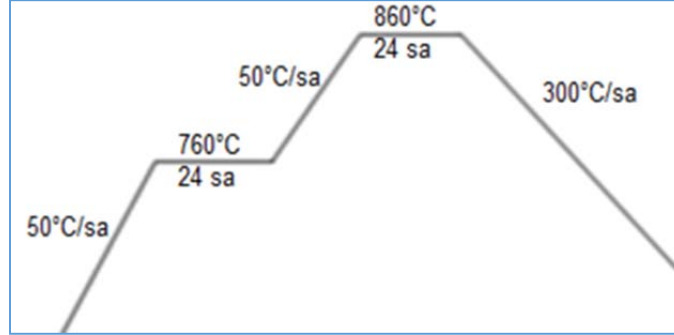
Bu çalışmada CeFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneği self-flux yöntemiyle hazırlandı. Bütün hazırlanma basamakları O<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O miktarının 0.1 ppm'den az olduğu argon gazıyla dolu glove-box ortamında hazırlandı. İlk olarak %99.999 saflıktaki Ce ve Se elementleri CeSe<sub>2</sub> molar oranlarda tartılıp kuvars tüpe konularak yüksek vakum altında kapatıldı. Kuvars tüpün bir tarafına selenyum granülleri diğer tarafına ise pota içerisinde seryum granülleri yerleştirildi. Kuvars tüpün selenyum tarafı 500°C'de 50 saat bekletilerek selenyum granüllerinin buharlaştırılması sağlandı.

Buharlaşan selenyum granülleri pota içerisindeki seryum parçacıklarına ulaşır ve yavaş bir şekilde  $CeSe_2$  kompozisyonunun oluşturulması sağlandı.  $CeSe_2$ 'nin ısıtılma süreci ve deney düzeneği Şekil 3.11'de şematik olarak verilmiştir.



Şekil 3.11.  $CeSe_2$ 'nin deney düzeneği ve ısıtılma süreci

Elde edilen  $CeSe_2$  kristaline Fe elementi  $CeFe_2Se_2$  nominal kompozisyonu sağlanacak şekilde eklenerek ısıtılma sürecine tabi tutuldu. İlk olarak  $760^\circ C$ 'ye  $50^\circ C/sa$  hızla çıkılarak 24 saat bekletildikten sonra  $860^\circ C$ 'ye  $50^\circ C/sa$  hızla çıkılıp 24 saat bekletildi. Daha sonra oda sıcaklığına  $300^\circ C/sa$  hızla inilerek örnek fırından çıkartıldı (Şekil 3.12). Elde edilen örneğin karakterizasyonu için X-Işını Kırınımı (XRD), Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM), Enerji Dağıtıcı X-Işını Spektroskopisi (EDS) ve manyetik ölçümler alındı. Manyetik ölçümler Fiziksel Özellikler Ölçüm Sistemi (PPMS, Quantum Design) kullanılarak yapıldı.



Şekil 3.12. CeFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneğinin ısıtım süreci.

### 3.3. Malzemelerin Analiz Yöntemleri

#### 3.3.1. XRD

Bir X-ışını difraktometresi yüksek voltaj altında hızlandırılan elektronların bir hedefe çarptırılarak üretilen X ışınlarının örnek yüzeyine gönderilmesi prensibine göre çalışır. Kırınımına uğrayan ışınların oluşturduğu XRD desenlerinden, örneğin atomik düzlemleri arasındaki mesafe, kristal yapısı, birim hücre boyutu ve kristalleşmenin ölçüsü gibi birçok konuda bilgi sağlanır. Çalışmalarımızda İnönü Üniversitesi Bilimsel ve Teknolojik Araştırma Merkezi bünyesindeki Rigaku RadB-DMAX-II bilgisayar kontrollü X-ışını Difraktometresi kullanılmıştır. Örnekler cam tutucuya yerleştirilerek  $2 < 2\theta < 80$  arasında,  $3^\circ/\text{dak}$  tarama hızında ve  $\text{CuK}_\alpha$  ( $\lambda=1,5405\text{\AA}$ ) radyasyonu kullanılarak ölçümler alınmıştır.

#### 3.3.2. SEM

Taramalı elektron mikroskobu (SEM), uygulanan voltaj altında hızlandırılan elektronların örnek yüzeyini taraması sonucu ortaya çıkan çeşitli sinyallerden örnek görüntüsünün elde edildiği bir elektron mikroskobudur. Elektronların örnekle etkileşimi sonucu örneğin yüzey topografyası, tanecik boyutu ve kimyasal bileşimi hakkında bilgi veren çeşitli sinyaller üretilir. Çalışmalarımızda İnönü Üniversitesi Bilimsel ve Teknolojik Araştırma Merkezi bünyesindeki LEO, EVO 40 XVP marka taramalı elektron mikroskobu ve bu



sisteme monte edilmiş 125 eV'li Bruker dedektör Enerji Dağıtıcı X-ışını Spektroskopisi (EDS) sistemi kullanılmıştır.

### 3.3.3. Süperiletkenlik ve Manyetik Özelliklerin İncelenmesi

Hazırladığımız malzemelerin süperiletken ve manyetik özelliklerinin karakterize etmek için yaptığımız ölçümler ise manyetizasyonun sıcaklıkla değişimi ( $M-T$ ), manyetizasyonun uygulanan alana bağlı değişimi ( $M-H$ ) ve magnetodirenç ( $MR$ ) ölçümleridir. Ölçümlerimizde İnönü Üniversitesi Bilimsel ve Teknolojik Araştırma Merkezi bünyesindeki Fiziksel Özellikler Ölçüm Sistemi (PPMS, Quantum Design) kullanılmıştır.

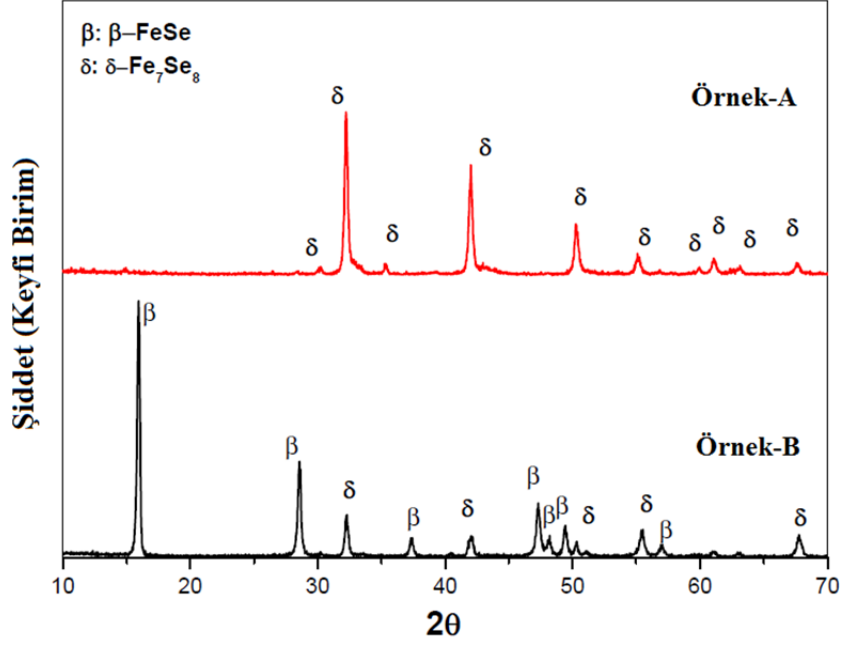
#### 4. BULGULAR VE TARTIŞMA

##### 4.1. FeSe-11 Örneklerinin Analiz Sonuçları

FeSe örnekleri iki farklı ısı işlem süreci uygulanarak hazırlanmıştır. Örnek-A olarak isimlendireceğimiz FeSe örneği, iki kez 780°C’de bir kez de 400°C’de sinterlenerek hazırlanmıştır. Örnek-B olarak isimlendirdiğimiz FeSe örneğinin ısı işlem sürecinde 1000°C’ye çıkılmış FeSe’nin sıvı fazından FeSe elde edilmeye çalışılmıştır.

##### 4.1.1. FeSe-11 Örneklerinin XRD Analizi Sonuçları

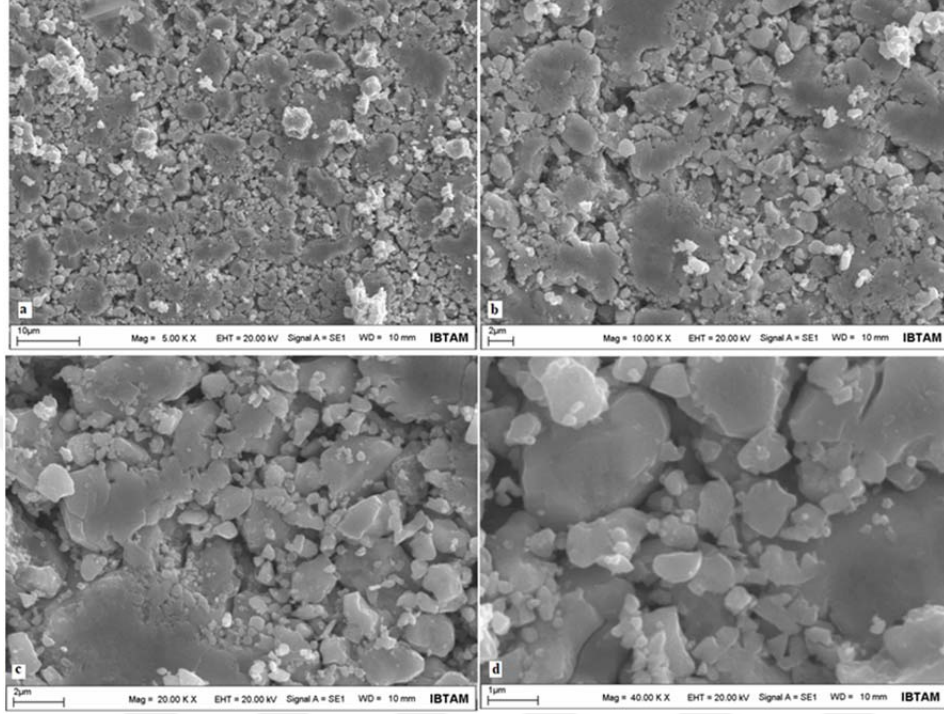
Örnek-A ve Örnek-B’ye ait örneklerine ait XRD ölçümleri Rigaku marka x-ışını difraktometresinde oda sıcaklığında ve  $2^{\circ} \leq 2\theta \leq 80^{\circ}$  aralığında Cu hedeften gelen  $K\alpha$  ışınımı kullanılarak yapılmış olup XRD desenleri Şekil 4.1’de verilmiştir. Örneklerin XRD desenleri incelendiğinde gözlenen piklerin birbirinden oldukça farklı olduğu görülür. 780°C’de sinterlenen Örnek-A’nın XRD desenlerinde  $\delta$ -FeSe fazına ait yansımalar gözlenmiştir. Diğer taraftan Örnek-B’de baskın olan süperiletken  $\beta$ -FeSe fazına ait yansımaların yanında  $\delta$ -FeSe fazına ait nispeten düşük yansımalar da gözlenmiştir.  $P63/mmc$  uzay grubuna ait hegzagonal yapıdaki Örnek-A’nın örgü parametreleri  $a = 3.7382 \text{ \AA}$ ,  $c = 5.4838 \text{ \AA}$  ve  $P4/nmm$  uzay grubuna ait tetragonal yapıda olan Örnek-B’nin örgü parametreleri ise  $a = 3.7736 \text{ \AA}$ ,  $c = 5.5312 \text{ \AA}$  olarak hesaplanmıştır.



Şekil 4.1. Örnek-A ve Örnek-B için XRD desenleri

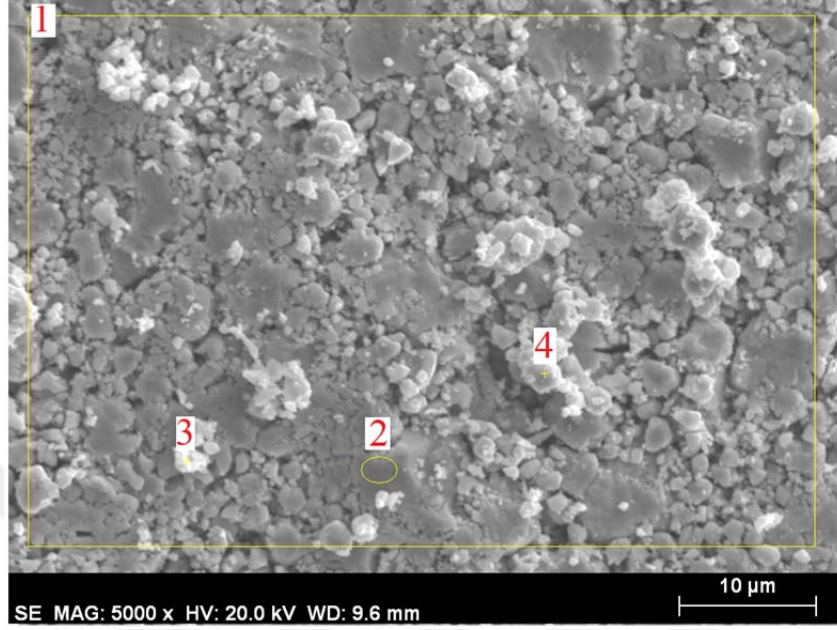
#### 4.1.2. FeSe-11 Örneklerinin SEM ve EDS Analiz Sonuçları

FeSe örneklerinin yüzey morfolojisi SEM-EDS tekniği kullanılarak incelendi. 5.00, 10.00, 20.00 ve 40.00 KX büyütme oranlarında alınan Örnek-A'ya ait ikincil moda (SE) elde edilen SEM görüntüleri Şekil 4.2a-d'de verilmiştir. SEM görüntüleri incelendiğinde Örnek-A'da tanecikli yapının baskın olduğu görülür. Tanecik büyüklükleri 0.1 µm'den 6 µm'ye uzanan çok farklı değerlerde olup kristal içerisinde rastgele yönelim göstermişlerdir.

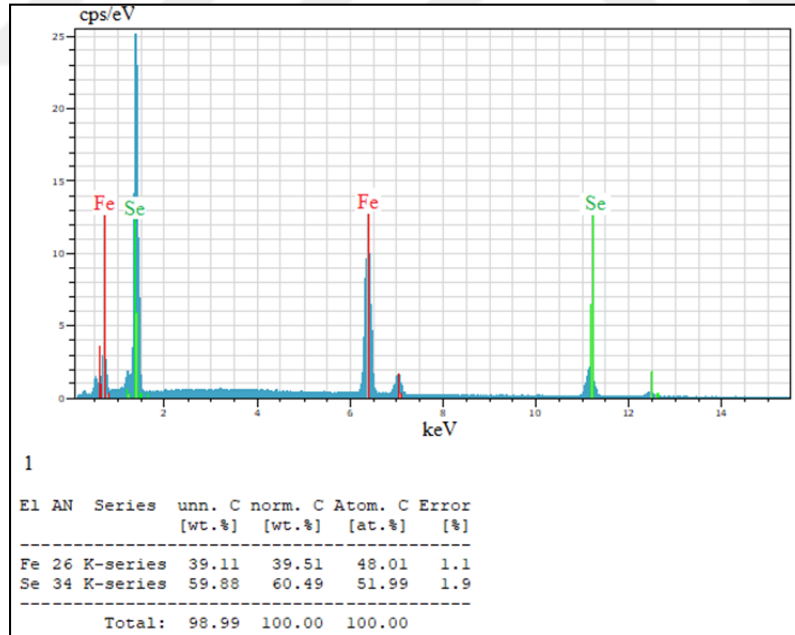


Şekil 4.2. Örnek-A'ya ait a) 5.00 KX, b) 10.00 KX, c) 20.00 KX ve d) 40.00 KX büyütmelemlerde alınan SEM görüntüleri

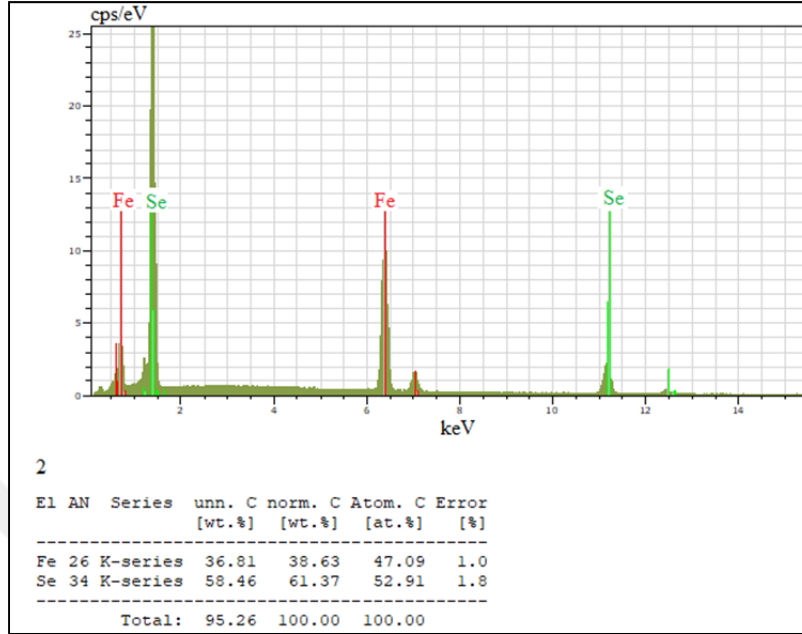
Örnek-A'nın elementel analizleri SEM'e bağlı EDS ile yapılmıştır. Örnek-A için EDS analizinde kullanılan bölgeler Şekil 4.3'deki SEM fotoğrafında verilmiştir. Seçilen her bölgenin EDS analizi sonuçları Şekil 4.4-7'de 1, 2, 3 ve 4. bölge için sırasıyla verilmiştir.



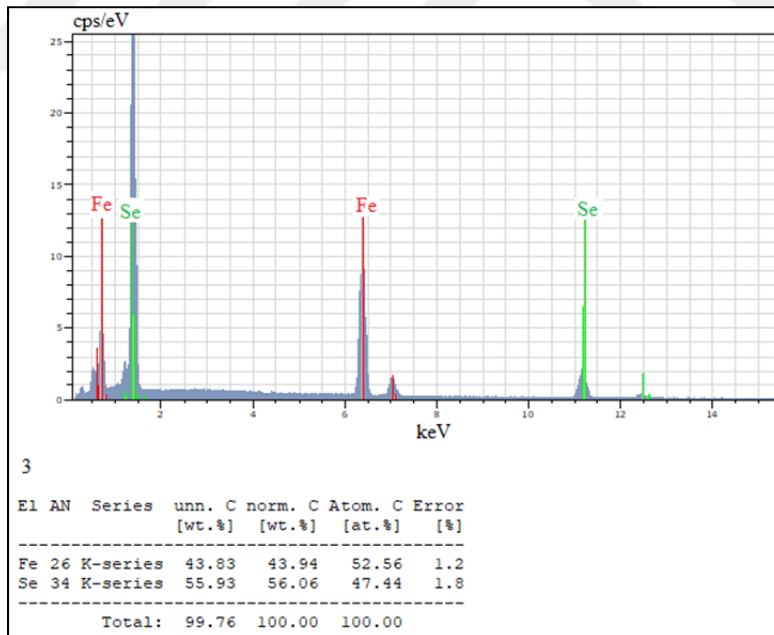
Şekil 4.3. Örnek-A için EDS analizinde kullanılan bölgeler



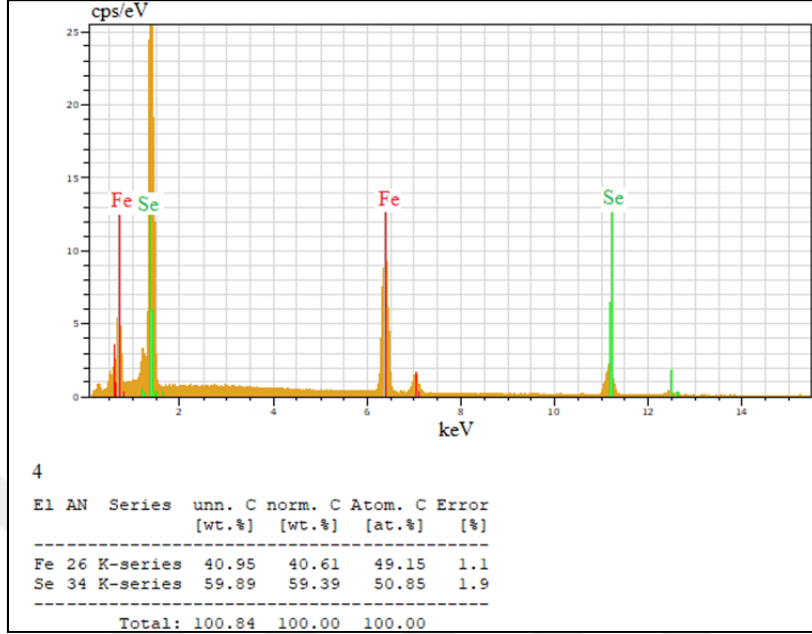
Şekil 4.4. Örnek-A için seçilen 1.bölgenin EDS analizi



Şekil 4.5. Örnek-A için seçilen 2.bölgenin EDS analizi

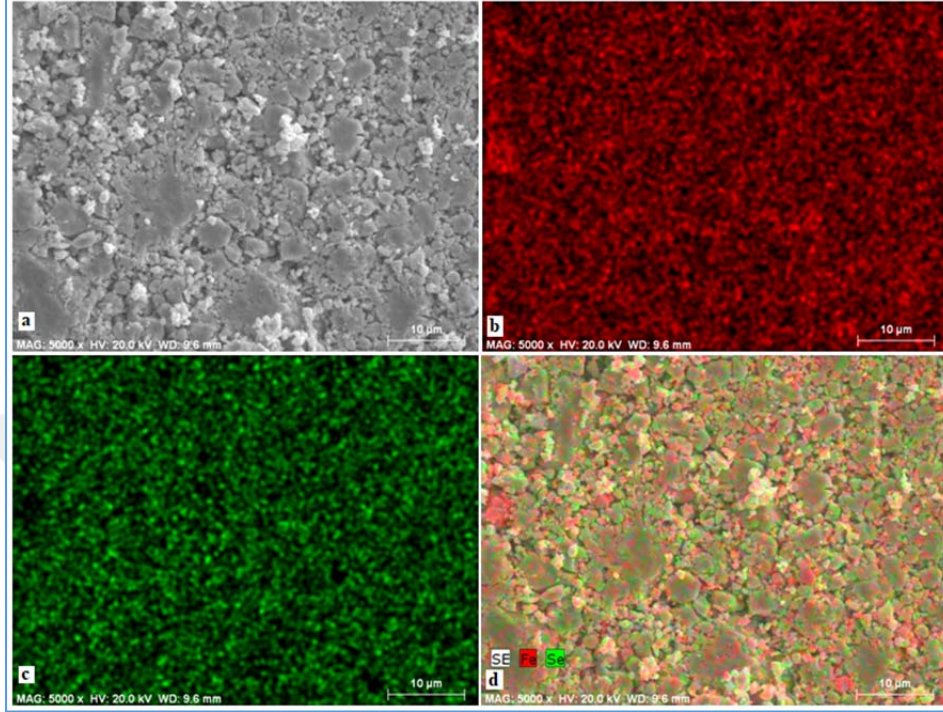


Şekil 4.6. Örnek-A için seçilen 3.bölgenin EDS analizi



Şekil 4.7. Örnek-A için seçilen 4. bölgenin EDS analizi

Örnek-A'nın EDS analizi incelendiğinde reaksiyona katılan Fe ve Se dışında safsızlık olarak tanımlayabileceğimiz başka elementlere ait EDS sinyali alınmamıştır. Tüm yüzeyin seçildiği 1. bölgenin EDS analizi incelendiğinde demirin yüzde atomik oranı %48.01, selenyumun yüzde atomik oranı ise % 51.99 olarak bulunmuştur. Beyaz tondaki 3. bölgenin nokta analizine bakıldığında ise demirin yüzde atomik oranı % 52.56, selenyumun yüzde atomik oranı ise % 47.44 olarak bulunmuştur. Gri tondaki 2. ve 4. bölgede ise selenyum miktarı demir miktarından biraz daha fazla bulunmuştur.



Şekil 4.8. Örnek-A için EDS nokta haritalaması a) Noktalama yapılan bölgenin 5.0 KX SEM görüntüsü, b) Fe nokta haritalaması, c) Se nokta haritalaması, d) Fe ve Se için toplu nokta haritalaması

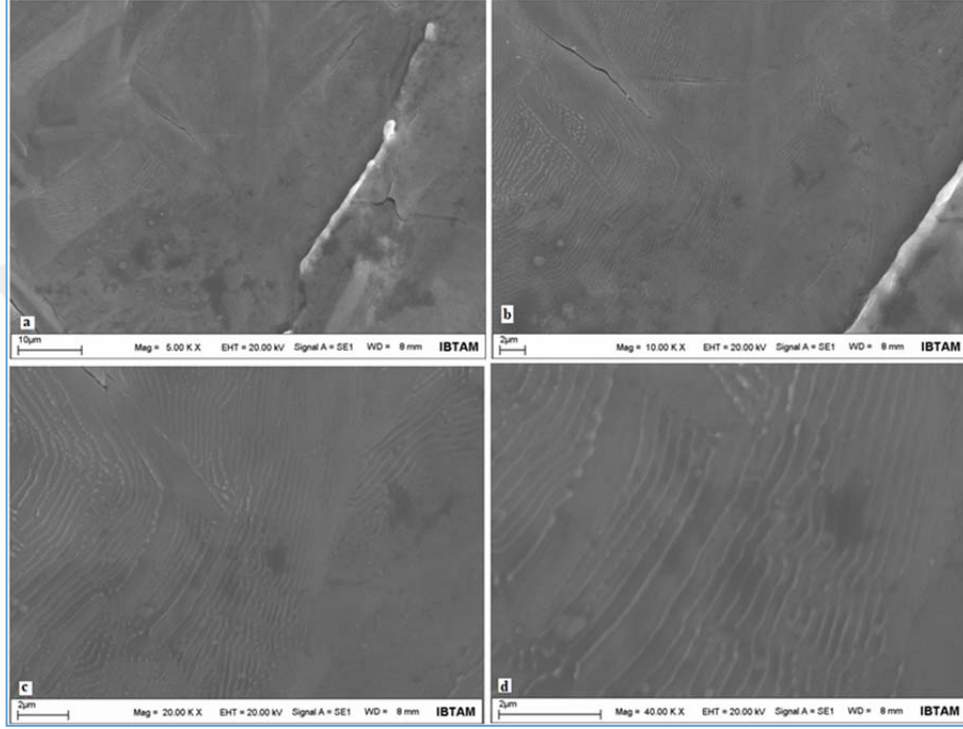
Şekil 4.8’de ise Örnek-A’nın EDS nokta haritalaması verilmiştir. Nokta haritalaması incelendiğinde demir ve selenyumun örnek içerisinde homojen dağıldığını söyleyebiliriz.

Örnek-B’ye ait 5.00, 10.00, 20.00 ve 40.00 KX büyütme oranlarında ve ikincil moda (SE) elde edilen SEM görüntüleri Şekil 4.9a-d’de verilmiştir. SEM görüntüleri incelendiğinde örneğin Örnek-A’daki gibi tanecikli yapı ve tanecik sınırlarının oluşmadığı ve tek kristal formda büyüdüğü gözlenir. 40.00 KX büyütmedeki SEM görüntüsüne bakılırsa örnek birbiri üstüne çok sıkı bir şekilde istiflenmiş düzlemlerden oluştuğu sonucu çıkarılabilir.

Örnek-B’nin elementel analizleri SEM’e bağlı EDS ile incelenmiştir. Örnek-B için EDS analizinde kullanılan bölgeler Şekil 4.10’daki SEM fotoğrafında



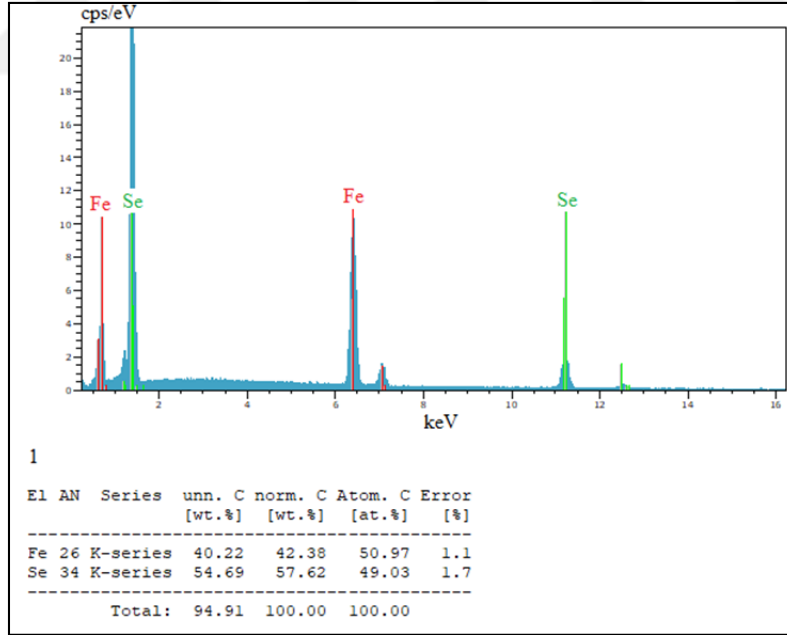
verilmiştir. Seçilen her bölgenin EDS analizi sonuçları Şekil 4.11-13’de 1, 2 ve 3. bölge için sırasıyla verilmiştir.



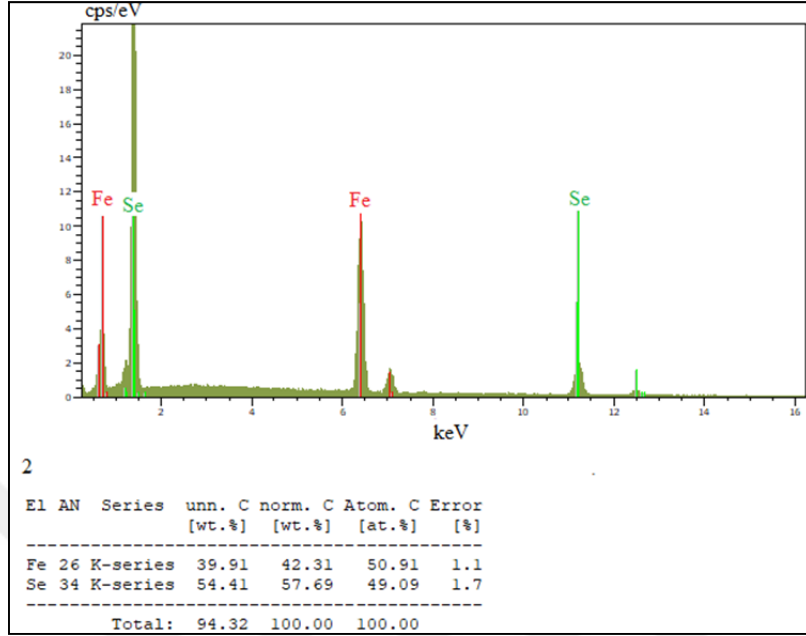
Şekil 4.9. Örnek-B’ye ait a) 5.00 KX, b) 10.00 KX, c) 20.00 KX ve d) 40.00 KX büyütmelerde alınan SEM görüntüleri



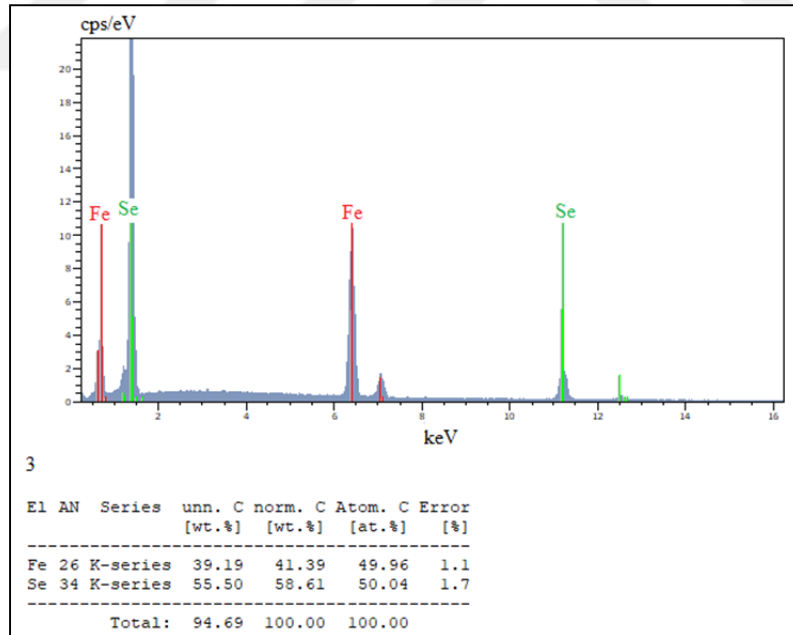
Şekil 4.10. Örnek-B için EDS analizinde kullanılan bölgeler



Şekil 4.11. Örnek-B için seçilen 1.bölgenin EDS analizi



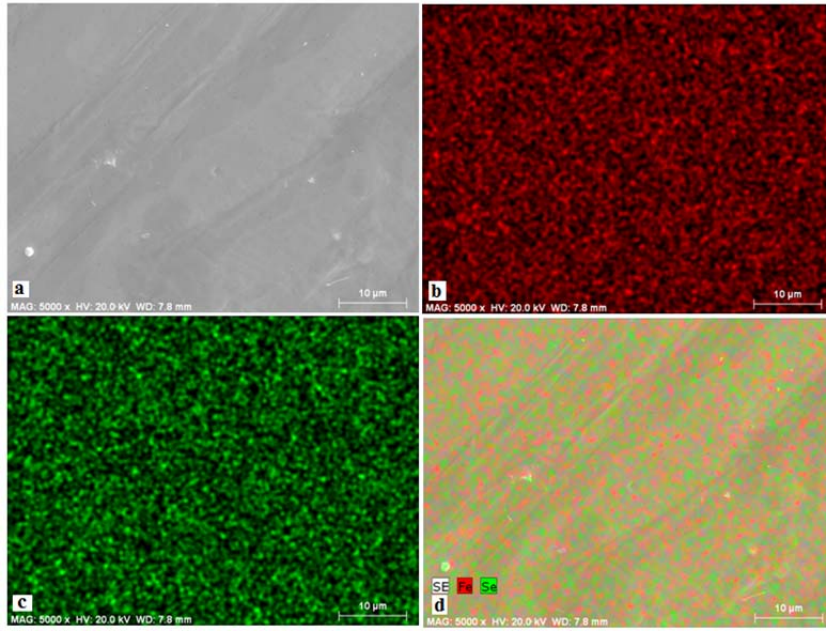
Şekil 4.12. Örnek-B için seçilen 2. bölgenin EDS analizi



Şekil 4.13. Örnek-B için seçilen 3. bölgenin EDS analizi

Örneğin EDS analizinden reaksiyona katılan Fe ve Se dışında başka elementlere ait spektrum piki bulunmamasından, örneğin hazırlanması ve reaksiyon sürecinde ciddi bir kontaminasyona maruz kalmadığı söylenebilir. Seçilen üç bölgenin EDS spektrumlarının ortalamasından örnek kompozisyonu  $Fe_1Se_{0.98}$  olarak bulunmuştur. Bu kompozisyon  $\beta$ -FeSe süperiletken fazı bölgesine karşılık gelir.

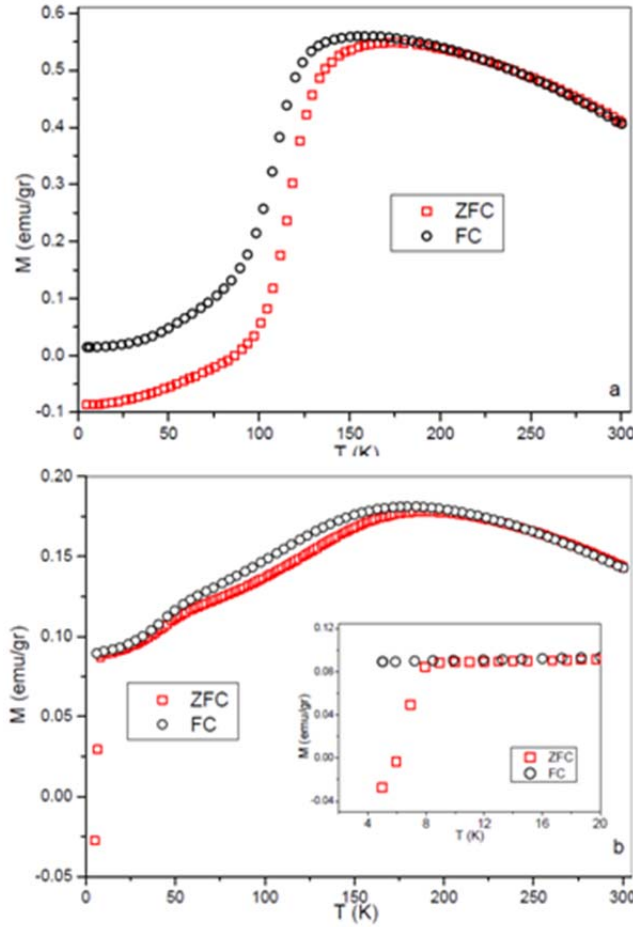
Elementlerin örnek içerisindeki dağılımının incelenmesi için EDS nokta haritalaması yapılmıştır. Şekil 4.14'de noktalama yapılan bölgenin 5.0KX SEM görüntüsünün yanında her bir elementin nokta haritalaması ve örneği oluşturan tüm elementlerin nokta haritalaması bir arada verilmiştir. Nokta haritalamasından demir ve selenyumun örnek içerisinde homojen bir şekilde dağıldığı söylenebilir.



Şekil 4.14. Örnek-B için EDS nokta haritalaması a) Noktalama yapılan bölgenin 5.0 KX SEM görüntüsü, b) Fe nokta haritalaması, c) Se nokta haritalaması, d) Fe ve Se için toplu nokta haritalaması

### 4.1.3. FeSe-11 Örneklerinin Manyetik Ölçümleri

Örnek-A ve Örnek-B'ye ait sıcaklığa bağlı manyetizasyon ( $M-T$ ) ölçümleri, 10 Oe'de sıfır alan soğutmalı (ZFC) ve alan soğutmalı (FC) olarak 5-300K sıcaklıkları arasında yapılmış olup ölçüm sonuçları Şekil 4.15a-b'de gösterilmiştir.



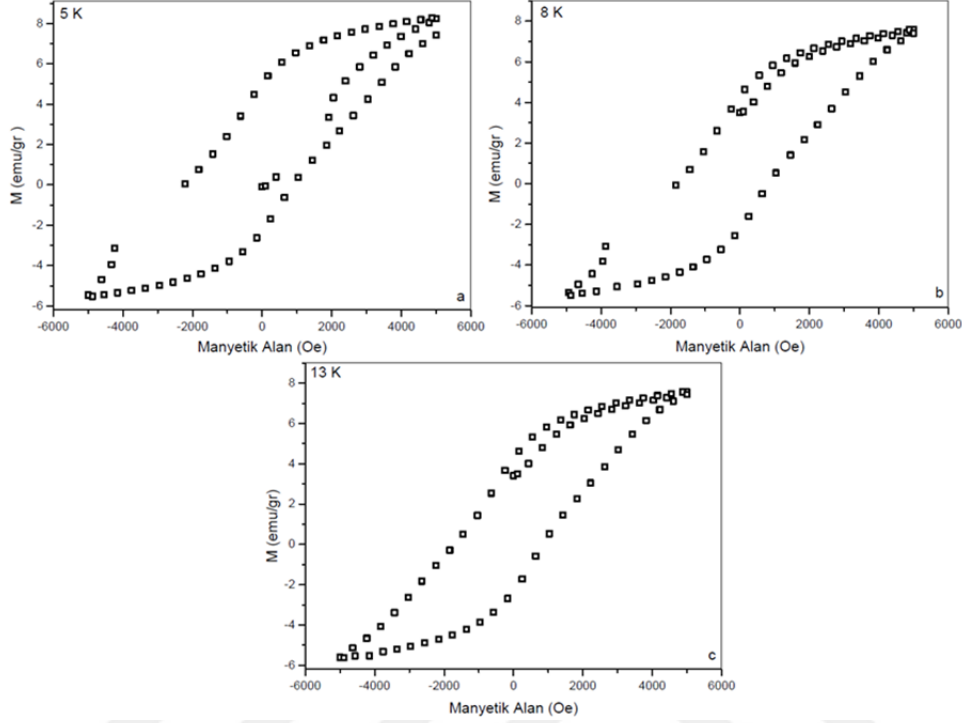
Şekil 4.15. a) Örnek-A ve b) Örnek-B için  $M-T$  eğrisi

Örnek-A'nın  $M-T$  eğrisi incelendiğinde manyetizasyon değerinin oda sıcaklığından FC eğrisinde 150 K ve ZFC eğrisinde ise 175 K civarına kadar artış gösterip keskin olmayan bir maksimum değeri gördükten sonra düşük sıcaklığa

doğru tekrar düşüşe geçmiştir. XRD sonuçlarından da görüldüğü gibi malzeme içerisinde yüksek oranda  $\delta$ -FeSe içeriğinden dolayı ZFC ve FC eğrilerinde görülen keskin olmayan bu geçişin, antiferromanyetik benzeri bir faz dönüşümünden kaynaklı olduğu söylenebilir.

Örnek-B'nin  $M-T$  eğrisine bakıldığında ZFC ve FC eğrileri oda sıcaklığından 175 K civarına kadar nerdeyse çakışık olup artış göstermişlerdir. Daha sonra manyetizasyonun maksimum değeri aşıldıktan sonra ZFC ve FC eğrilerinde 50 K'ye kadar bir ayrışma oluşmuştur. 50 K'den 9 K'ye kadar ZFC ve FC eğrilerinin yaklaşmasından sonra ZFC eğrisinde 8.5 K civarında bir süperiletkenlik geçiş gözlenmiştir. Ayrıca süperiletkenlik geçiş sıcaklığının altındaki sıcaklık değerlerinde ise örnekte yüksek diyamanyetik sinyal alınmıştır. Bu durum örnekteki bulk-tipi süperiletkenliğin varlığını gösterir. FC eğrisinde ise mutlak sıcaklığına doğru 0.014 emu/gr gibi bir doyum değeri gözlenmiştir.

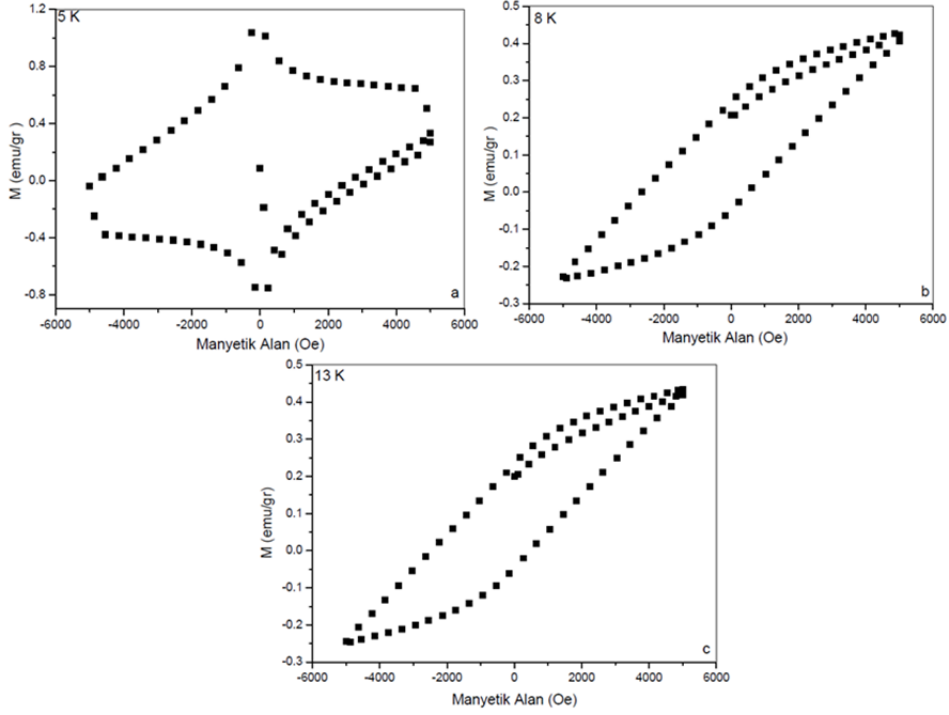
Örnek-A'ya ait manyetizasyon-manyetik alan ( $M-H$ ) ölçüm sonuçları 5, 8 ve 13 K için Şekil 4.16a-c'de gösterilmiştir.  $M-H$  eğrilerine bakılırsa örnekte ferromanyetik tipte bir histerezis davranışı 5, 8 ve 13 K sıcaklıklarında gözlenmiştir.



Şekil 4.16. Örnek-A için a) 5 K, b) 8 K ve c) 13 K sıcaklıklarındaki  $M-H$  eğrisi

Örnek-B'ye ait manyetizasyon-manyetik alan ( $M-H$ ) ölçüm sonuçları 5, 8 ve 13 K için Şekil 4.17a-c'de gösterilmiştir. 5 K sıcaklığında ölçülen  $M-H$  eğrisine bakıldığında örneğin II.Tip süperiletkenlere özgü bir histerezis davranışı göstermiştir. Geniş ve simetrik tipteki  $M-H$  eğrisi, örnekteki bulk tipinde bir süperiletkenliğin varlığını gösterir. Örneğin manyetizasyonlarının doğrusallıktan saptığı ve vortekslerin oluşmaya başladığı düşük kritik manyetik alan değeri ( $H_{c1}$ ), 450 Oe olarak gözlenmiştir. Akı çivileme yeteneğinin bir ölçüsü olan sıfır alan altındaki manyetizasyon değeri yaklaşık 0.9 emu/gr olarak bulunmuştur. Örneğin 8K ve 13 K sıcaklıklarında ölçülen  $M-H$  eğrileri incelendiğinde süperiletkenlik fazın kaybolduğu ve ferromanyetik tipte bir davranışın ortaya çıktığı gözlenebilir. 13 K'de 5000 Oe alan altındaki manyetizasyon değeri yaklaşık 0.45 emu/gr olarak bulunmuştur. Bu değer Örnek-A ile kıyaslandığında (7.5 emu/gr) çok küçük

kalmaktadır. Buradan da Örnek-A'daki ferromanyetik fazın Örnek-B'ye göre çok yüksek oranda olduğu söylenebilir.



Şekil 4.17. Örnek-B için a) 5 K, b) 8 K ve c) 13 K sıcaklıklarındaki  $M-H$  eğrisi

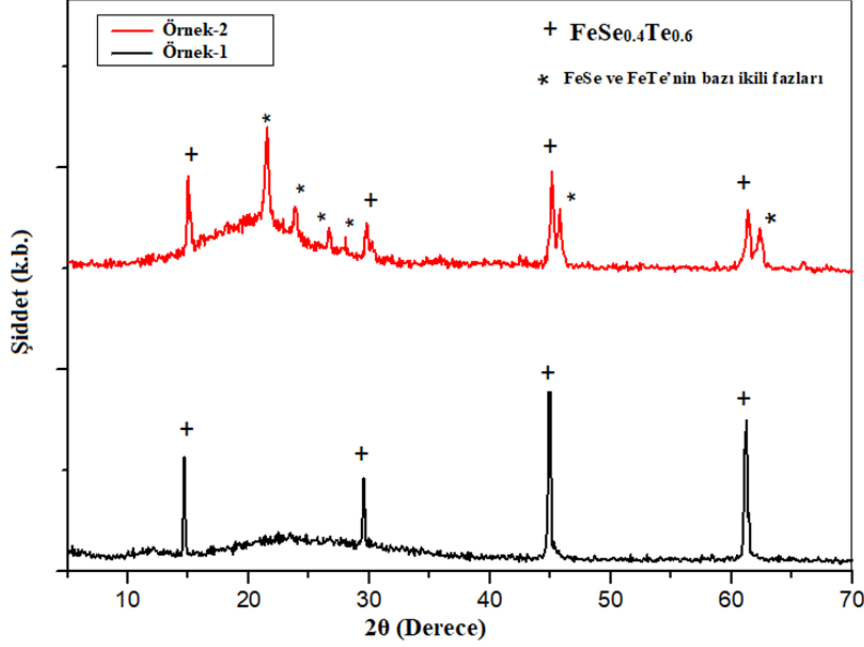
#### 4.2. $\text{FeSe}_{0.4}\text{Te}_{0.6}$ Örneklerinin Analiz Sonuçları

$\text{FeSe}_{0.4}\text{Te}_{0.6}$  örnekleri,  $0.8^\circ\text{C}/\text{sa}$  ve  $4.5^\circ\text{C}/\text{sa}$  olmak üzere iki farklı soğutma hızıyla hazırlanmış olup sırasıyla Örnek-1 ve Örnek-2 olarak adlandırılacaktır.

##### 4.2.1. $\text{FeSe}_{0.4}\text{Te}_{0.6}$ Örneklerinin XRD Analiz Sonuçları

Şekil 4.18'de Örnek-1 ve Örnek-2 örneklerine ait XRD desenleri verilmiştir.





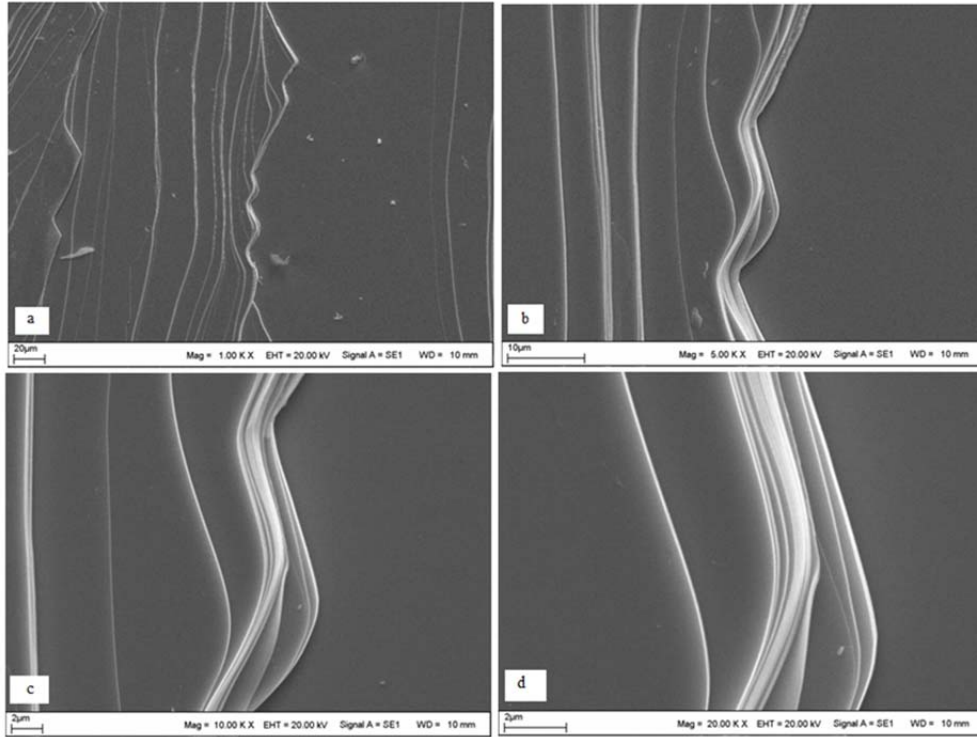
Şekil 4.18. Yavaş soğutma (Örnekle-1) ve hızlı soğutma (Örnekle-2) uygulanarak üretilen örneklerin XRD desenleri

Şekil 4.18'deki XRD desenlerine bakılırsa Örnekle-1 için  $2\theta = 14.65^\circ, 29.52^\circ, 44.93^\circ$  ve  $61.17^\circ$  değerlerinde 4 dar ve şiddetli pik görülmektedir. Bu pikler tetragonal  $P4/nmm$  uzay grubu yapısına sahip olup sırasıyla (001), (002), (003) ve (004) indis değerlerine karşılık gelmektedir. Bu gözlenen  $\{00L\}$  düzlemleri kristalin ab boyunca büyüdüğünün işareti olarak kabul edilebilir. Soğutma hızının artırılmasıyla birlikte (001), (002), (003) ve (004) tekrar gözlenmiş ancak Bragg piklerinde belirgin bir genişleme olmuş ve sistemin kristal kalitesi düşmüştür. Ayrıca  $2\theta \approx 21.28, 23.91, 26.83$  ve  $27.89$  değerlerinde FeSe ve FeTe pikleriyle uyuşan yeni pikler gözlenmiştir. Örgü parametreleri Örnekle-1 için  $a = 3,8138 \text{ \AA}$  and  $c = 6,0490 \text{ \AA}$  ve Örnekle-2 için  $a = 3,8274 \text{ \AA}$ ,  $c = 6,0257 \text{ \AA}$  olarak hesaplanmıştır. Sonuç olarak soğutma hızının artırılması malzemenin kristal yapısını belirgin olarak değiştirmiştir. Hesaplanan örgü parametrelerine bakılırsa hızlı soğutmayla

birlikte sistemin  $a$  parametresi artmış  $c$  parametresi azalmış ve FeSe ve FeTe gibi ikili fazlar ortaya çıkmıştır.

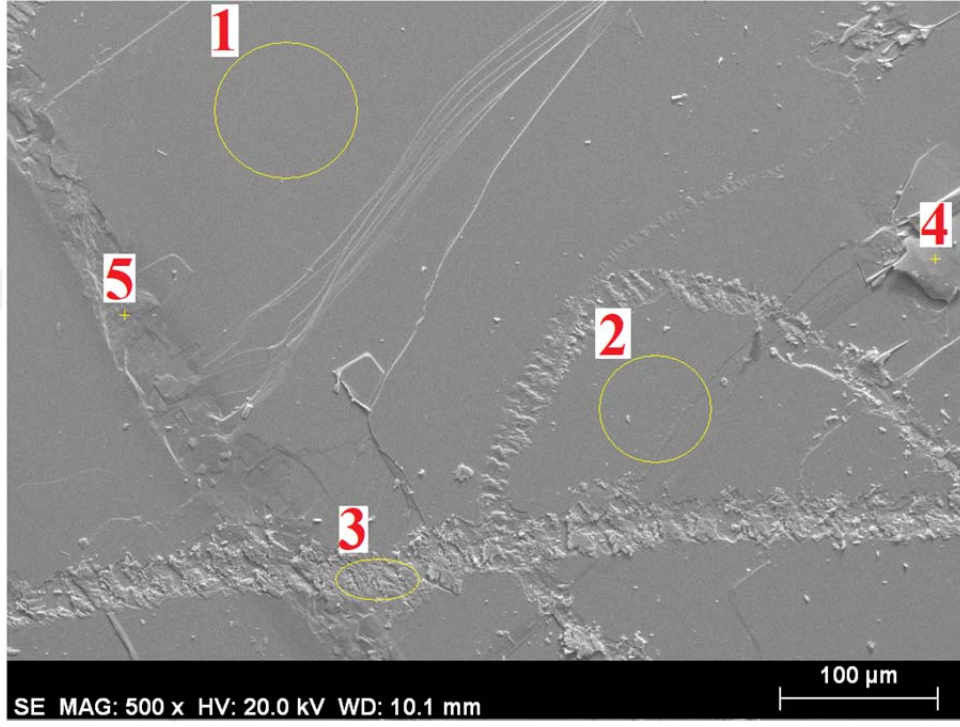
#### 4.2.2. FeSe<sub>0.4</sub>Te<sub>0.6</sub> Örneklerinin SEM ve EDS Analiz Sonuçları

FeSe<sub>0.4</sub>Te<sub>0.6</sub> örneklerinin yüzey morfolojisi SEM-EDS tekniği kullanılarak incelendi. 1.00, 5.00, 10.00 ve 20.00 KX büyütme oranlarında alınan Örnek-1 örneğine ait ikincil moda (SE) elde edilen SEM görüntüleri Şekil 4.19a-d'de verilmiştir. SEM görüntüleri incelendiğinde Örnek-1 birbiri ardına dizilmiş düzgün tabak ya da teras tipi düzlemlerden oluşmuştur. Bu tabak tipi düzlemler  $ab$  düzlemi boyunca kristalin büyüdüğünü gösterir ve XRD desenlerinde gözlenen  $\{00L\}$  düzlemlerine karşılık gelir.

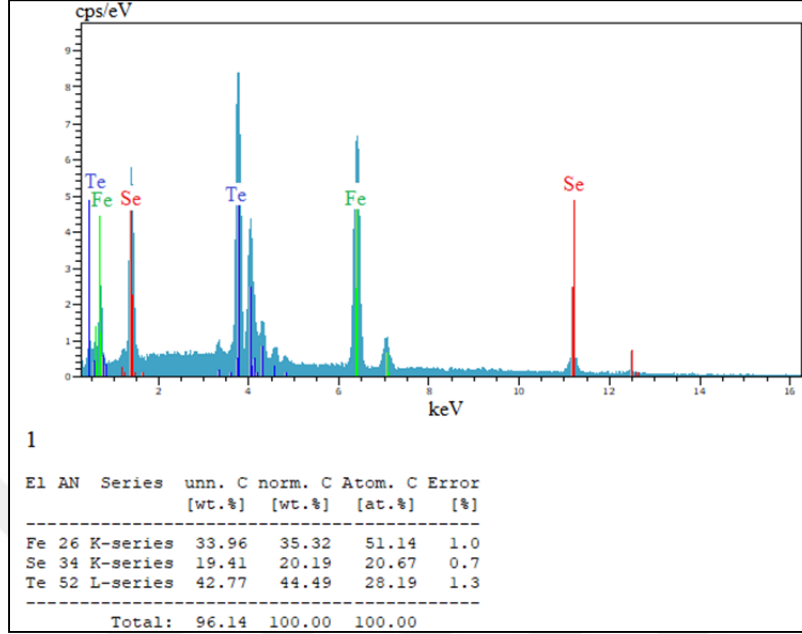


Şekil 4.19. Örnek-1'e ait a) 1.00 KX, b) 5.00 KX, c) 10.00 KX ve d) 20.00 KX büyütmelerde alınan SEM görüntüleri.

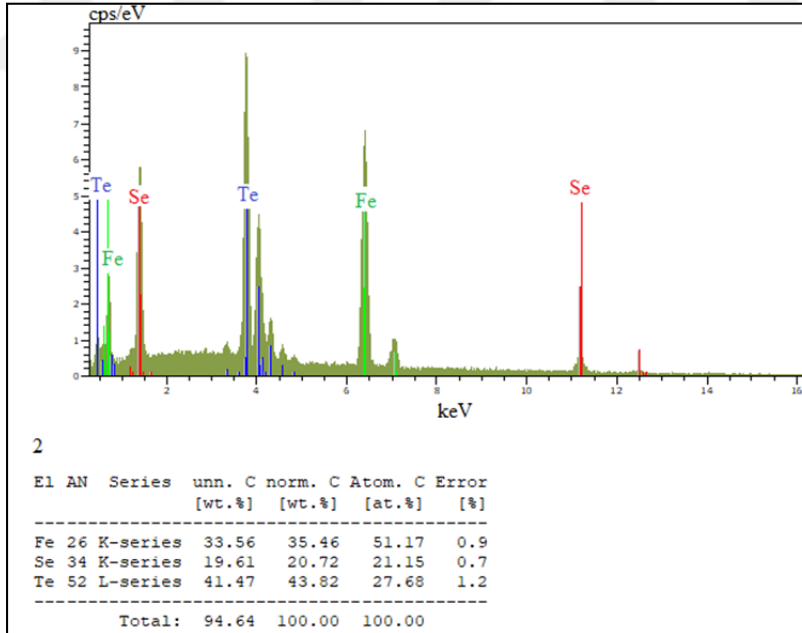
Örnek-1'in elementel analizleri SEM'e bağlı EDS ile incelenmiştir. Örnek-1 için EDS analizinde kullanılan bölgeler Şekil 4.20'deki SEM fotoğrafında verilmiştir.



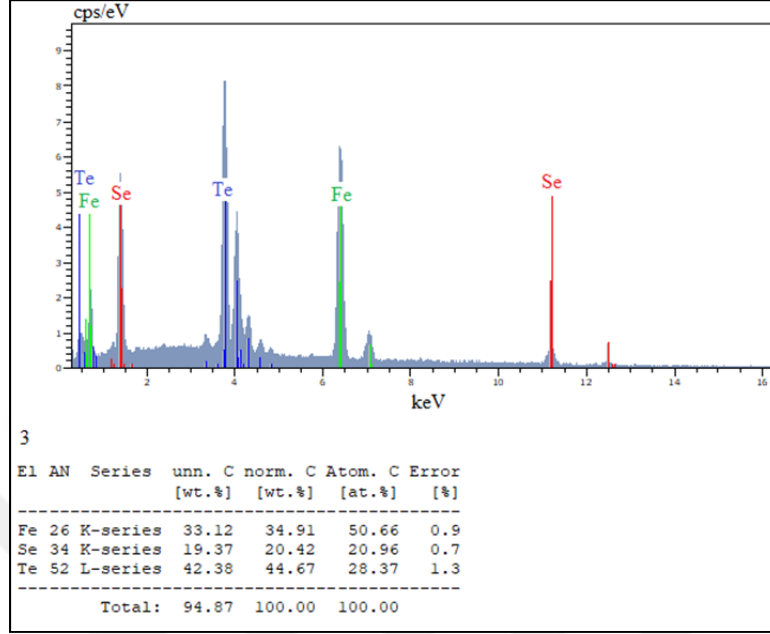
Şekil 4.20. Örnek-1 için EDS analizinde kullanılan bölgeler



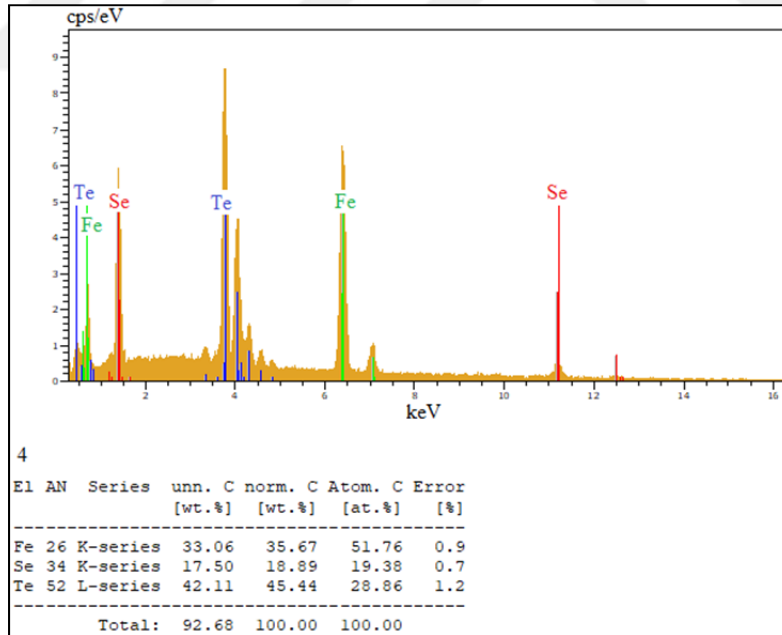
Şekil 4.21. Örnek-1 için seçilen 1.bölgenin EDS analizi



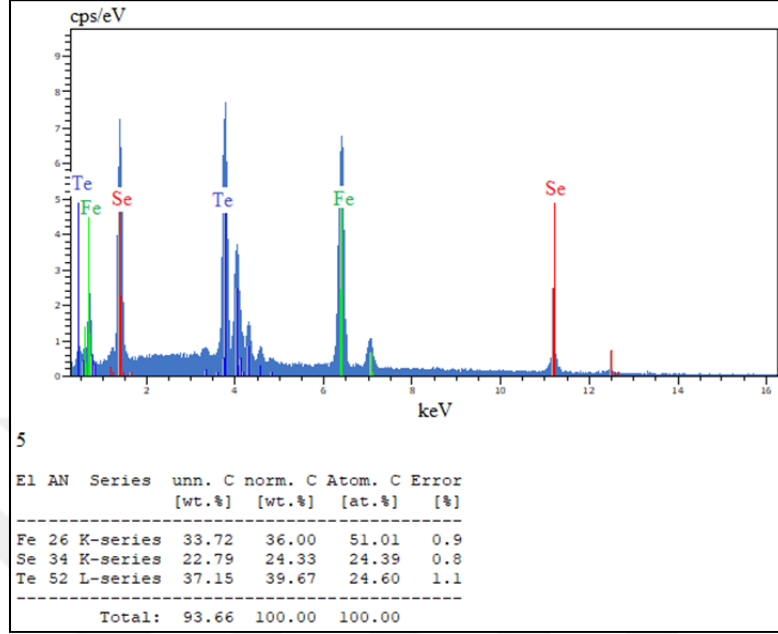
Şekil 4.22. Örnek-1 için seçilen 2.bölgenin EDS analizi



Şekil 4.23. Örnek-1 için seçilen 3.bölgenin EDS analizi

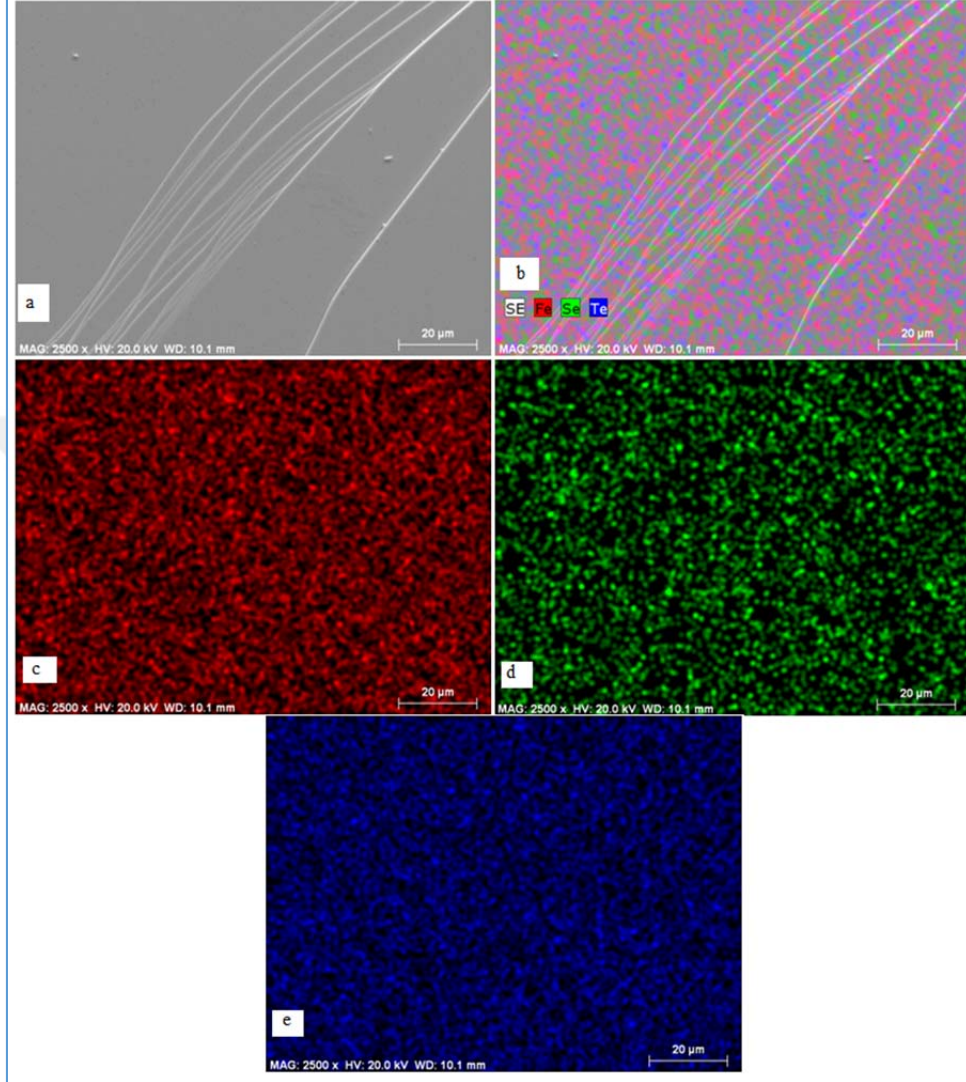


Şekil 4.24 . Örnek-1 için seçilen 4.bölgenin EDS analizi

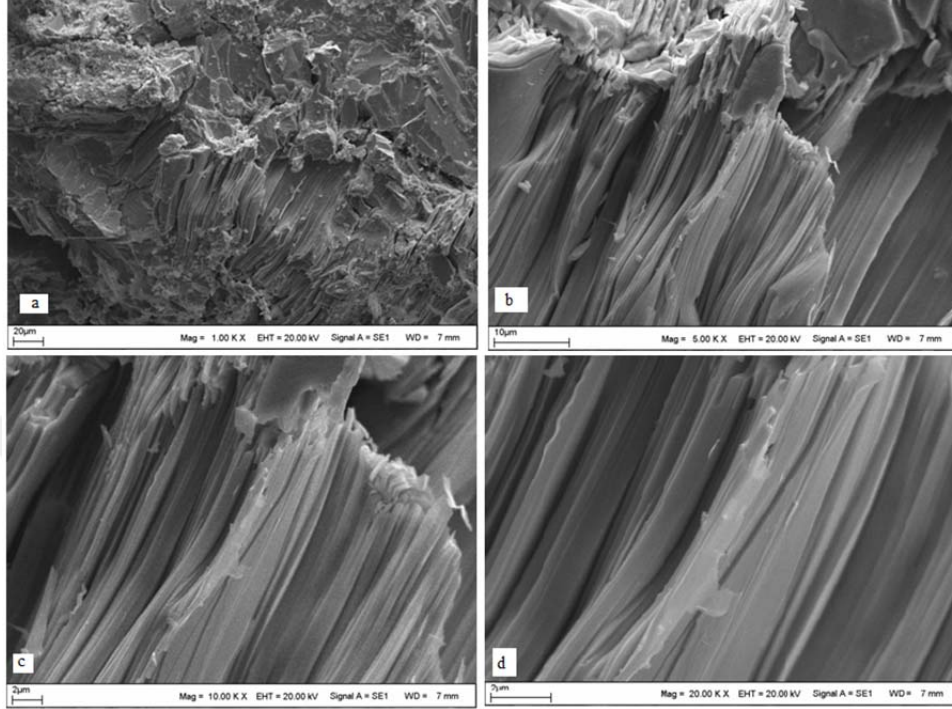


Şekil 4.25. Örnek-1 için seçilen 5.bölgenin EDS analizi

EDS sonuçlarına bakılırsa kristali oluşturan Fe, Se ve Te elementleri düzenli olarak dağılmış ve bu elementlerin dışında başka safsızlık elementleri gözlenmemiştir. Seçilen beş farklı noktanın EDS spektrumlarının ortalaması alınmıştır. Buna göre Örnek-1,  $Fe_{1.02}Se_{0.43}Te_{0.55}$  kompozisyonundan oluşmuştur. Ayrıca Şekil 4.26'da Örnek-1'in EDS nokta haritalaması verilmektedir. Haritadan da görüleceği gibi Fe, Se ve Te elementleri kristal yüzeyi boyunca homojen bir dağılım göstermiştir ve Fe, Se, FeSe, FeTe vb kümelenmeler oluşmamıştır.



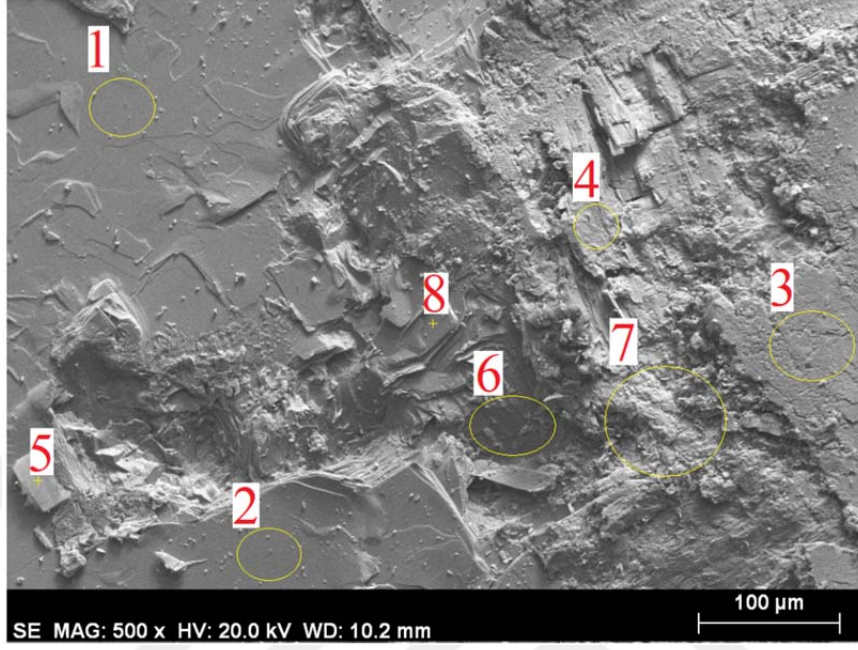
Şekil 4.26. Örnek-1 için EDS nokta haritalaması a) Noktalama yapılan bölgenin 2.5KX SEM görüntüsü, b) Fe, Se ve Te için toplu nokta haritalaması c) Fe nokta haritalaması, d) Se nokta haritalaması, e) Te nokta haritalaması



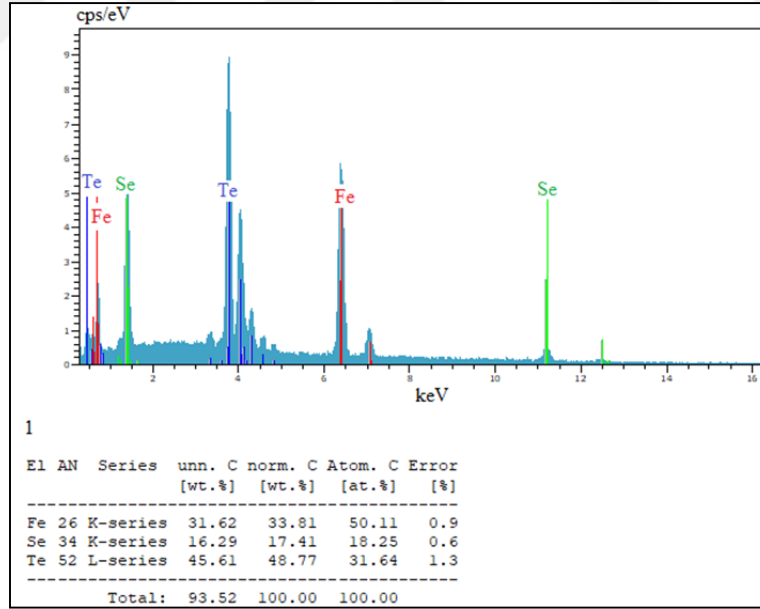
Şekil 4.27. Örnek-2'ye ait a) 1.00 KX, b) 5.00 KX, c) 10.00 KX ve d) 20.00 KX büyütmelerde alınan SEM görüntüleri

Örnek-2'ye ait ikincil moda (SE) ve 1.00, 5.00 10.00 ve 20.00 KX büyütme oranlarında elde edilen SEM görüntüleri Şekil 4.27'de verilmiştir. SEM görüntüleri incelendiğinde Örnek-2 de birbiri ardına dizilmiş tabak benzeri düzlemlerden oluşmuştur. Örnek-1'den farklı olarak bu düzlemler yer yer birbiri üstüne eğilmişlerdir. Buna göre soğutma hızının artması sistemin morfolojisini belirgin olarak değiştirmiştir. Hızlı soğutma, düzlemlerin birbiri üstüne bükülmesine yol açıp düzlemlerin birbiri üzerine uyguladığı lokal gerilmeleri artırmış olabilir. Örnek-2 için EDS analizinde kullanılan bölgeler Şekil 4.28'deki SEM fotoğrafında verilmiştir.

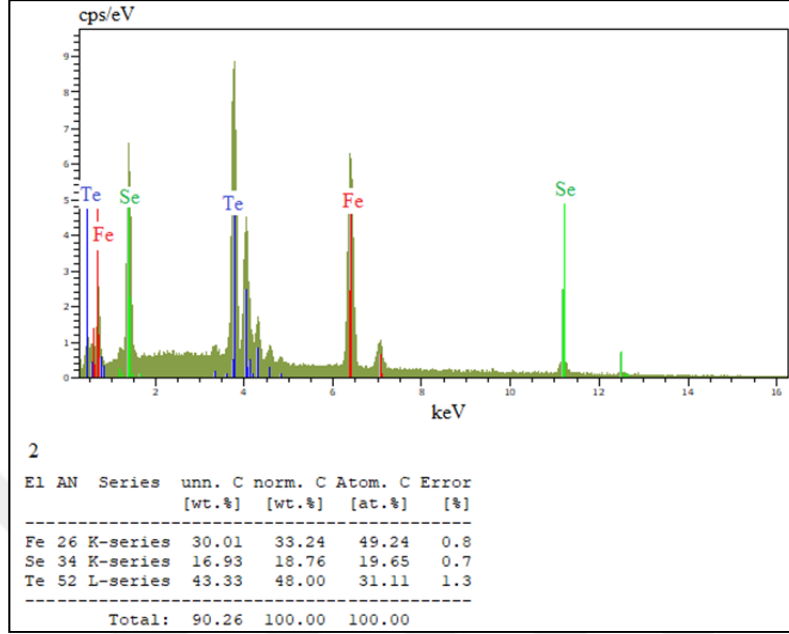




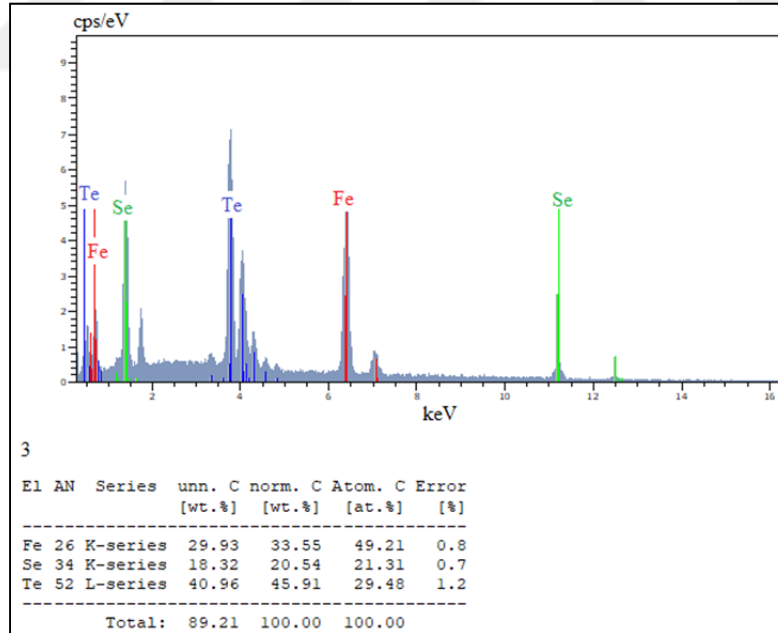
Şekil 4.28. Örnek-2 için EDS analizinde kullanılan bölgeler



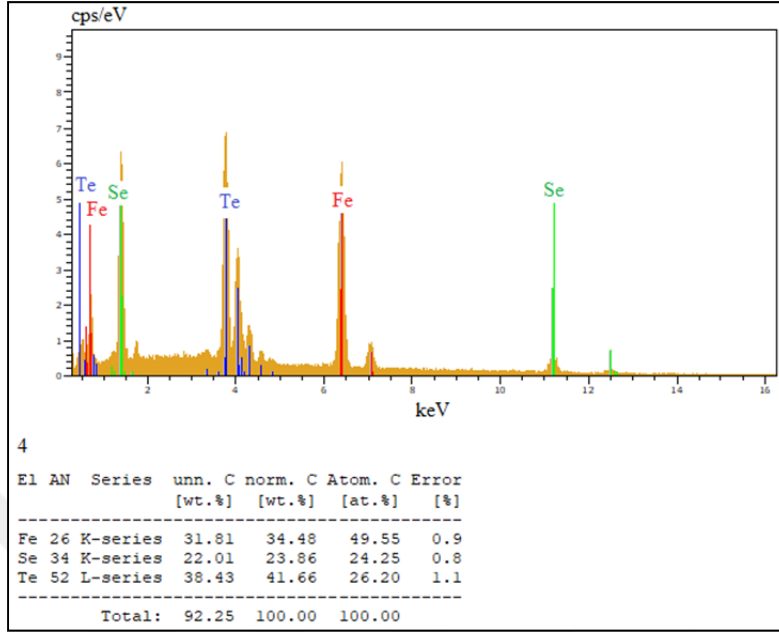
Şekil 4.29. Örnek-2 için seçilen 1.bölgenin EDS analizi



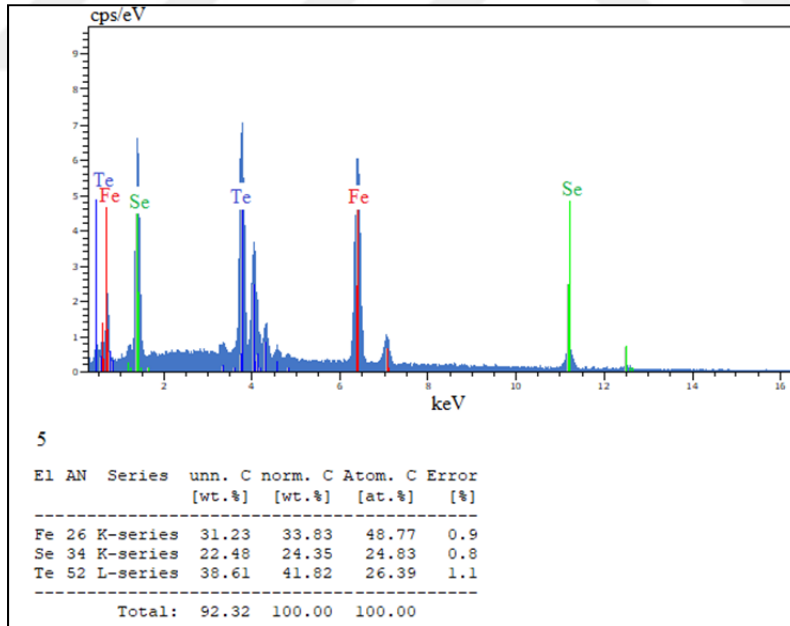
Şekil 4.30. Örnek-2 için seçilen 2. bölgenin EDS analizi



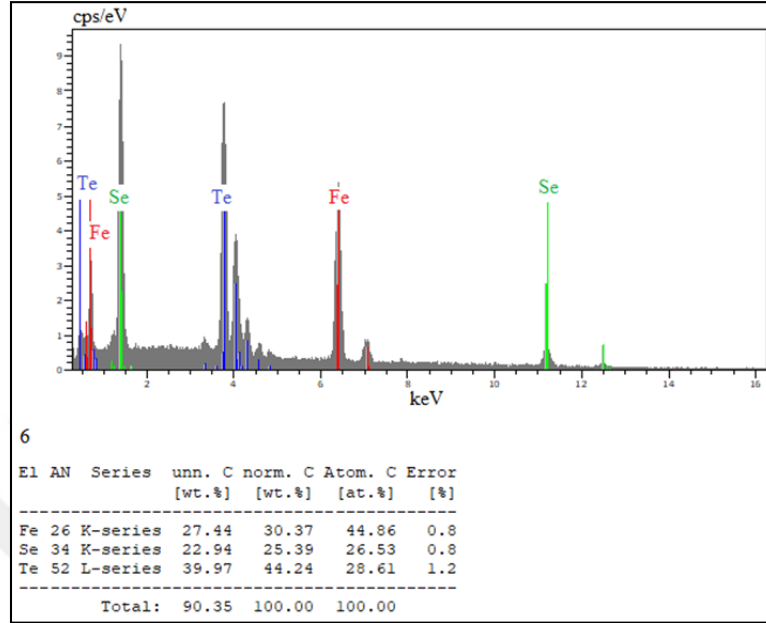
Şekil 4.31. Örnek-2 için seçilen 3. bölgenin EDS analizi



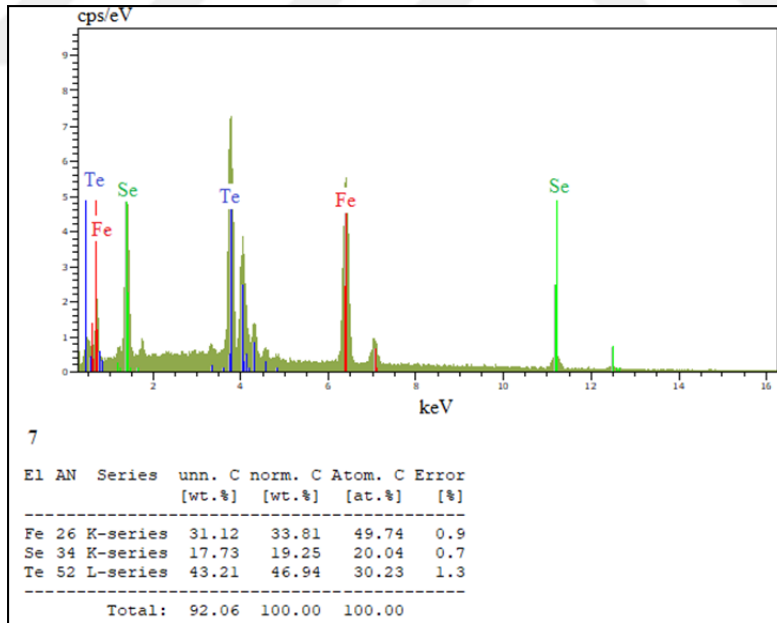
Şekil 4.32. Örnek-2 için seçilen 4. bölgenin EDS analizi



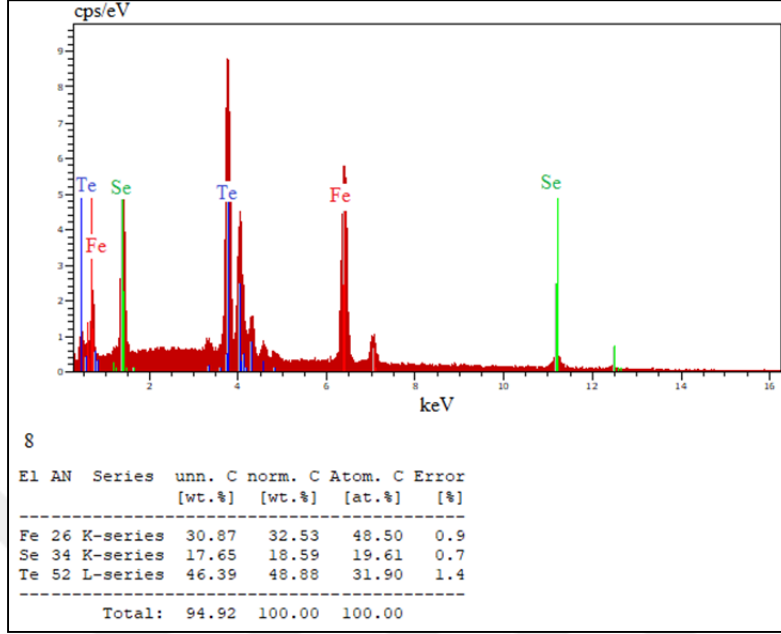
Şekil 4.33. Örnek-2 için seçilen 5. bölgenin EDS analizi



Şekil 4.34. Örnek-2 için seçilen 6. bölgenin EDS analizi

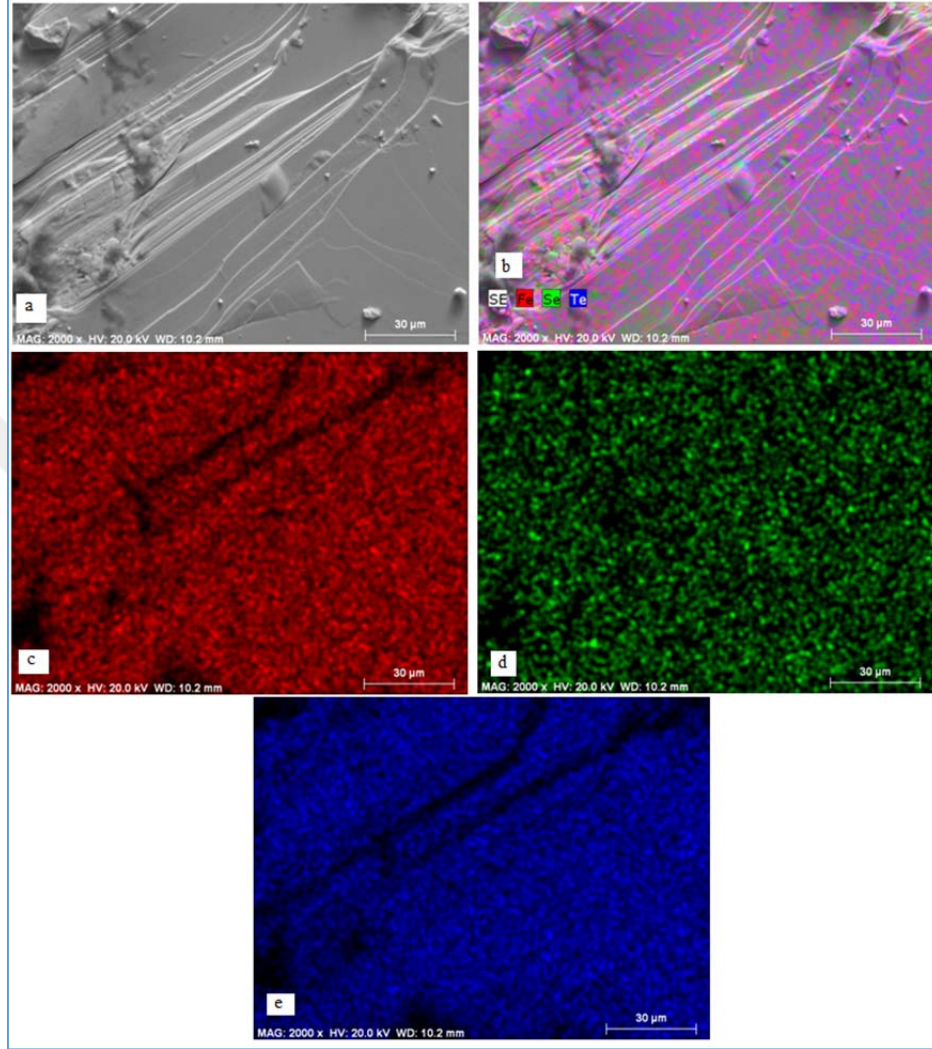


Şekil 4.35. Örnek-2 için seçilen 7. bölgenin EDS analizi



Şekil 4.36. Örnek-2 için seçilen 8. bölgenin EDS analizi

Örnek-2'nin EDS analizi için seçilen 8 noktada Fe, Se ve Te dışında safsızlık olarak kabul ettiğimiz başka bir elemente ait spektrum piki bulunmamıştır. Bu 8 noktanın yüzde atomik konsantrasyonlarının ortalaması alınmış ve Örnek-2  $Fe_{0.97}Se_{0.44}Te_{0.59}$  kompozisyonundan oluşmuştur. Örnek-1'de seçilen noktalarda Fe elementinin yüzde atomik konsantrasyonu %50'nin üzerindeyken Örnek-2'de ise 1. noktanın dışında %50'nin altına düşmüştür. Se ve Te elementlerinin yüzde atomik konsantrasyonunda da artış gözlenmiştir. Sonuç olarak Fe'nin molar oranı 1.02'den 0.97'ye düşmüş ve Se 0.43'den 0.44'e, Te ise 0.55'den 0.59'a yükselmiştir. Öte yandan Şekil 4.37'de Örnek-2'in EDS nokta haritalaması verilmektedir. Harita incelendiğinde Örnek-1'deki gibi Fe, Se ve Te elementleri kristal yüzeyi boyunca homojen bir dağılım göstermiştir ve Fe, Se, FeSe, FeTe vb kümelenmeler oluşmamıştır.

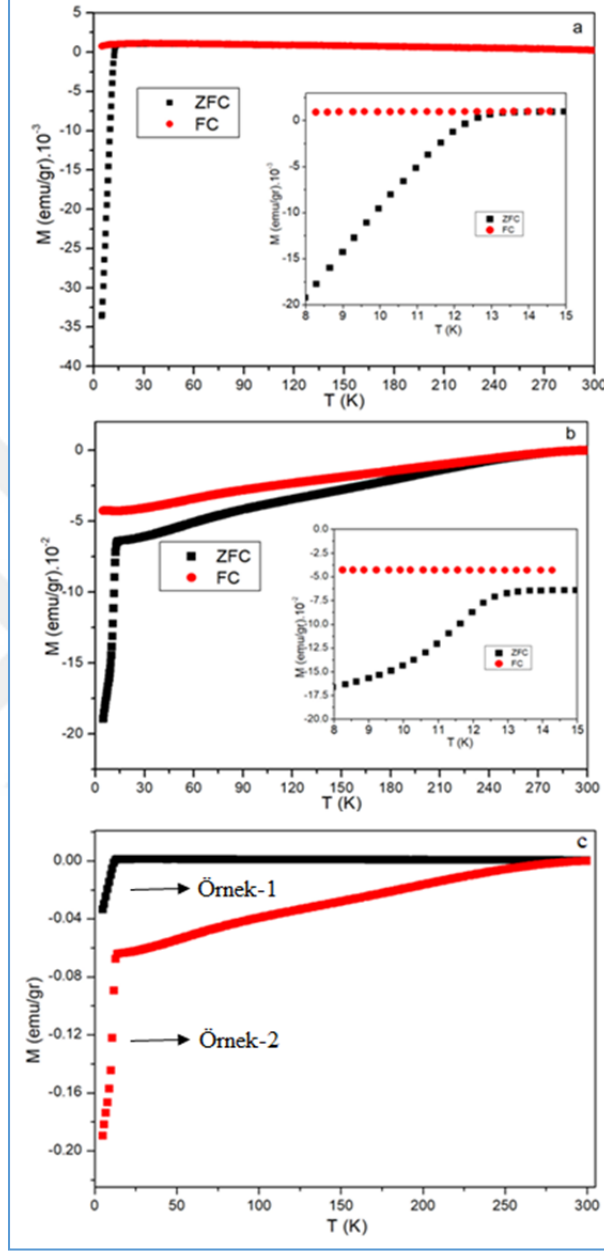


Şekil 4.37. Örnek-2 için EDS nokta haritalaması a) Noktalama yapılan bölgenin 2.5 KX SEM görüntüsü, b) Fe, Se ve Te için toplu nokta haritalaması c) Fe nokta haritalaması, d) Se nokta haritalaması, e) Te nokta haritalaması

#### 4.2.3. $\text{FeSe}_{0.4}\text{Te}_{0.6}$ Örneğinin Manyetik Ölçümleri

Örnek-1 ve Örnek-2'ye ait sıcaklığa bağlı manyetizasyon ( $M-T$ ) ölçümleri, 20 Oe'de sıfır alan soğutmalı (ZFC) ve alan soğutmalı (FC) olarak 5-300K sıcaklıkları arasında yapılmış olup ölçüm sonuçları Şekil 4.38a-b'de gösterilmiştir.

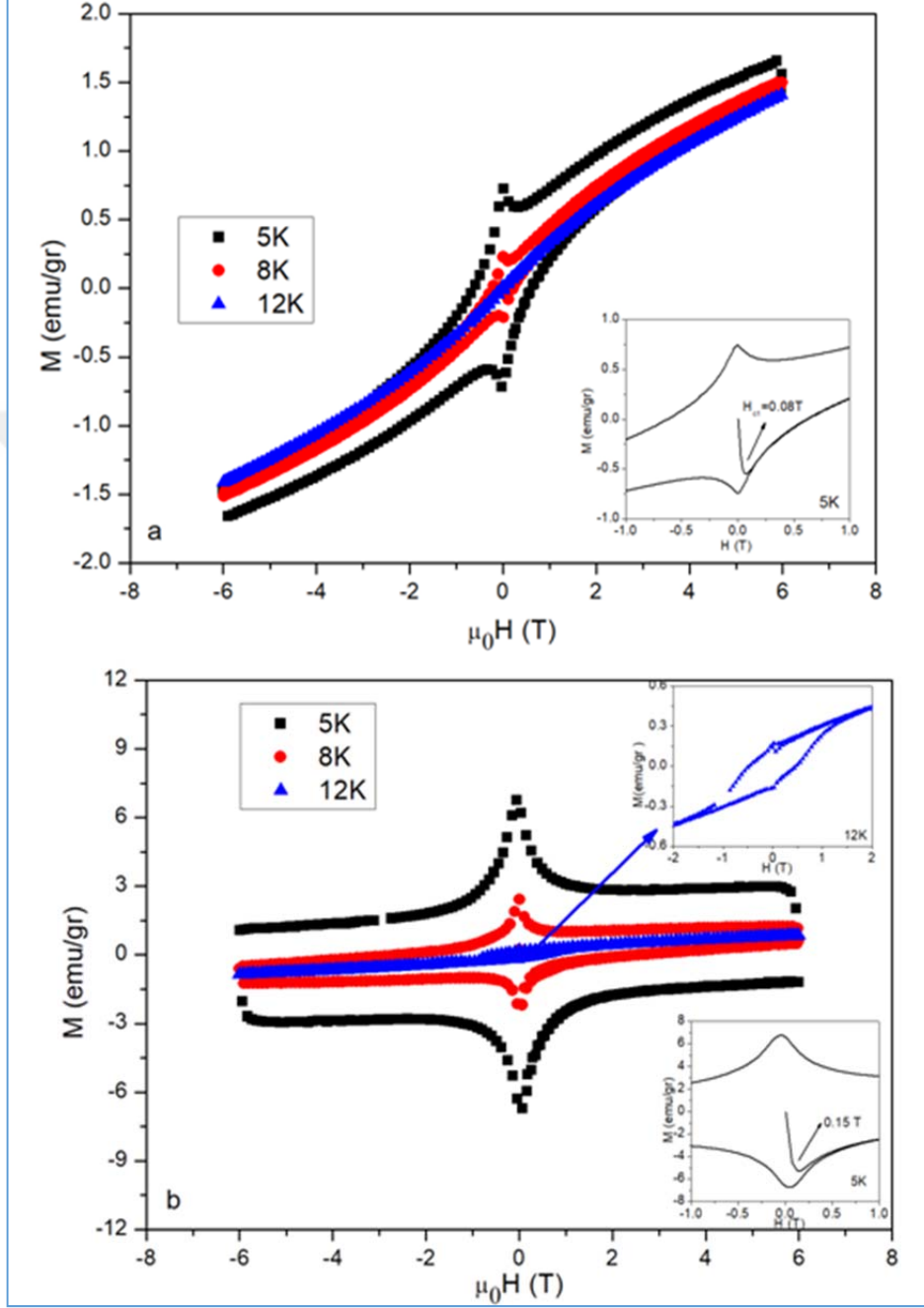
ZFC eğrisinden görüldüğü gibi Örnek-1 ve Örnek-2, 13 K civarında süperiletkenlik duruma keskin bir şekilde geçmiş ve yüksek diyamanyetik sinyal sergilemiştir. Bu durum, örneklerdeki yüksek kristal kalitesini ve bulk süperiletkenliğin varlığını gösterir. Örnek-1'in süperiletkenlik geçiş sıcaklığı üstündeki 14K-300K sıcaklık aralığındaki ZFC eğrisinde manyetizasyon değeri  $3 \times 10^{-4}$  emu/gr gibi sıfıra yakın bir değerde olup sıcaklıkla birlikte önemli bir değişim göstermemektedir. Örnek-1'in FC eğrileri ise süperiletkenlik geçiş sıcaklığının üstündeki tüm sıcaklıklarda ZFC eğrileriyle nerdeyse çakışık bir durum sergilemiştir. ZFC eğrileriyle FC eğrilerinin çakışık olması ve manyetizasyon değerlerinin sıcaklıktan bağımsız olarak düzgün bir meyil seyretmesi Örnek-1'in Pauli paramagnet olduğunu gösterir. Öte yandan Örnek-2'de FC ve ZFC eğrileri arasında 250K civarında bir çatallaşma oluşmuş ve geçiş sıcaklığına doğru bu çatallaşmanın genişliği artmıştır. Şekil 4.38c'de Örnek-1 ve Örnek-2'nin ZFC eğrileri bir arada verilmiştir. Örneklerin geçiş sıcaklığının altındaki diyamanyetik sinyale bakılırsa Örnek-2'nin manyetizasyon değeri Örnek-1'e göre yaklaşık 4 kat daha fazla olduğu görülebilir. Bu durum, Örnek-2'deki süperiletkenlik hacmin Örnek-1'e göre çok yüksek olduğunu gösterir. Böylece  $M-T$  ölçümleri, soğutma hızının artırılması  $\text{FeTe}_{0.6}\text{Se}_{0.4}$  kristallerinin süperiletkenlik özelliğini ciddi şekilde etkilediğini gösterir.



Şekil 4.38. a) Örnek-1 ve b) Örnek-2 için  $M$ - $T$  eğrisi, c) Örnek-1 ve Örnek-2'nin ZFC eğrisi



Örnek-1 ve Örnek-2'ye ait manyetizasyon-manyetik alan ( $M-H$ ) ölçüm sonuçları Şekil 4.39'da gösterilmiştir. Şekilden de görüldüğü gibi iki örnek de 5 ve 8 K'de çok bilinen II. tip süperiletken histerezis davranışı göstermiştir. Sıcaklıkla birlikte  $M-H$  eğrilerinin alanı azalmış ve Örnek-1 için 12K'de ferromanyetik davranış ortaya çıkmıştır. Ancak Örnek-2'de  $\pm 2T$  alan aralıklarında histerezis davranışı görülüp 2 T'den sonra ferromanyetik davranış histerezis davranışını baskılamıştır. Örnekler arasındaki bu farklılık iki örnek arasındaki süperiletken hacimlerinin farklı olmasından ileri gelir. Örneklerin manyetizasyonlarının doğrusallıktan saptığı ve vortekslerin oluşmaya başladığı düşük kritik manyetik alan değerleri ( $H_{c1}$ ), Örnek-1 ve Örnek-2 için sırasıyla 0.08 T ve 0.15 T'dir. Öte yandan sıfır alan altındaki manyetizasyon değeri örneklerin akı tuzaklama yeteneklerinin bir ölçüsü olarak bilinir. 5 K sıcaklığında Örnek-1 için manyetizasyon değeri  $2.68 \text{ emu/cm}^3$  ve Örnek-2 için  $34.86 \text{ emu/cm}^3$ 'dir. Bu bağlamda Örnek-2'nin akı tuzaklama yeteneği Örnek-1'nin akı tuzaklama yeteneğinden çok daha fazladır. Örnek-2'deki süperiletken olmayan ikili fazlar, malzeme içerisinde etkili çivileme merkezleri gibi davranarak yüksek manyetizasyon değerinin sebebi olabilirler.

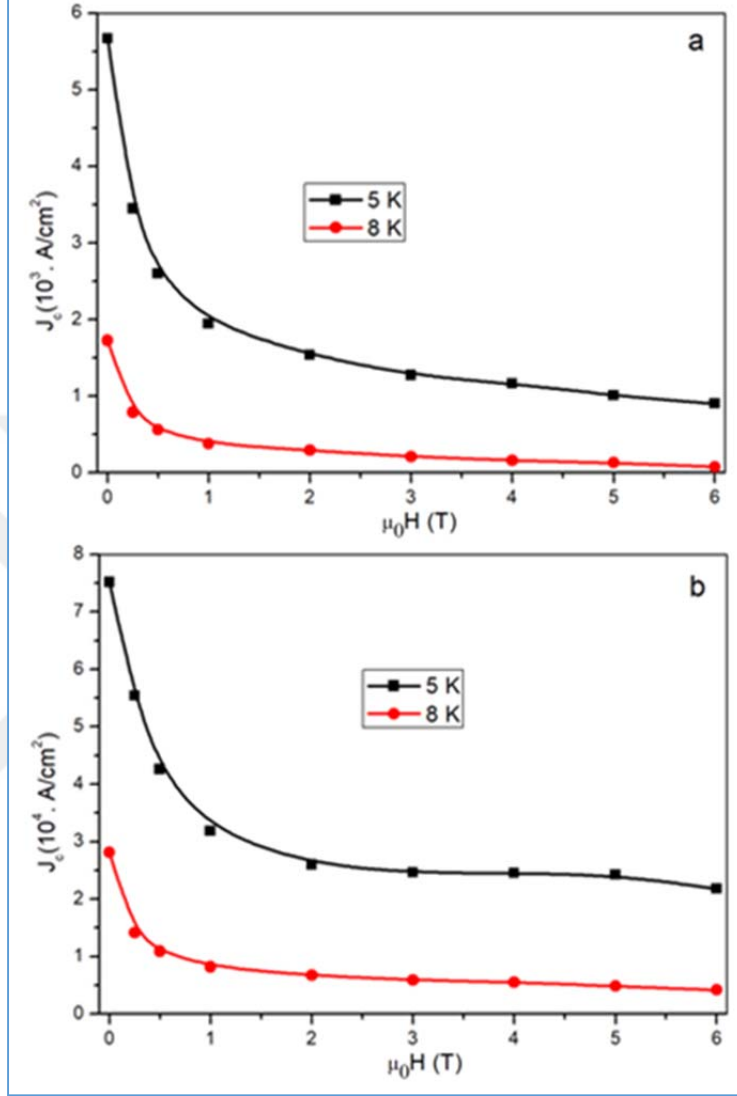


Şekil 4.39. a) Örnek-1 ve b) Örnek-2 için  $M$ - $H$  eğrisi

Örneklerin Kritik Akım Yoğunlukları ( $J_c$ ) Bean Kritik Durum Modeli kullanılarak hesaplanmıştır. Bean Modeli'ne göre  $J_c$  histerezis eğrilerinin genişliğiyle doğru orantılı olup aşağıdaki ifadeyle verilir:

$$J_c = 20 \Delta M / [a (1-a/3b)] \quad (4.1)$$

Burada,  $\Delta M = |M^+| + |M^-|$  olup pozitif ve negatif manyetizasyon değerlerinin mutlak değerlerinin toplamıdır.  $a$  ve  $b$  ise ( $a < b$  olmak üzere) alana dik durumda bulunan örneğin boyutlarıdır. Hesaplanan  $J_c$  değerleri sıfır alanda Örnek-1 için  $5.6 \times 10^3$  A/cm<sup>2</sup> ve Örnek-2 için  $7.5 \times 10^4$  A/cm<sup>2</sup> olup Şekil 4.40a-b'de gösterilmiştir.  $J_c$  değerleri, manyetik alan ve sıcaklığın artmasıyla azalmıştır.

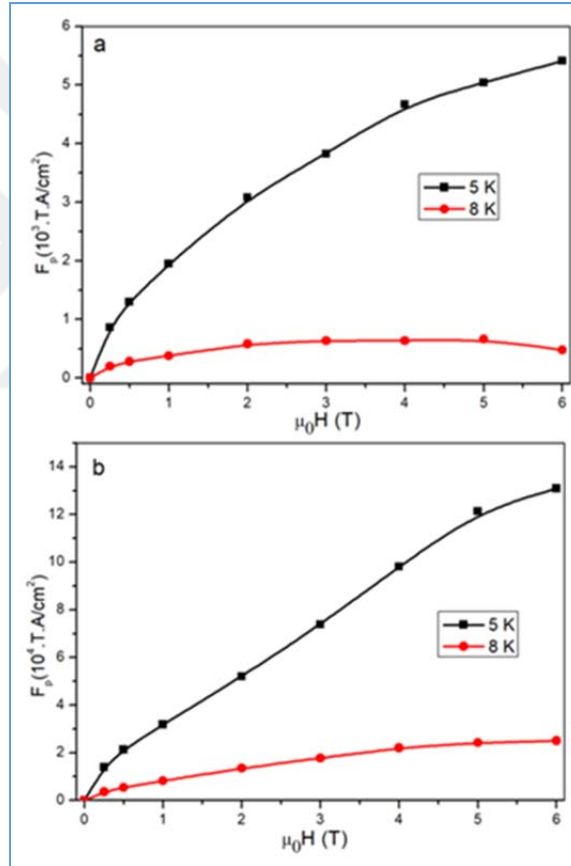


Şekil 4.40. a) Örnek-1 ve b) Örnek-2 için kritik akım yoğunluğunun manyetik alana karşı grafiği

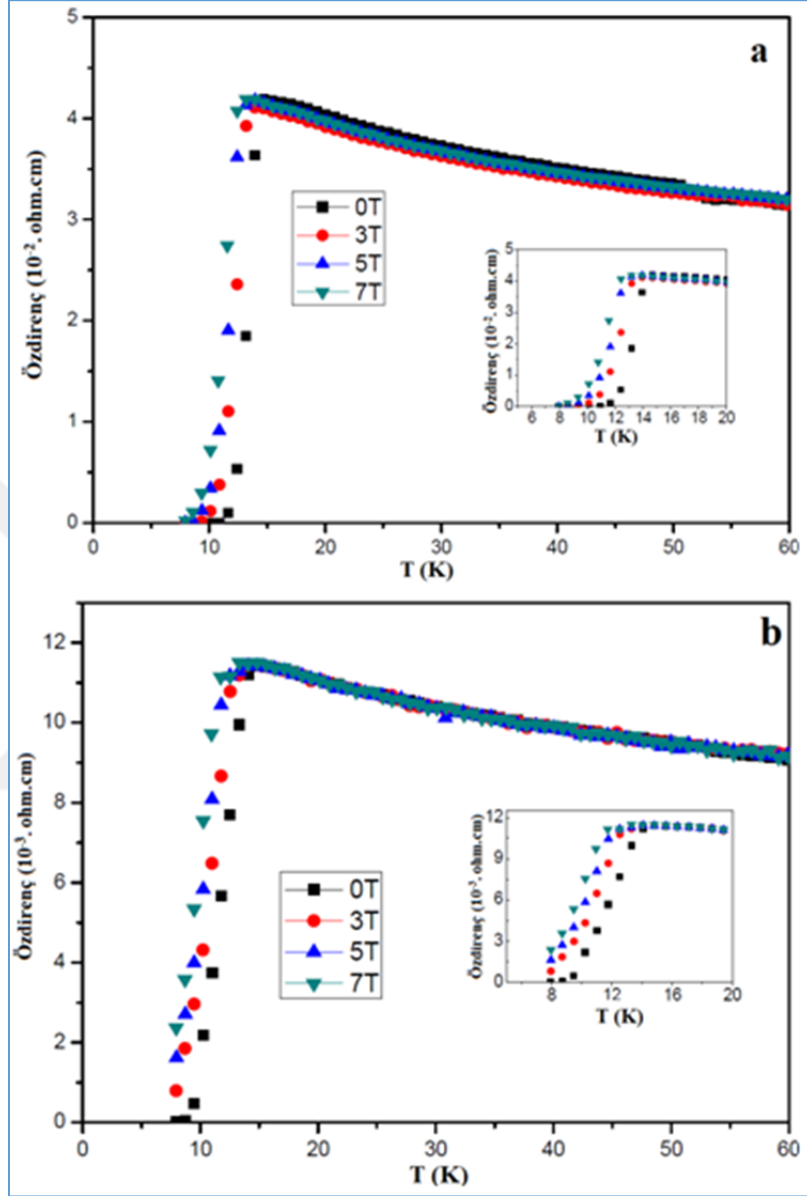
Kritik akım yoğunlukları kullanılarak aşağıdaki eşitlik yardımıyla hacimsel çivileme kuvveti hesaplanabilir.

$$F_p = J_c \times B \quad (4.2)$$

Hesaplanan hacimsel çivileme kuvvetinin manyetik alana karşı grafiği Şekil 4.41a-b'de verilmiştir. İki örneğin de çivileme kuvvetleri sıcaklığın artmasıyla azalmıştır. Örnek-2'nin çivileme kuvveti Örnek-1'in çivileme kuvvetinden her sıcaklık ve manyetik alan değerinde daha büyüktür. Örnek-2'nin çivileme kuvvetinin manyetik alana karşı grafiğinin doğrusal olması en son uygulanan manyetik alanın (6T) çivilemeyi bozmadığını ve üst kritik manyetik alanın 6T'den büyük olduğunu gösterir.



Şekil 4.41. Örnek-1 ve b) Örnek-2 için çivileme kuvvetinin manyetik alana karşı grafiği



Şekil 4.42. a) Örnek-1 ve b) Örnek-2 için magneto-direnç eğrisi

Süperiletkenlerde manyetik alan altında malzemeden akım geçirildiğinde Lorentz kuvvetinden dolayı malzemede bir direnç ortaya çıkacaktır. Bu sebeple manyetik alanın artışıyla birlikte süperiletken örneğin süperiletkenliğe geçiş

başlangıç sıcaklığı,  $T_c^{\text{onset}}$ , sıfır direnç sıcaklığı,  $T_c^{\text{zero}}$  gibi değerleri düşer. Bu bağlamda Örnek-1 ve Örnek-2'ye ait 0, 3, 5 ve 7 T manyetik alan altında direnç sıcaklık ölçümü alınmış ve ölçüm sonuçları Şekil 4.42'de verilmiştir. Örnek-1'in normal durumdaki direnci Örnek-2'ye göre 10 kat fazla gözlenmiştir. Her iki örneğin de direnç eğrileri manyetik alanın artmasıyla genişlemiş  $T_c^{\text{onset}}$  ve  $T_c^{\text{zero}}$  değerleri 3-4 K arası düşmüştür.

Özetlemek gerekirse, bu çalışmada  $0.8^\circ\text{C}/\text{sa}$  ve  $4.5^\circ\text{C}/\text{sa}$  olmak üzere iki farklı soğutma hızıyla hazırlanan  $\text{FeTe}_{0.6}\text{Se}_{0.4}$  tek kristallerin yapısal ve süperiletkenlik özellikleri incelendi. Hızlı soğutma sistemin çoklu faz davranışını artırarak ikili fazların oluşmasına sebep oldu. Bunun sonucunda hızlı soğutulan örnekte FeSe ve FeTe'nin çeşitli ikili fazları gözlemlendi. Bu fazların sistemde etkili çivileme merkezleri oluşturarak histerezis eğrilerinin genişlemesine ve kritik akım yoğunluğunun artmasına sebep olduğu düşünüldü. Bu çerçevede,  $\text{FeTe}_{0.6}\text{Se}_{0.4}$  kristallerinde süperiletkenlik özelliği açısından ( $4.5^\circ\text{C}/\text{sa}$ ) soğutma oranı, ( $0.8^\circ\text{C}/\text{sa}$ ) oranına göre daha uygun bir soğutma hızıdır.

### 4.3. $(\text{K}_{1-x}\text{Na}_x)_{0.8}\text{Fe}_2\text{Se}_2$ Örneklerinin Analiz Sonuçları

$\text{K}_{0.8}\text{Fe}_2\text{Se}_2$  sistemi, Fermi yüzeyinde deşik (hole) tipi ceplerin yokluğu, antiferromanyetik dizilimli yalıtkan fazın varlığı, çok yüksek Néel geçiş sıcaklığına sahip olma ve kristal yapısındaki Fe-boşluklu yapının varlığı gibi diğer demir tabanlı süperiletkenlerden farklı özelliklere sahiptir. Ayrıca W. Bao ve ark. (2011) tarafından yapılan nötron kırınımı, A. Ricci ve ark. (2011) tarafından yapılan nano-odaklı x-ışınımı kırınımı ve R.H. Liu ve ark. (2011) tarafından yapılan manyetik ve direnç ölçümleri gibi çalışmalar  $\text{K}_{0.8}\text{Fe}_2\text{Se}_2$  sisteminde süperiletkenlik ve antiferromanyetik fazın bir arada bulunduğunu göstermiştir. Dolayısıyla,  $\text{K}_{0.8}\text{Fe}_2\text{Se}_2$  sisteminde antiferromanyetik fazı ortadan kaldırmanın ve sadece süperiletken fazını büyütmenin mümkün olup olmadığı sorusu akla geliyor. Litaratüre baktığımız zaman, sistemdeki demir oranının değiştirilmesi (D. Mang ve ark, 2011), farklı ısıtma ve soğutma süreçlerin uygulanması (Y. Liu ve ark, 2012)

ve Se yerine Te katkılanması (T. Ozaki ve ark, 2013) gibi çalışmalar yapılmış ancak sistemde antiferromanyetik ve süperiletkenlik faz bir arada bulunmuştur. Bu çalışmalarından farklı olarak bu bölümde  $K_{0.8}Fe_2Se_2$  sisteminde K azaltılarak çeşitli oranlarda Na katkılanması yapılmıştır. Na ile K elementleri 1A grubu elementleri olup aynı sayıda değerlik elektronlara sahiptir. Bundan dolayı,  $K_{0.8}Fe_2Se_2$  sisteminde potasyumu azaltıp sodyum eklenmesi sistemin taşıyıcı yoğunluğunu değiştirmez. Ancak sodyumun iyonik yarıçapı potasyuma göre daha küçüktür. Böylece sistemdeki alkali metali daha düşük iyonik yarıçapa sahip bir alkali metalle değiştirmenin sistemdeki antiferromanyetik ve süperiletkenlik faza olan etkisi incelenmek istenmiştir. Bu amaçla  $(K_{0.95}Na_{0.05})_{0.8}Fe_2Se_2$ ,  $(K_{0.93}Na_{0.07})_{0.8}Fe_2Se_2$ ,  $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$ ,  $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$ ,  $(K_{0.7}Na_{0.3})_{0.8}Fe_2Se_2$  örnekleri sentezlenmiştir.

#### 4.3.1. $(K_{0.95}Na_{0.05})_{0.8}Fe_2Se_2$ Örneğinin Analiz Sonuçları

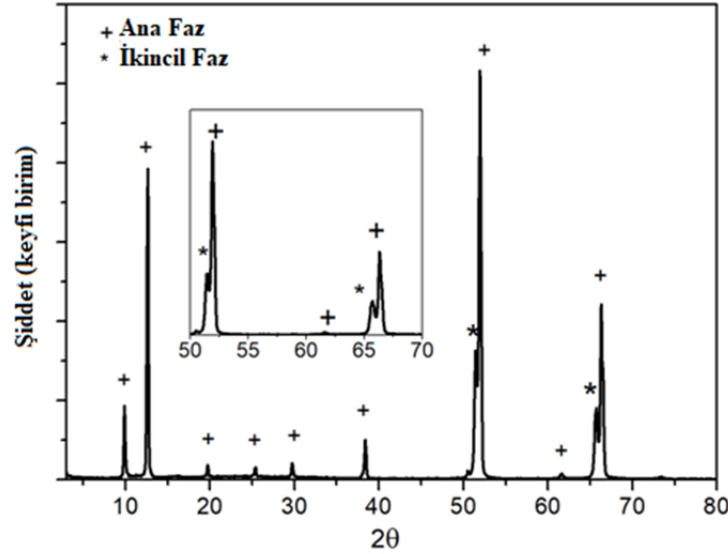
$(K_{0.95}Na_{0.05})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneği,  $K_{0.8}(Fe_{1.02}Se)_2$  ve  $Na_{0.8}(Fe_{1.02}Se)_2$  malzemelerinden Na:K oranının 1:19 olacak şekilde alınıp  $1030^{\circ}C$ 'de ısıtılarak uygulanarak sentezlenmiştir. Elde edilen kristallerin karakterizasyonu için XRD, SEM-EDS ve PPMS kullanılmıştır.

##### 4.3.1.1 $(K_{0.95}Na_{0.05})_{0.8}Fe_2Se_2$ Örneğinin XRD Analiz Sonuçları

$(K_{0.95}Na_{0.05})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğine ait XRD ölçümleri Rigaku marka X-Işını difraktometresinde oda sıcaklığında ve  $2^{\circ} \leq 2\theta \leq 80^{\circ}$  aralığında Cu hedeften gelen  $K\alpha$  ışınımı kullanılarak yapılmış olup XRD desenleri Şekil 4.43'de verilmiştir. Gözlenen XRD pikleri, ana faz ve ikincil faz olarak isimlendirilen ve sırasıyla '+' ve '\*' ile etiketlenen iki gruba ayrılabilir. Burada '+' etiketlenmiş olan ana faz antiferromanyetik düzenli ve boşluklu yapıdaki Fe düzlemine sahip  $A_2Fe_4Se_5$  (A: Alkali Metal) fazıdır.  $2\theta = 12.5, 25.5, 38.3, 52.1$  ve  $66.4^{\circ}$  gözlenen keskin pikler sırasıyla  $(002)$ ,  $(004)$ ,  $(006)$ ,  $(008)$  ve  $(0010)$  düzlemlerine karşılık gelir. Ayrıca  $2\theta = 9.8, 19.7$  ve  $61.5^{\circ}$ 'de gözlenen pikler  $(011)$  gibi  $(00l)$  tipinde olmayan



düzlemlere karşılık gelir. XRD desenlerindeki  $(00l)$  düzlemlerinin çokluğu kristalin yüzünün  $c$  eksenine dik olduğunu gösterir. Gözlenen tüm bu pikler  $\text{ThCr}_2\text{Si}_2$  yapısında olan tetragonal yapıda ve  $I4/mmm$  uzayına ait  $\text{K}_2\text{Fe}_4\text{Se}_5$  fazının karakteristik piklerine karşılık gelir.



Şekil 4.43.  $(\text{K}_{0.95}\text{Na}_{0.05})_{0.8}\text{Fe}_2\text{Se}_2$  Örneğinin XRD desenleri

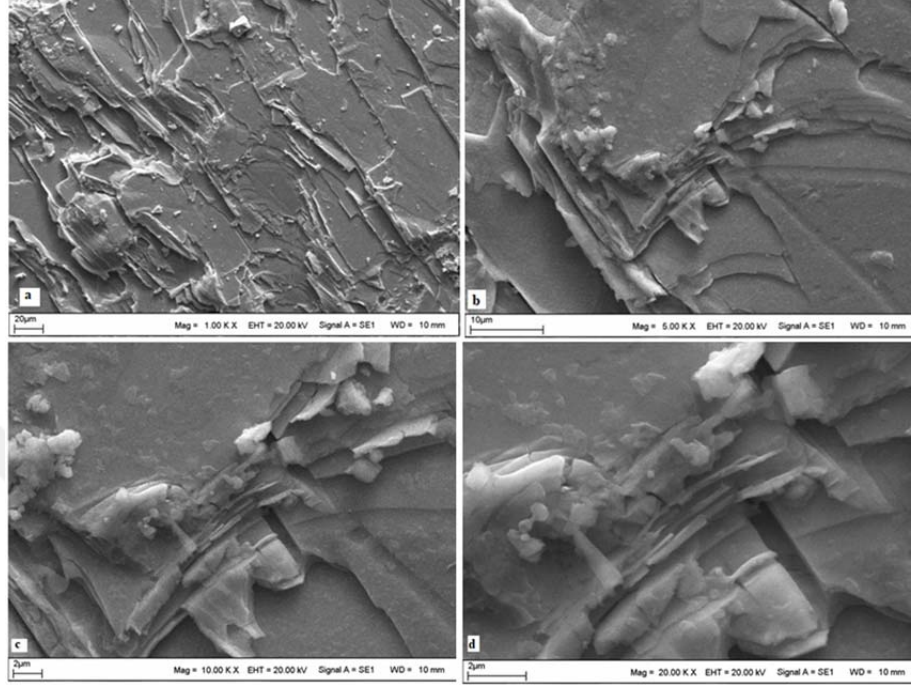
Öte yandan  $(008)$  ve  $(0010)$  düzlemlerine karşılık gelen piklerin hemen öncesinde gözlenen ve \* ile etiketlenip ikincil faz olarak isimlendirdiğimiz fazın hangi faza karşılık geldiği konusunda bir görüş birliği yoktur. Örneğin Lei ve ark. (2011) bu piklerin Fe boşluklu yapıdan kaynaklı zayıf yansımalar olduğunu ileri sürerken, Z. W. Wang ve ark. (2012) ya da M.T. Li ve ark. (2014), \* ile etiketlenen ikincil fazın Fe boşluğu içermeyen süperiletkenlik fazı olduğunu ifade etmişlerdir. Eğer ikincil fazı süperiletkenlik fazı olarak ifade edersek, aşağıda verilen eşitlik yardımıyla süperiletkenlik fazın hacmi  $V(si)$  bulunabilir.

$$V(Si) = \frac{\sum I_{si}}{\sum I_{si} + \sum I_{245}} \quad (4.3)$$

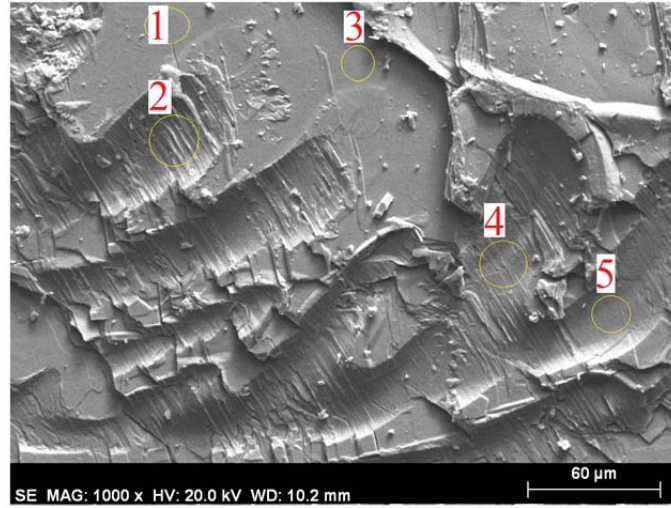
Burada  $I_{Sf}$  ve  $I_{245}$  sırasıyla süperiletkenlik ve antiferromanyetik 245 fazının XRD piklerinin şiddet değeridir. Bu denklem kullanılarak süperiletkenlik hacim yaklaşık % 15.8 olarak hesaplanmıştır. Örneğin örgü parametreleri ise  $a = 3.9095 \text{ \AA}$  ve  $c = 14.0129 \text{ \AA}$  olarak hesaplanmıştır.

#### 4.3.1.2. $(K_{0.95}Na_{0.05})_{0.8}Fe_2Se_2$ Örneğinin SEM ve EDS Analiz Sonuçları

$(K_{0.95}Na_{0.05})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin yüzey morfolojisi SEM-EDS tekniği kullanılarak incelendi. Örneğe ait 1.00, 5.00, 10.00 ve 20.00 KX büyütme oranlarında ve ikincil moda (SE) elde edilen SEM görüntüleri Şekil 4.44a-d'de verilmiştir. Görüntüler incelendiğinde örnekte tabakalı yapının hâkim olduğu görülmektedir. Örnek içerisinde yer yer teras tipi düzlemler üst üste gelecek şekilde istiflenmiştir. Ancak bu istiflenmeler çok düzenli bir şekilde olmayıp gelişigüzel bir şekilde olduğu görüntülerde gözlenmektedir.

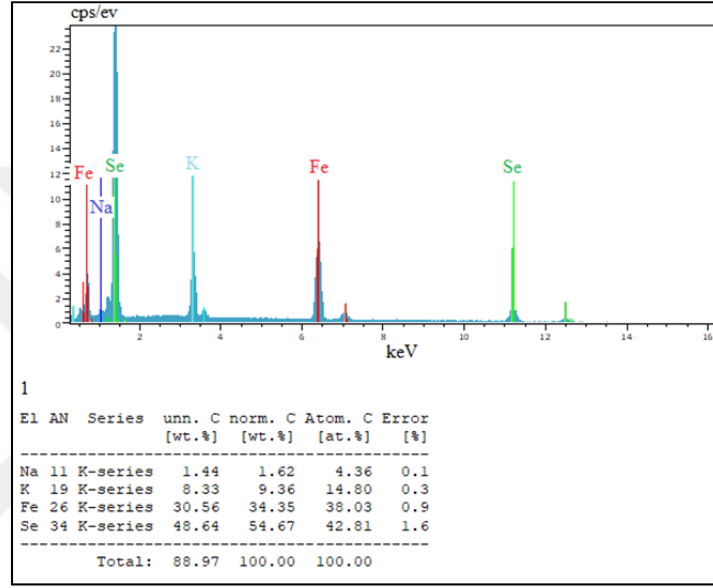


Şekil 4.44.  $(K_{0.95}Na_{0.05})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin a) 1.00 KX, b) 5.00 KX, c) 10.00 KX ve d) 20.00 KX büyütmelerde alınan SEM görüntüleri

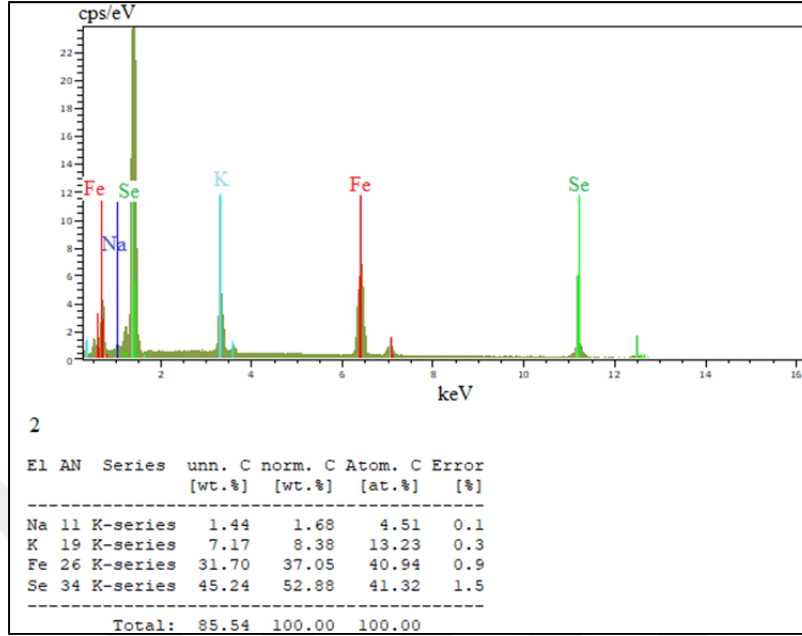
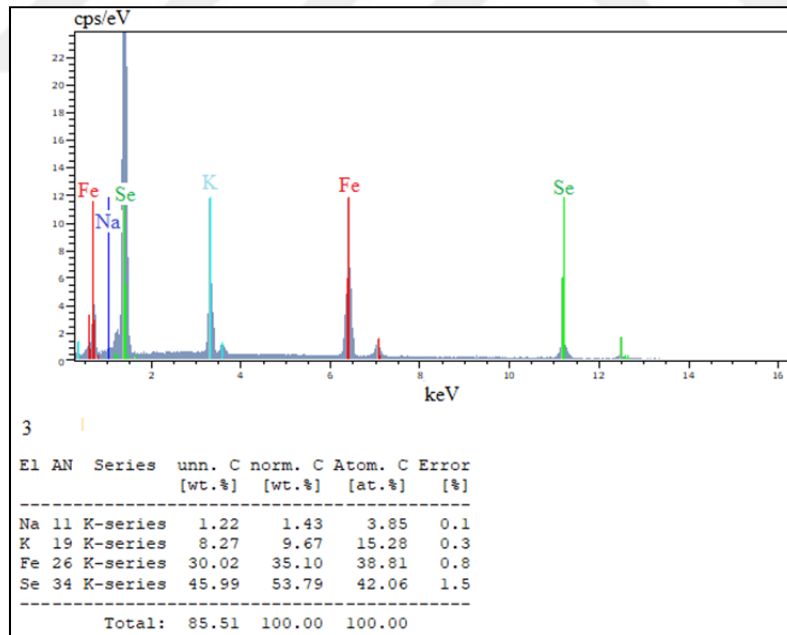


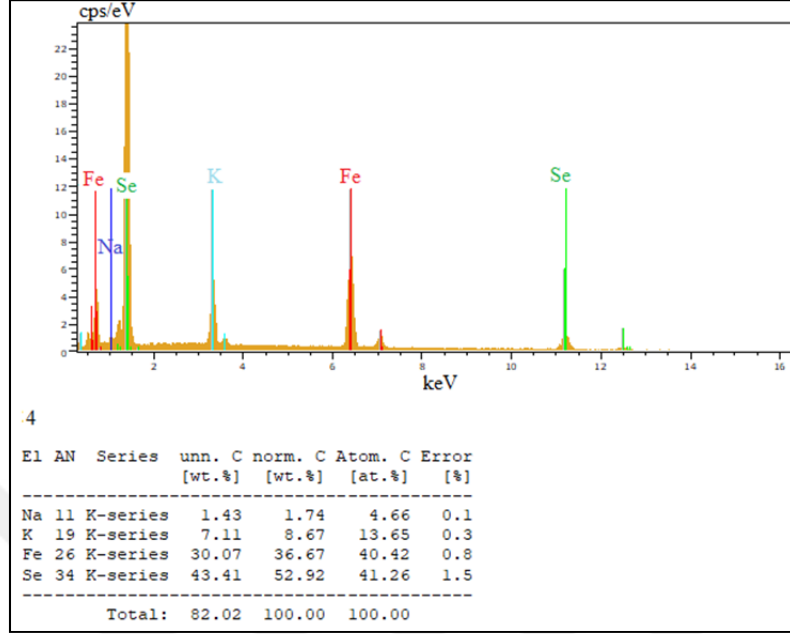
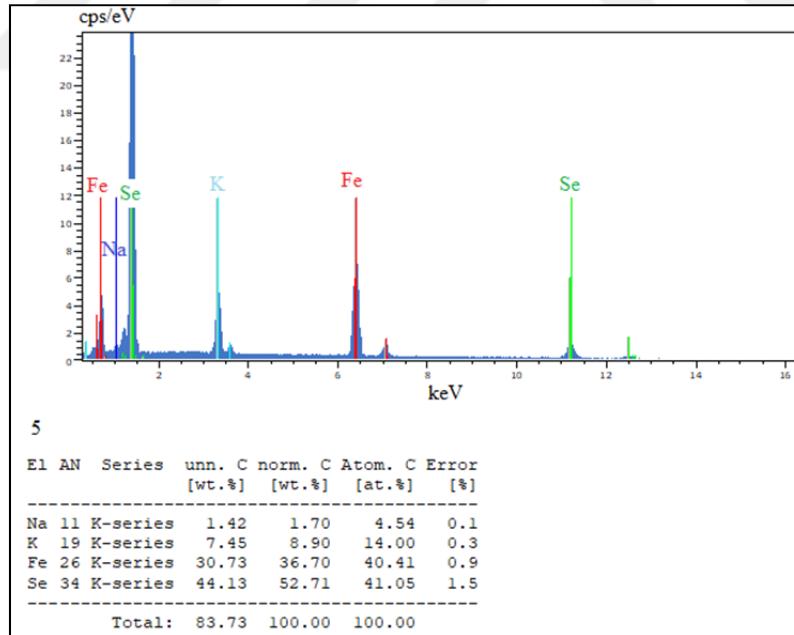
Şekil 4.45.  $(K_{0.95}Na_{0.05})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneği için EDS analizinde kullanılan bölgeler

Örneğin elementel analizleri SEM'e bağlı EDS ile incelenmiştir.  $(K_{0.95}Na_{0.05})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneği için EDS analizinde kullanılan bölgeler Şekil 4.45'deki SEM fotoğrafında verilmiştir. Seçilen beş bölgedeki elementlerin EDS sonuçları ve yüzde atomik oranları Şekil 4.46-50'de sırasıyla verilmiştir.

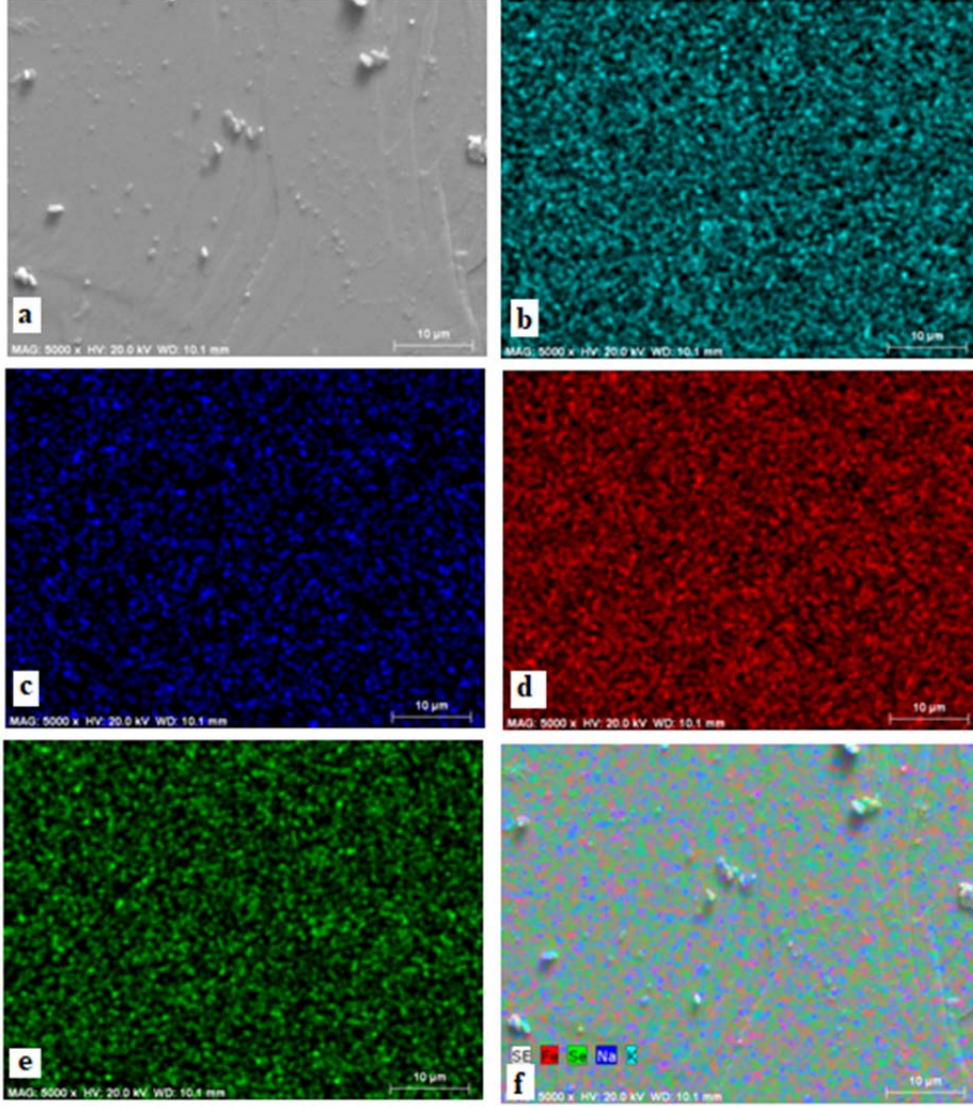


Şekil 4.46.  $(K_{0.95}Na_{0.05})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneği için seçilen 1. bölgenin EDS analizi

Şekil 4.47.  $(K_{0.95}Na_{0.05})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneği için seçilen 2. bölgenin EDS analiziŞekil 4.48.  $(K_{0.95}Na_{0.05})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneği için seçilen 3. bölgenin EDS analizi

Şekil 4.49.  $(K_{0.95}Na_{0.05})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneği için seçilen 4. bölgenin EDS analiziŞekil 4.50.  $(K_{0.95}Na_{0.05})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneği için seçilen 5. bölgenin EDS analizi

EDS sonuçlarına bakıldığında kristali oluşturan Fe, Se, K ve Na elementleri dışında başka safsızlık elementleri gözlenmemiştir. Seçilen beş farklı noktanın EDS spektrumlarının ortalaması alınmış ve örnek  $(K_{0.85}Na_{0.26})_{0.8}Fe_{1.91}Se_2$  kompozisyonundan oluşmuştur. Buna başlangıçta seçilen  $(K_{0.95}Na_{0.05})_{0.8}Fe_2Se_2$  nominal değerlere göre bakıldığında seçilen noktalarda Fe ve K değerleri azalmış Na değeri de artmıştır. Se ise beklenildiği gibi  $Se_2$  olarak bulunmuştur. Elementlerin örnek içerisindeki dağılımının incelenmesi için EDS nokta haritalaması yapılmıştır. Şekil 4.51’de noktalama yapılan bölgenin 5.0KX SEM görüntüsünün yanında her bir elementin nokta haritalaması ve örneği oluşturan tüm elementlerin nokta haritalaması bir arada verilmiştir. Harita incelendiğinde Fe, Se, K ve Na elementlerinin örnek yüzeyi boyunca homojen olarak dağıldığı görülebilir.

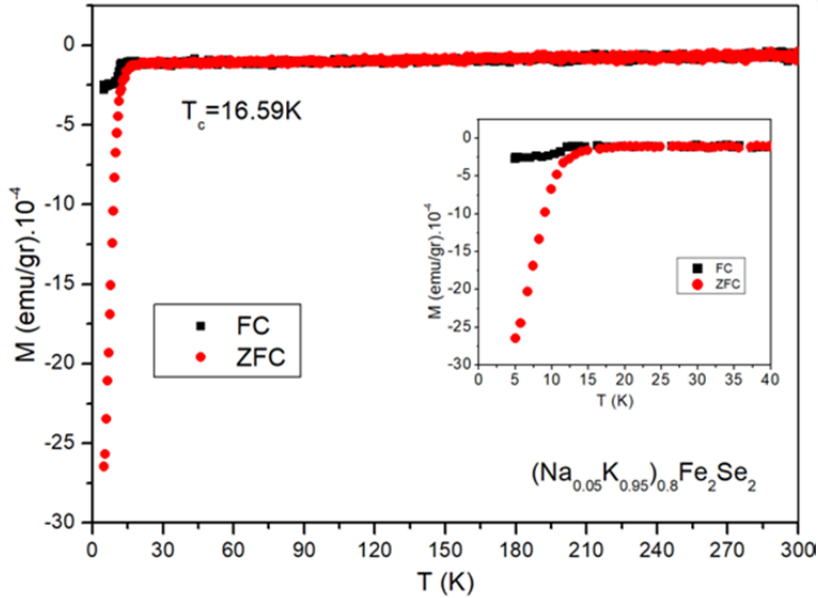


Şekil 4.51.  $(K_{0.95}Na_{0.05})_{0.8}Fe_2Se_2$  için EDS nokta haritalaması a) Noktalama yapılan bölgenin 5.0KX SEM görüntüsü, b) K nokta haritalaması, c) Na nokta haritalaması, d) Fe nokta haritalaması, e) Se nokta haritalaması, f) K, Na, Fe ve Se için toplu nokta haritalaması



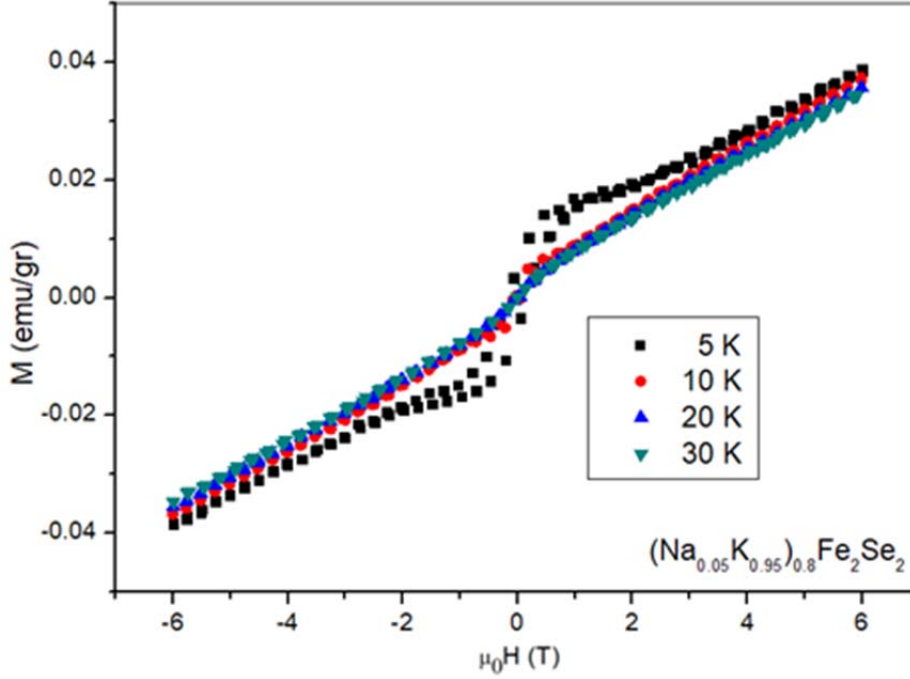
#### 4.3.1.3. $(K_{0.95}Na_{0.05})_{0.8}Fe_2Se_2$ Örneğinin Manyetik Ölçümleri

$(K_{0.95}Na_{0.05})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin 10 Oe alan değerinde ölçülen sıfır alan soğutmalı (ZFC) ve alan soğutmalı (FC) manyetizasyon-sıcaklık eğrileri ( $M-T$ ) Şekil 4.52’de verilmiştir. Şekil incelendiğinde örneğin ZFC ve FC eğrilerinin 300 ile 16 K arasında birbirine çakışık olduğu ve örneğin  $-0.95 \times 10^{-4}$  emu/gr civarı düşük bir manyetizasyon değeri gösterdiği görülebilir. Bu değer sıcaklıkla birlikte çok fazla değişmeyip düzgün bir meyil seyredir. Bu durum örneğin Pauli paramagnet olduğunu gösterir. 16K civarında ZFC eğrisiyle FC eğrisi birbirinden ayrılmış ve örnek hızlı bir şekilde süperiletkenlik duruma geçmiştir. Geçiş sıcaklığının altındaki 5K’de örnek yaklaşık  $-26 \times 10^{-4}$  emu/gr değerinde düşük bir diyamanyetik sinyal üretmiştir. Bu da örnekteki süperiletkenlik hacmin düşük olduğunu gösterir. Şekil 4.52’in iç grafiğinde görüldüğü gibi FC eğrisindeki manyetizasyon değeri de 12 K’de bir düşüş gösterip  $-2.3 \times 10^{-4}$  emu/gr değerinde doyuma ulaşmıştır.



Şekil 4.52.  $(K_{0.95}Na_{0.05})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin  $M-T$  eğrisi

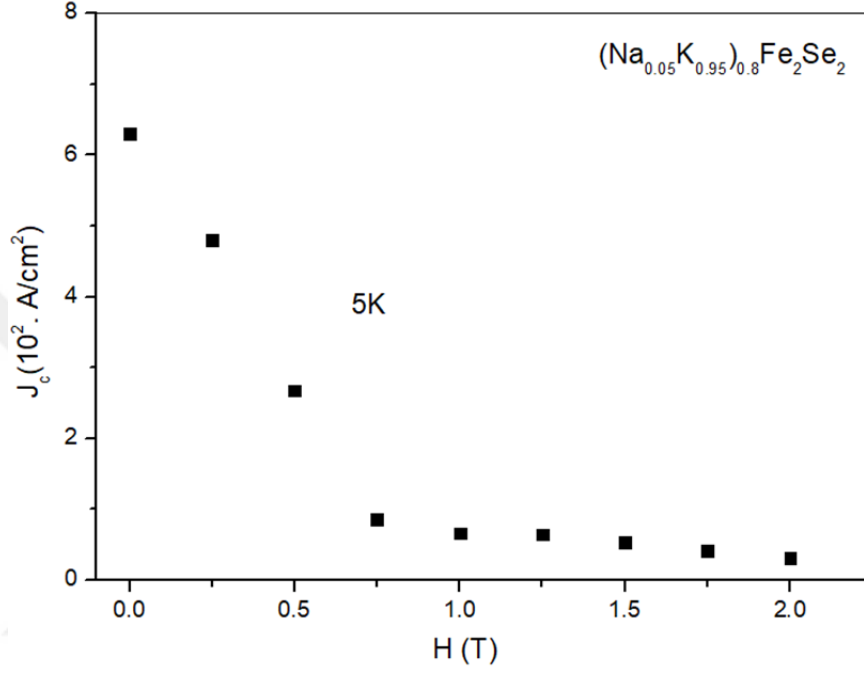
$(K_{0.95}Na_{0.05})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin  $\mp 6T$  aralığında alınan  $M-H$  ölçümleri Şekil 4.53’de verilmiştir. Örnekteki süperiletken fazın düşük olması sebebiyle 5 ve 10 K’de çok dar histerezis davranış ortaya çıkmıştır. 20 ve 30 K sıcaklıklarında ise süperiletken durum tamamen ortadan kalkmıştır. 5K’de  $\mp 2T$  alan değerlerinde örnek çok dar bir histerezis davranışı göstermiş ve bu alan değerinden sonra süperiletken durum ortadan kalkmıştır. 10 K’de ise ancak  $\mp 0.9T$  değerleri arasında süperiletken histerezis davranışı göstermiş daha sonra bu davranış 0.9T’den sonra kaybolmuştur.



Şekil 4.53.  $(K_{0.95}Na_{0.05})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin  $M-H$  eğrisi

$(K_{0.95}Na_{0.05})_{0.8}Fe_2Se_2$  Kritik Akım Yoğunluğu ( $J_c$ ) Bean Kritik Durum Modeli kullanılarak Denklem (4.1)’den hesaplanmıştır. Örneğin histerezis davranışı çok belirgin olmadığı için sadece 5K’de 2T’ye kadar  $J_c$  değerleri

hesaplanmış olup Şekil 4.54'de gösterilmiştir. Örneğin sıfır alan değerinde  $J_c$  değeri  $6.2 \times 10^2 \text{ A/cm}^2$  olarak hesaplanmıştır.



Şekil 4.54.  $(\text{K}_{0.95}\text{Na}_{0.05})_{0.8}\text{Fe}_2\text{Se}_2$  örneğinin 5K'de kritik akım yoğunluğunun manyetik alana karşı grafiği

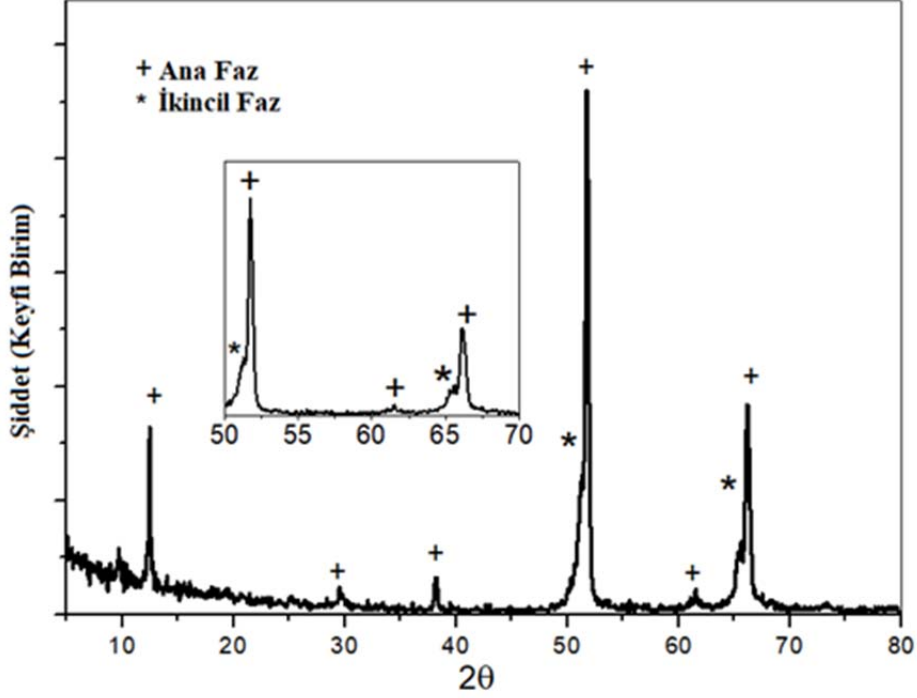
#### 4.3.2. $(\text{K}_{0.93}\text{Na}_{0.07})_{0.8}\text{Fe}_2\text{Se}_2$ Örneğinin Analiz Sonuçları

$(\text{K}_{0.93}\text{Na}_{0.07})_{0.8}\text{Fe}_2\text{Se}_2$  örneği,  $(\text{K}_{0.95}\text{Na}_{0.05})_{0.8}\text{Fe}_2\text{Se}_2$  örneğinde kullanılan basamaklar takip edilerek sentezlenmiştir. Farklı olarak  $\text{K}_{0.8}(\text{Fe}_{1.02}\text{Se})_2$  ve  $\text{Na}_{0.8}(\text{Fe}_{1.02}\text{Se})_2$  malzemelerinden Na:K oranı, 7:93 olarak alınmıştır. Elde edilen kristallerin karakterizasyonu için XRD, SEM-EDS ve PPMS kullanılmıştır.

**4.3.2.1.  $(K_{0.93}Na_{0.07})_{0.8}Fe_2Se_2$  Örneğinin XRD Analiz Sonuçları**

$(K_{0.93}Na_{0.07})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin oda sıcaklığında ve  $2^\circ \leq 2\theta \leq 80^\circ$  aralığında  $0.02^\circ$  artışlarla alınan XRD ölçüm sonuçları Şekil 4.55’de verilmiştir. Burada XRD pikleri, ana faz ve ikincil faz olarak isimlendirilen ve sırasıyla ‘+’ ve ‘\*’ ile etiketlenen iki gruba ayrılabilir. XRD deseninden  $2\theta = 12.5, 38.1, 51.3$  ve  $66.4^\circ$  değerlerinde ana faza ait 4 tane dar ve keskin pik görülebilir. Bu pikler tetragonal yapıdaki  $I4/mmm$  yapısı kullanılarak iyi bir şekilde indekslenir ve sırasıyla (002), (006), (008) ve (0010) düzlemlerindeki yansıma karşılık gelir. Öte yandan  $2\theta = 29.5$  ve  $61.5^\circ$  değerlerinde (103) ve (246) düzlemlerine karşılık gelen nispeten düşük şiddetli pikler mevcuttur. Gözlenen tüm bu pikler  $K_2Fe_4Se_5$  fazının karakteristik pikleridir. Bu pikler dışında Na katkılamasından kaynaklı yeni pikler gözlenmemiştir. Buradan 0.07 oranındaki Na katkılması sisteme dâhil olmuş ve safsızlık piki oluşturmamıştır sonucuna varabiliriz. Ayrıca XRD deseninde (001) tipindeki yansımaların hâkim olması kristal yüzeyinin c eksenine dik olduğunu gösterir. Örneğin örgü parametreleri  $a = 3.8904 \text{ \AA}$  ve  $c = 14.0692 \text{ \AA}$  olarak hesaplanmıştır.

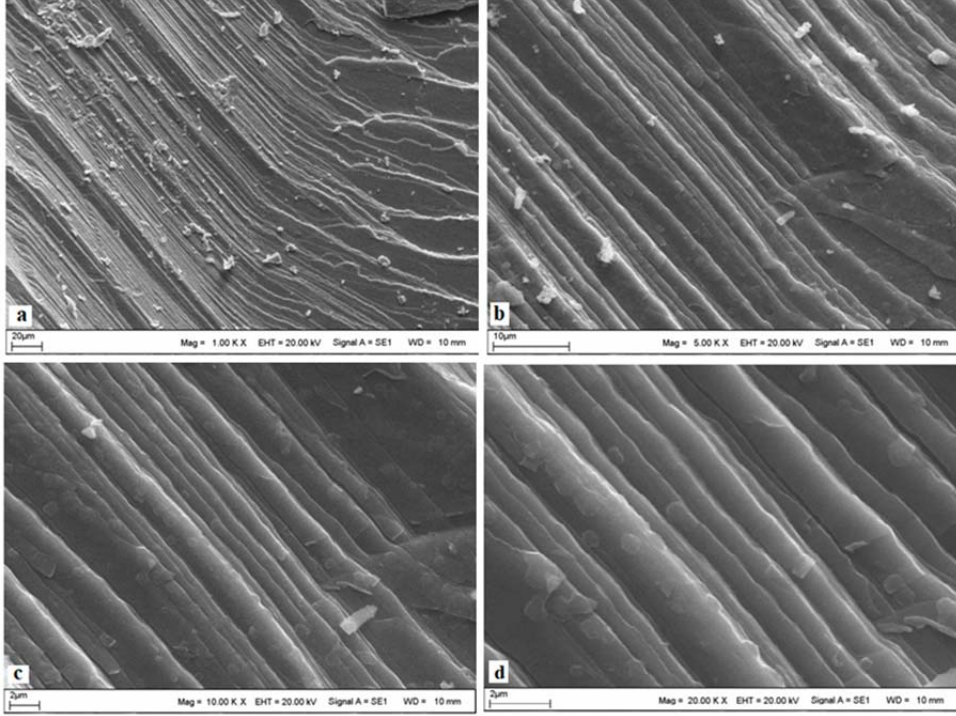
$2\theta = 51.2$  ve  $65.6^\circ$  açı değerlerinde gözlenen ‘\*’ ile etiketlediğimiz piklerin süperiletkenlik fazına ait olduğunu düşünürsek Denklem (4.3) yardımıyla sistem içerisindeki süperiletkenlik hacmi hesaplanabilir. Bu denklem kullanılarak süperiletkenlik hacmin oranı yaklaşık % 17.4 olarak hesaplanmıştır.



Şekil 4.55.  $(K_{0.93}Na_{0.07})_{0.8}Fe_2Se_2$  Örneğinin XRD desenleri

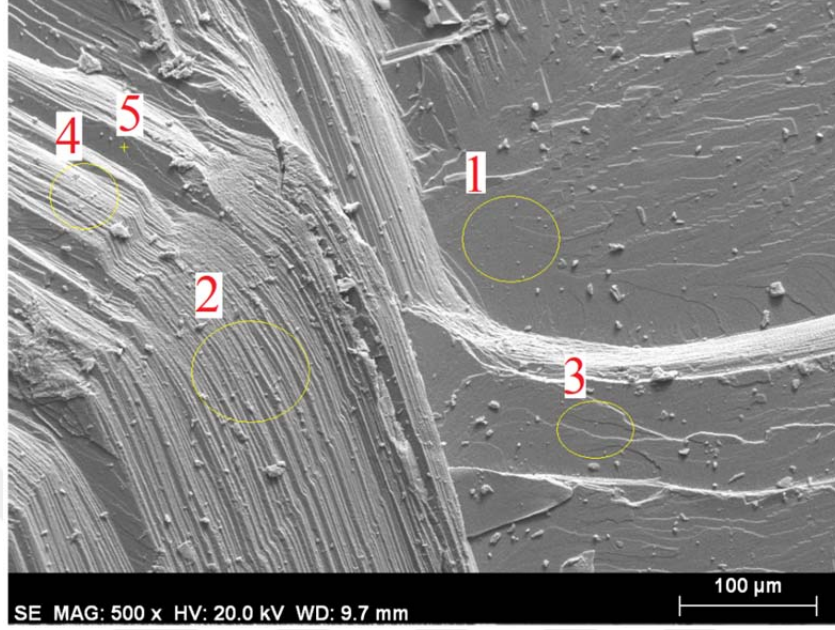
#### 4.3.2.2. $(K_{0.93}Na_{0.07})_{0.8}Fe_2Se_2$ Örneğinin SEM ve EDS Analiz Sonuçları

Örneğin yüzey morfolojisi incelenmesi ve kompozisyonunun belirlenmesi için SEM-EDS ölçümleri alınmıştır.  $(K_{0.93}Na_{0.07})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin ikincil moda (SE) ve 1.00, 5.00, 10.00 ve 20.00 KX büyütme oranlarında alınan SEM görüntüleri Şekil 4.56a-d'de verilmiştir.

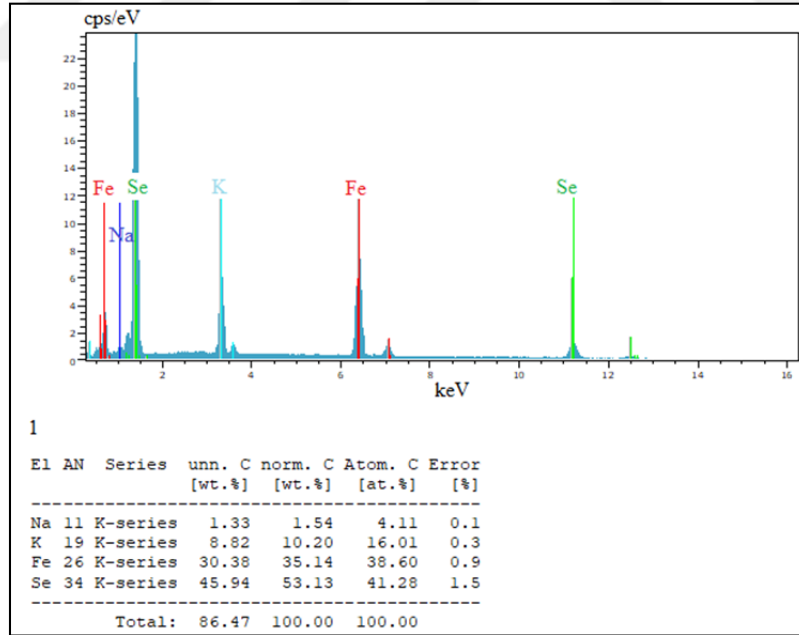


Şekil 4.56.  $(K_{0.93}Na_{0.07})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin a) 1.00 KX, b) 5.00 KX, c) 10.00 KX ve d) 20.00 KX büyütmelerde alınan SEM görüntüleri

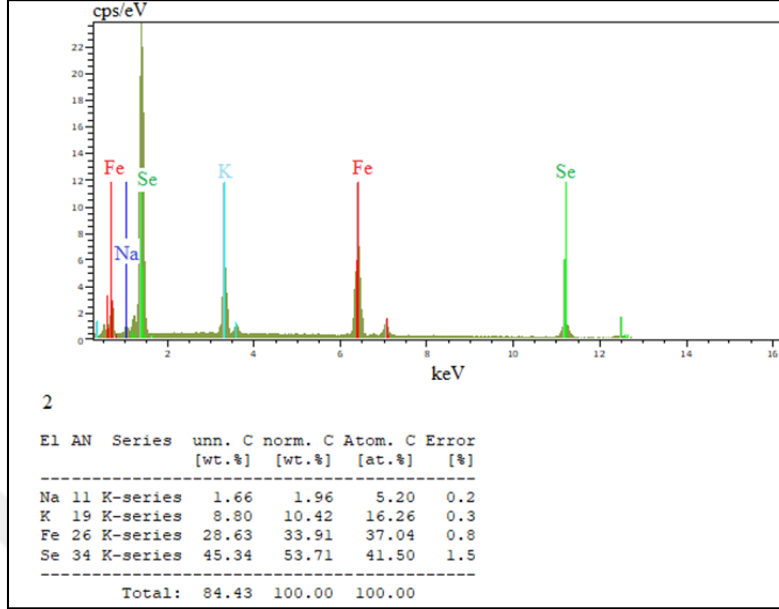
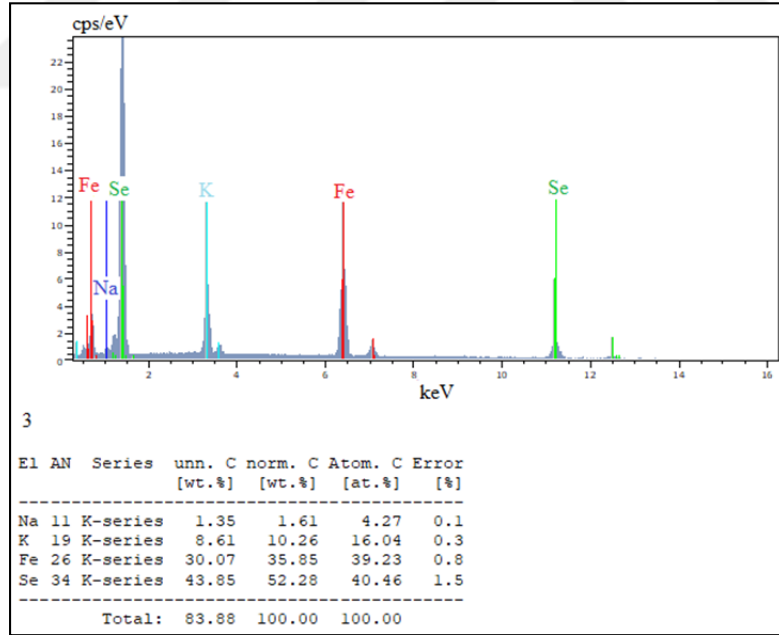
SEM görüntüleri incelendiğinde  $(K_{0.93}Na_{0.07})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinde tabakalı yapının hâkim olduğu gözlenir. Özellikle 1.00 KX büyütme (Şekil 4.56a) alınan fotoğrafta birbiri ardına dizilmiş çok sayıda düzlemler görülebilir. Bu tabak tipi düzlemler ab düzlemi boyunca kristalin büyüdüğünü gösterir ve XRD desenlerinde gözlenen  $\{00L\}$  düzlemlerine karşılık gelir. ab düzlemi boyunca uzanan bu düzlemlerden dolayı kristal ab yönünde kolayca kesildiği SEM ölçümleri için örnek hazırlanırken görülmüştür. 20.00 KX büyütmede alınan SEM fotoğrafına bakılırsa bu düzlemlerin kesitinin  $2\mu m$  ölçek göz önüne alındığında bile çok küçük kaldığı gözlenebilir. Bu açıdan bu düzlemleri eni ve boyu olan ama kalınlığı olmayan gerçek anlamda ideal düzlem yapısına benzediği söylenebilir.



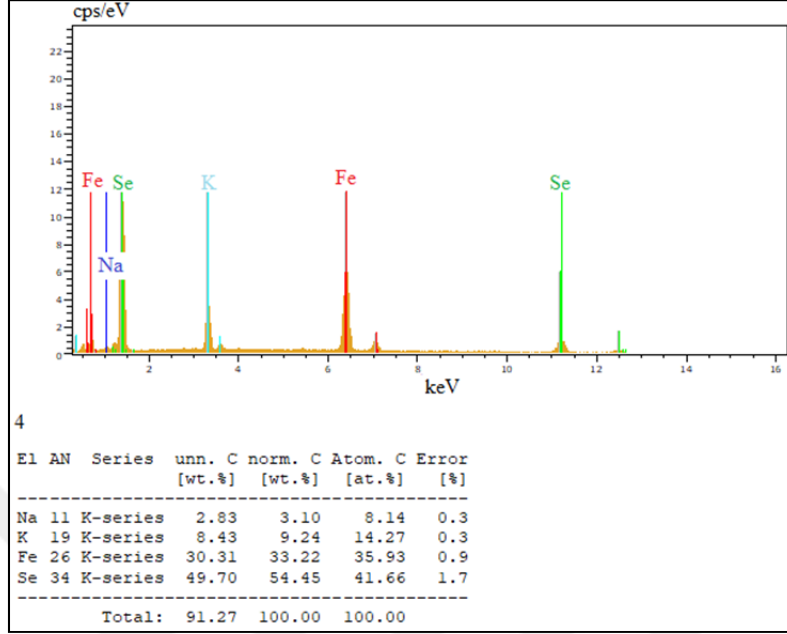
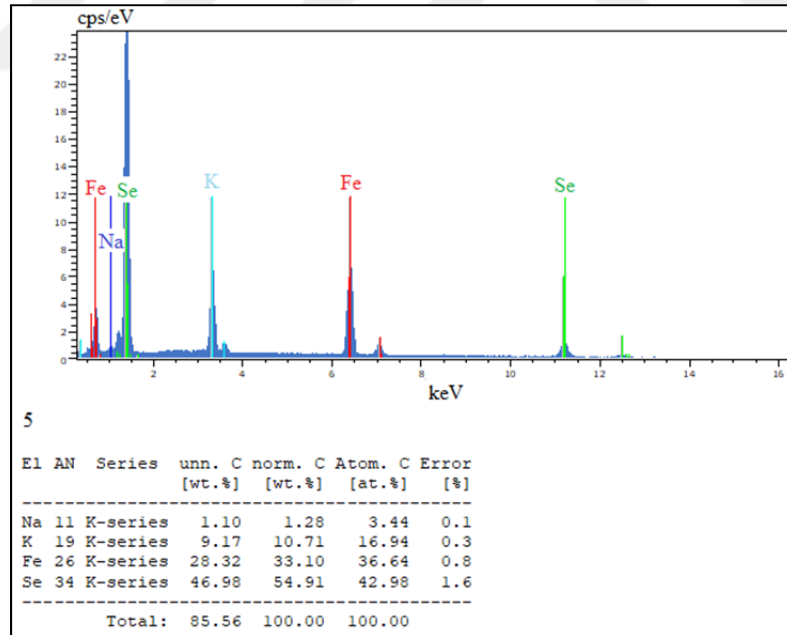
Şekil 4.57.  $(K_{0.93}Na_{0.07})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneği için EDS analizinde kullanılan bölgeler



Şekil 4.58.  $(K_{0.93}Na_{0.07})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneği için seçilen 1. bölgenin EDS analizi

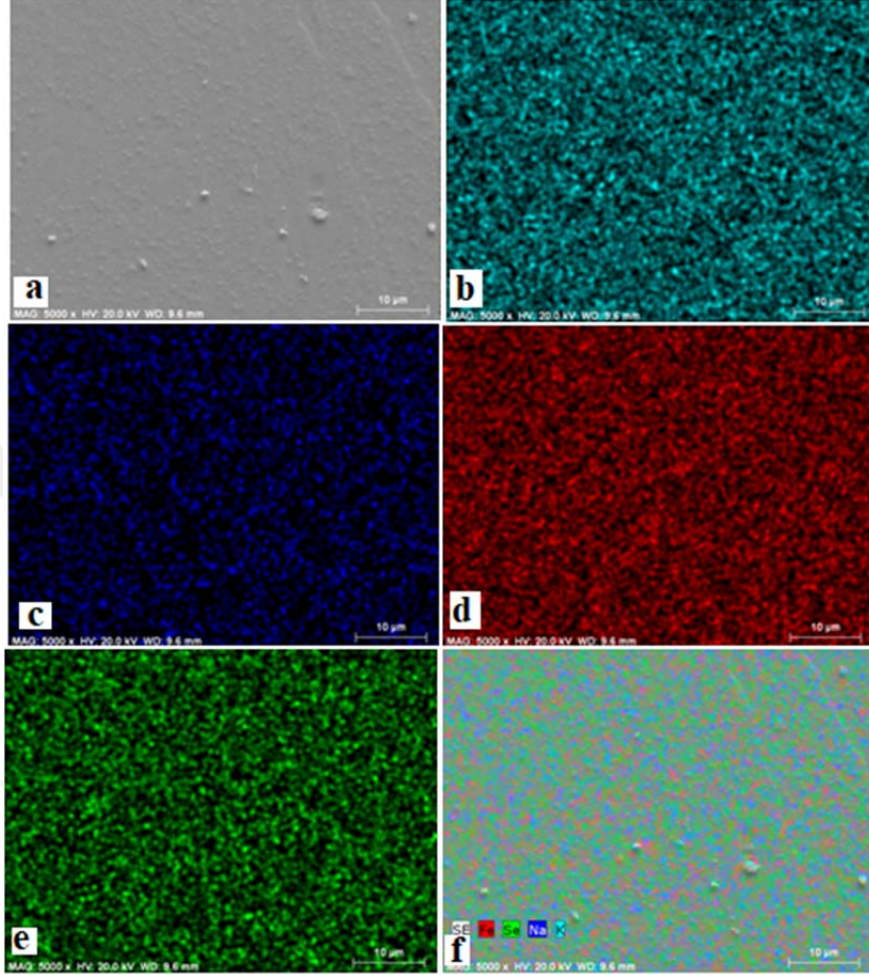
Şekil 4.59.  $(K_{0.93}Na_{0.07})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneği için seçilen 2. bölgenin EDS analiziŞekil 4.60.  $(K_{0.93}Na_{0.07})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneği için seçilen 3. bölgenin EDS analizi



Şekil 4.61.  $(K_{0.93}Na_{0.07})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneği için seçilen 4. bölgenin EDS analiziŞekil 4.62.  $(K_{0.93}Na_{0.07})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneği için seçilen 5. bölgenin EDS analizi

Örneğin kompozisyonlarının belirlenmesi için EDS kullanılmıştır.  $(K_{0.93}Na_{0.07})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneği için EDS analizinde kullanılan bölgeler Şekil 4.57'deki SEM fotoğrafında verilirken bu bölgelerdeki EDS sonuçları ve yüzde atomik oranları Şekil 4.58-62'de sırasıyla verilmiştir. Gözlenen spektrumlara bakılırsa örneği oluşturan K, Na, Fe ve Se dışında başka safsızlık diyebileceğimiz elementlerin spektrumları gözlenmemiştir. Seçilen 5 bölgenin spektrum ortalamaları alınarak örneğin kompozisyonu  $(K_{0.95}Na_{0.3})_{0.8}Fe_{1.8}Se_2$  olarak belirlenmiştir.  $(K_{0.93}Na_{0.07})_{0.8}Fe_2Se_2$  nominal değere göre K ve Na alkali metallerin oranı artmış Fe elementinin oranı ise azalmıştır. Se ise nominal değerde bulunmuştur.

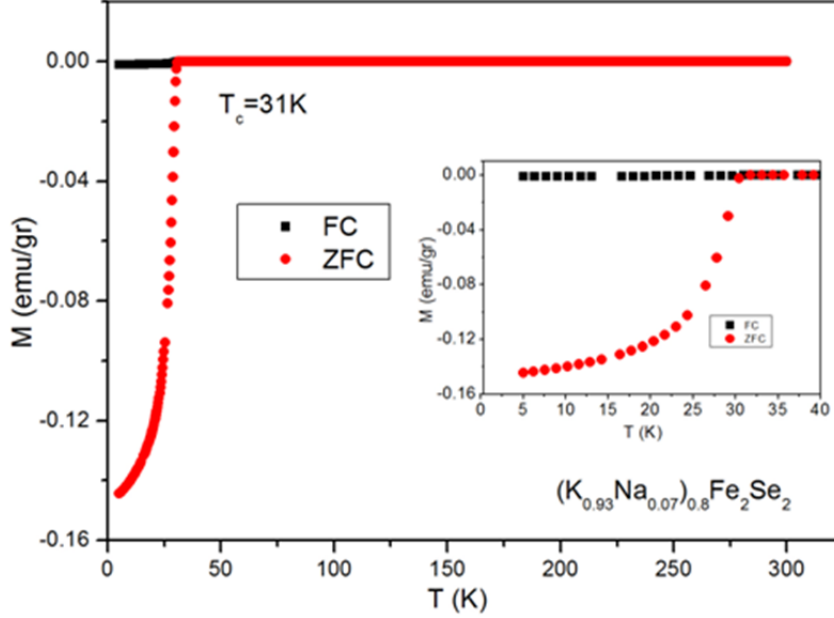
Elementlerin örnek içerisindeki dağılımının incelenmesi için EDS nokta haritalaması yapılmıştır. Şekil 4.63'de noktalama yapılan bölgenin 5.0KX SEM görüntüsünün yanında her bir elementin nokta haritalaması ve örneği oluşturan tüm elementlerin nokta haritalaması bir arada verilmiştir. Harita incelendiğinde Fe, Se, K ve Na elementlerinin örnek yüzeyi boyunca homojen olarak dağıldığı görülebilir. Ayrıca  $K_2Se$ ,  $Na_2Se$  ve  $FeSe$  gibi ikili kümelenmeler oluşmamıştır.



Şekil 4.63.  $(K_{0.93}Na_{0.07})_{0.8}Fe_2Se_2$  için EDS nokta haritalaması a) Noktalama yapılan bölgenin 5.0KX SEM görüntüsü, b) K nokta haritalaması, c) Na nokta haritalaması, d) Fe nokta haritalaması, e) Se nokta haritalaması, f) K, Na, Fe ve Se için toplu nokta haritalaması

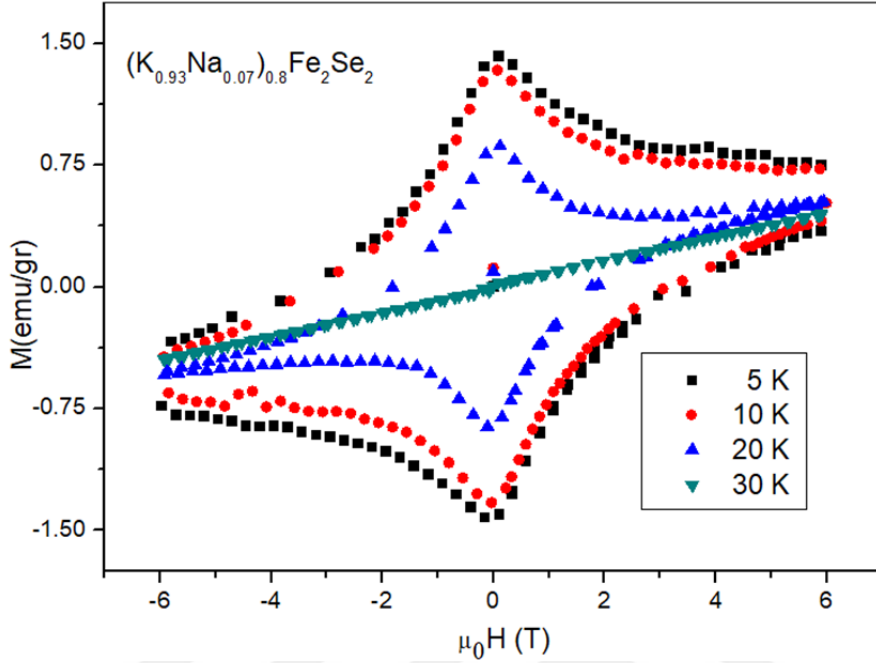
#### 4.3.2.3. $(K_{0.93}Na_{0.07})_{0.8}Fe_2Se_2$ Örneğinin Manyetik Ölçüm Sonuçları

$(K_{0.93}Na_{0.07})_{0.8}Fe_2Se_2$  tek kristallerin 10 Oe'te ölçülen sıcaklığa bağlı sıfır alan soğutmalı (ZFC) ve alan soğutmalı (FC) manyetizasyonları Şekil 4.64'de gösterilmiştir.



Şekil 4.64.  $(K_{0.93}Na_{0.07})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin  $M-T$  eğrisi

$(K_{0.93}Na_{0.07})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin, sıfır alan soğutmalı manyetizasyonları (ZFC) eğrisine bakılırsa, süperiletkenlik perdelemenin (shielding), süperiletkenliğe geçiş sıcaklığında ortaya çıkmaya başladığı ve sonra açık bir şekilde süperiletken duruma geçtiği görülmüştür.  $T_{c-on}^{mag} = 31K$ 'den itibaren diyamanyetizma özelliği göstermeye başlamıştır. Örnekte görülen geçiş sıcaklıklarındaki yüksek diyamanyetik sinyal, yüksek kristal kalitesini ve bulk süperiletkenlik varlığını gösterir. ZFC ve FC eğrileri süperiletken geçiş sıcaklığın üzerindeki değerlerde birbirleriyle çakışık ve sıcaklıktan bağımsız olarak  $-5.44 \times 10^{-4}$  emu/gr gibi bir değerde meyletmesi örneğin Pauli paramagnet olduğunu gösterir.

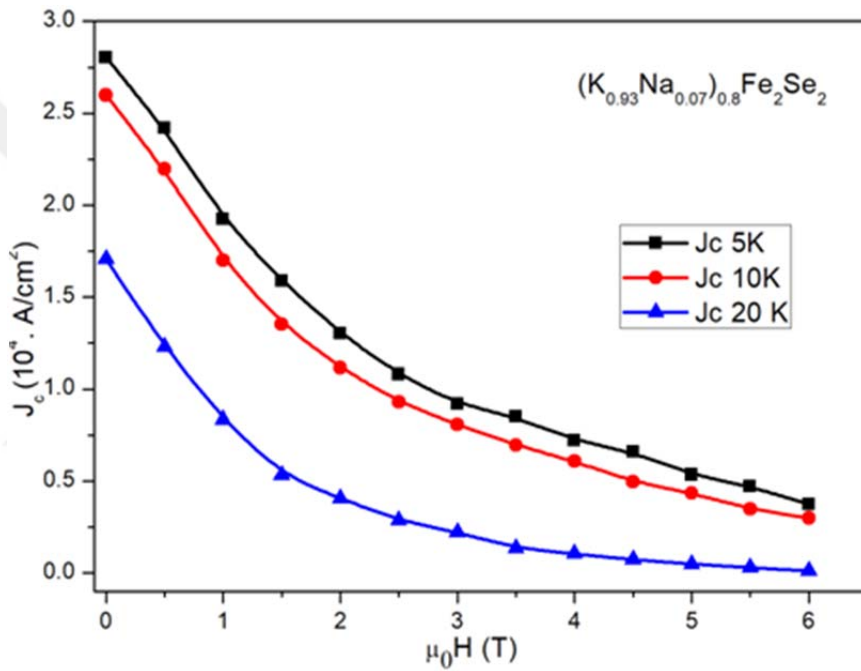


Şekil 4.65.  $(K_{0.93}Na_{0.07})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin  $M-H$  eğrisi

$(K_{0.93}Na_{0.07})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin  $M-H$  eğrisi Şekil 4.65’de verilmiştir. Örneğin  $M-H$  eğrisine bakılırsa 5, 10 ve 20K sıcaklıklarda tipik süperiletken histerezis davranışı göstermektedir. Histerezis eğrilerinin geniş olması örneğin süperiletken hacminin büyük olduğunun bir göstergesi olarak kabul edilebilir. Artan sıcaklıkla birlikte histerezis eğrilerin genişliğinin azaldığı gözlenmiştir. Ölçümler  $\mp 6T$  aralığında yapılmıştır. 5, 10 ve 20K sıcaklıklarında 6 T’den alan değerlerinde  $M-H$  eğrilerinin geldiği yolu takip etmeyip histerezis davranışı göstermesi örneğin  $H_{c2}$  kritik manyetik alan değerinin 6 T’den büyük olduğunu gösterir. 30 K’de sıcaklığın geçiş sıcaklığına yaklaşmasıyla birlikte histerezis davranışı ancak  $\mp 0.6T$  aralığında görülmekte olup bu alan değerlerinden sonra süperiletkenlik fazı kaybolmaktadır. Bu açıdan  $(K_{0.93}Na_{0.07})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin 30K’deki  $H_{c2}$  kritik manyetik alan değerinin 0.6 T civarında olduğunu söyleyebiliriz. Örneğin  $H_{c1}$  kritik manyetik alan değeri 5, 10 ve 20K sıcaklıklarında

belirgin şekilde değişmeyip 0.66 T civarındadır. Öte yandan 30K'deki  $H_{c1}$  kritik manyetik alan değeri 0.016 T değerine kadar düşmektedir.

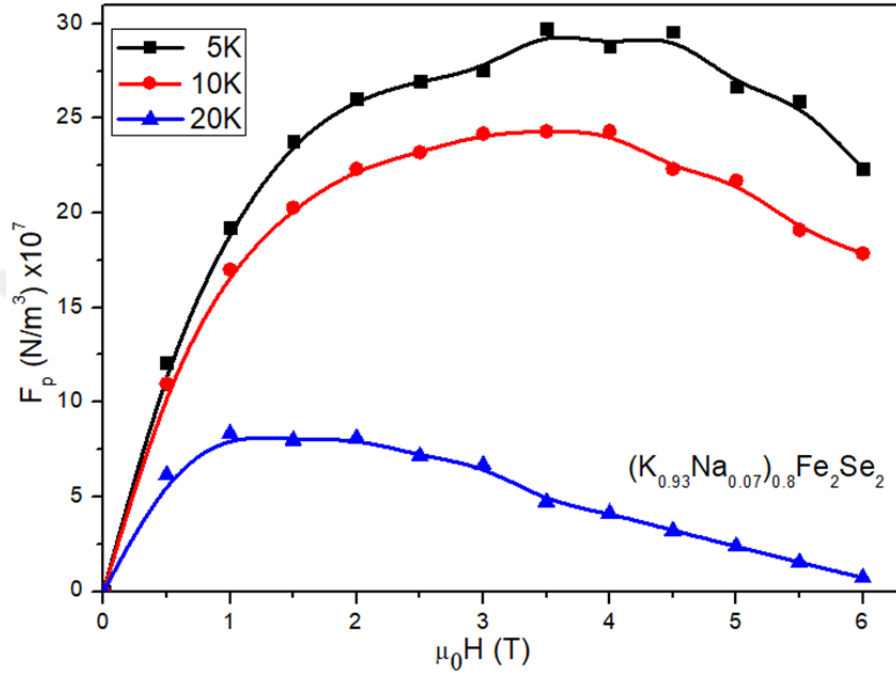
Örneğin Kritik Akım Yoğunluğu ( $J_c$ ) Denklem (4.1) kullanılarak hesaplanmıştır. Hesaplanan  $J_c$  değerleri sıfır alanda ve 5, 10 ve 20K'de sırasıyla  $2.78 \times 10^4$ ,  $2.59 \times 10^4$  ve  $1.71 \times 10^4 \text{ A/cm}^2$  olup Şekil 4.66'da gösterilmiştir.  $J_c$  değerleri, manyetik alan ve sıcaklığın artmasıyla azaldığı görülmektedir.



Şekil 4.66.  $(K_{0.93}Na_{0.07})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin kritik akım yoğunluğunun manyetik alana karşı grafiği

Kritik akım yoğunlukları kullanılarak örneğin hacimsel çivileme kuvvetleri 5, 10 ve 20K için Denklem (4.2) kullanılarak bulunabilir. Hesaplanan çivileme kuvvetleri,  $F_p$ , Şekil 4.67'de 5, 10 ve 20K için verilmiştir. Şekilden de görüleceği gibi sistemin çivileme kuvveti sıcaklıkla birlikte azalmıştır. Ayrıca çivileme kuvvetinin maksimum değerleri,  $F_{pmax}$ , sıcaklık arttıkça düşük alana doğru

kaymıştır. Bu da sistemde termal aktiviteli akı akışı (TAFF) davranışının etkin olduğunu gösterir.



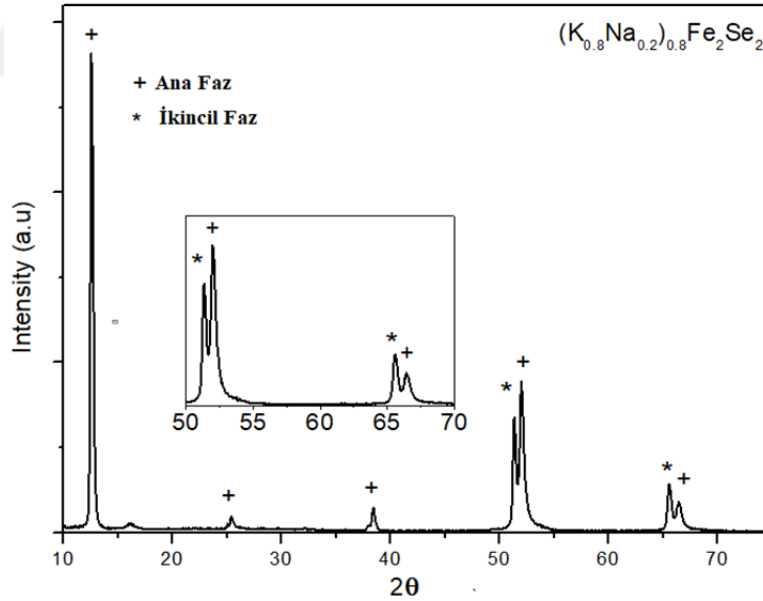
Şekil 4.67.  $(K_{0.93}Na_{0.07})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin çivileme kuvvetinin manyetik alana karşı grafiği

#### 4.3.3. $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$ Örneğinin Analiz Sonuçları

$(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$  tek kristali öz akı (self-flux) tekniğiyle hazırlanmıştır. İlk olarak  $Fe_{1.02}Se$  kristali hazırlanmıştır. Daha sonra bu kristale  $A:Fe_{1.02}Se=0.8:2$  ( $A = Na, K$ ) olacak şekilde Na ve K eklenerek  $K_{0.8}(Fe_{1.02}Se)_2$  ve  $Na_{0.8}(Fe_{1.02}Se)_2$  kristalleri hazırlanmıştır. Son olarak,  $K_{0.8}(Fe_{1.02}Se)_2$  ve  $Na_{0.8}(Fe_{1.02}Se)_2$  kristallerinden Na:K oranının 1:4 olacak şekilde alınıp  $1030^{\circ}C$ 'de 2 saat ısıtma işlemi uygulandıktan sonra  $700^{\circ}C$ 'ye kadar yavaşça soğutulup bu sıcaklıkta ani soğutma (quench) yapılarak  $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneği üretilmiştir. Örneğin karakterizasyonu için XRD, SEM-EDS ve PPMS kullanılmıştır.

**4.3.3.1.  $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$  Örneğinin XRD Analiz Sonuçları**

Şekil 4.68’de  $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin XRD desenleri verilmiştir. XRD ölçümleri, Cu hedeften gelen  $K\alpha$  ışınımı kullanılarak  $2^\circ \leq 2\theta \leq 80^\circ$  aralığında  $0.02^\circ$  artışlarla oda sıcaklığında yapılmıştır. XRD desenindeki gözlenen pikleri, ana faz ve ikincil faz olarak iki kısımda inceleyebiliriz. Burada ‘+’ ile etiketlenen ana faz, A=Na, K ya da Rb alkali metallere ve düzenli Fe boşluğundan oluşan  $A_2Fe_4Se_5$  yapısıdır. XRD deseninden  $2\theta = 12.4, 25.5, 38.3, 52.3$  ve  $66.4^\circ$  değerlerinde  $A_2Fe_4Se_5$  fazına ait karakteristik pikler görülebilir. Bu pikler sırasıyla (002), (004), (006), (008) ve (0010) düzlemlerindeki yansımaya karşılık gelir. Bu fazın kristal yapısı tetragonal yapıdaki  $I4/mmm$  uzay grubuna ait  $ThCr_2Si_2$  tipindedir. Ayrıca (001) tipi düzlemlerin yapıda hâkim olması kristal yüzeyinin  $c$  eksenine dik olduğunu gösterir. Örneğin örgü parametreleri  $a = 3.8594 \text{ \AA}$  ve  $c = 14.1852 \text{ \AA}$  olarak hesaplanmıştır.



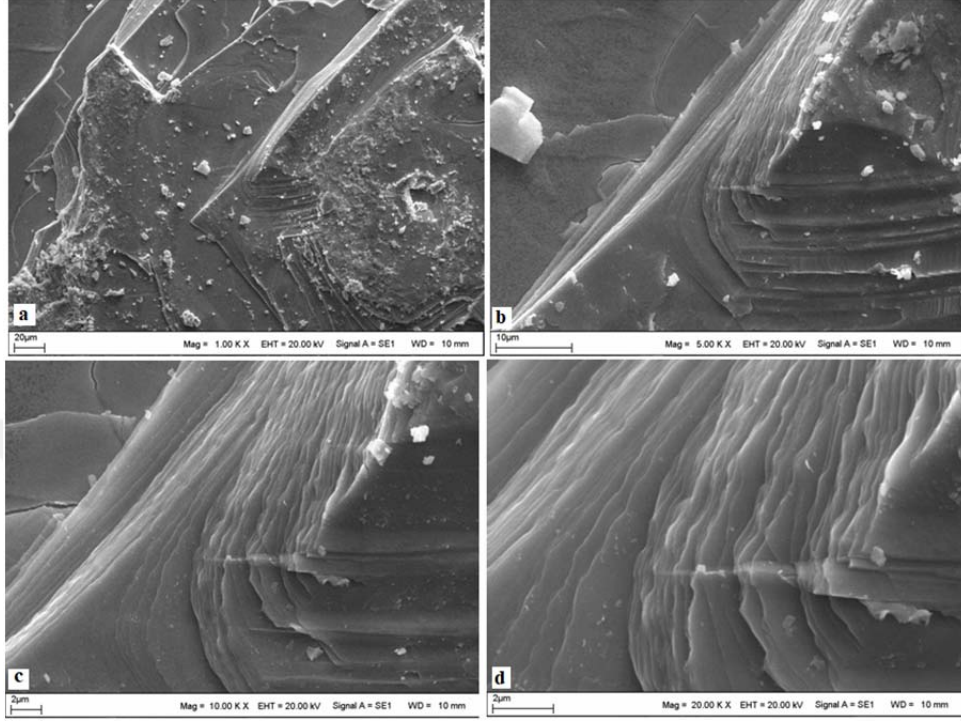
Şekil 4.68.  $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$  Örneğinin XRD desenleri



Diğer taraftan ‘\*’ ile etiketlenen ve ikincil faz olarak isimlendirdiğimiz piklerin süperiletkenlik fazına ait olduğu düşünülmektedir. Bu pikler incelendiğinde dikkat çeken durum,  $2\theta = 51.4^\circ$  açı değerindeki süperiletkenlik pik şiddetiyle  $A_2Fe_4Se_5$  antiferromanyetik faza ait (008) düzleminde yansıyan pik şiddetinin birbirine yakın olduğu ve  $2\theta = 65.6^\circ$  açı değerindeki süperiletkenlik pik şiddetinin  $A_2Fe_4Se_5$  fazına ait (0010) düzlemine ait pik şiddetinden fazla olduğu görülmektedir. Bu durum  $(K_{0.95}Na_{0.05})_{0.8}Fe_2Se_2$  ve  $(K_{0.93}Na_{0.07})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneklerine göre farklılık arz etmektedir.  $(K_{0.95}Na_{0.05})_{0.8}Fe_2Se_2$  ve  $(K_{0.93}Na_{0.07})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneklerindeki antiferromanyetik pik şiddeti süperiletkenlik pik şiddetlerinden çok daha yüksek bulunmuştu. Denklem (4.3) yardımıyla sistem içerisindeki süperiletkenlik hacmin oranı yaklaşık % 19.1 olarak hesaplanmıştır.  $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğindeki süperiletkenlik oran diğer örneklerine göre artış göstermiştir. Bu açıdan bakıldığında 0.2 oranındaki Na katkılması, 0.05 ve 0.07 oranlarındaki Na katkılarına göre süperiletkenlik fazının artırması açısından daha uygundur. Ayrıca 0.2 oranındaki Na katkılması diğer katkılama miktarlarındaki gibi sisteme dâhil olmuş ve safsızlık piki oluşturmamıştır.

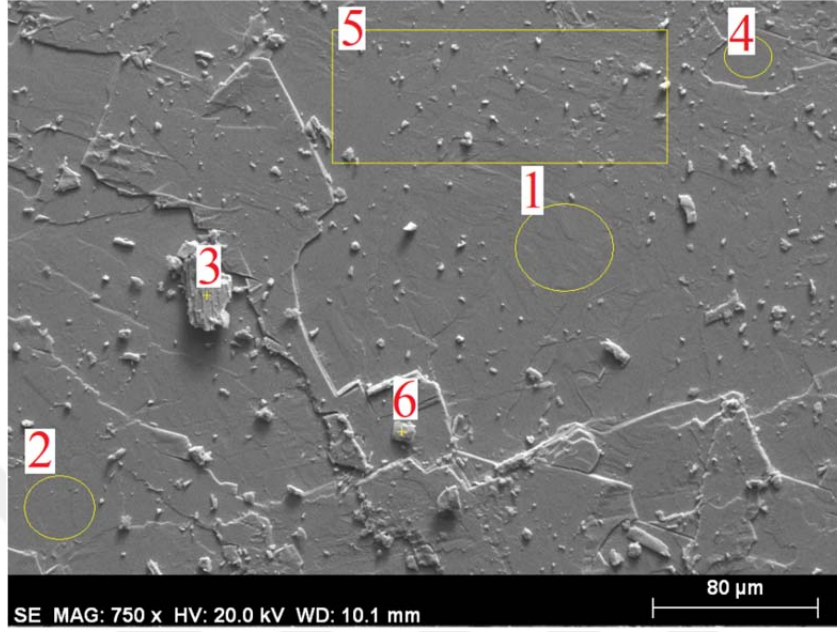
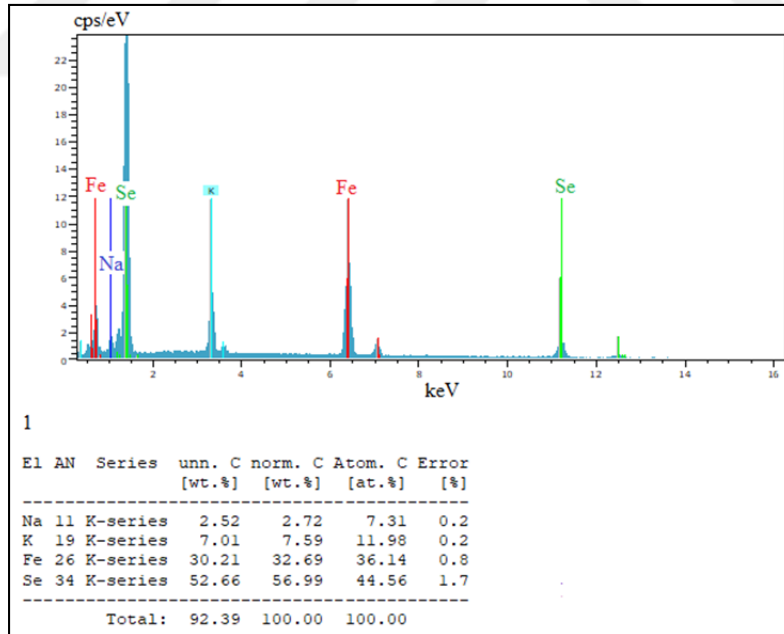
#### 4.3.3.2. $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$ Örneğinin SEM ve EDS Analiz Sonuçları

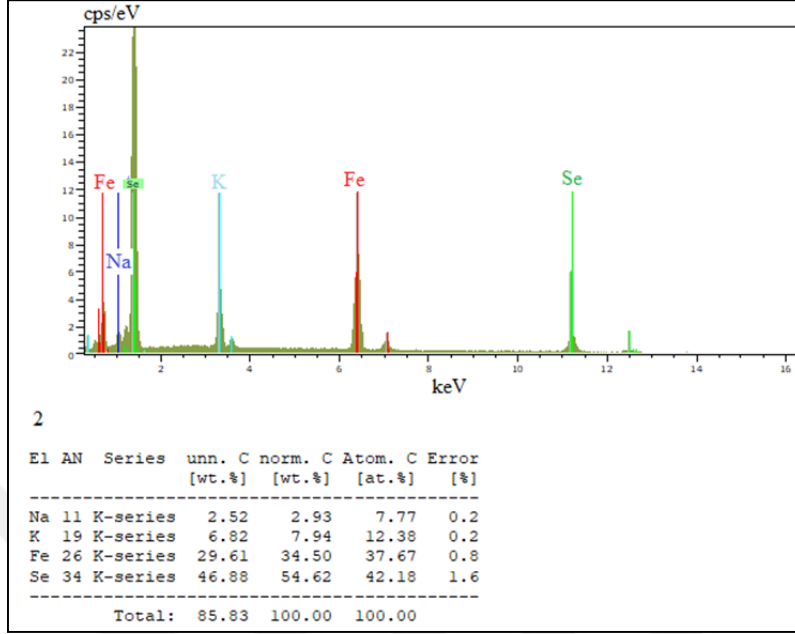
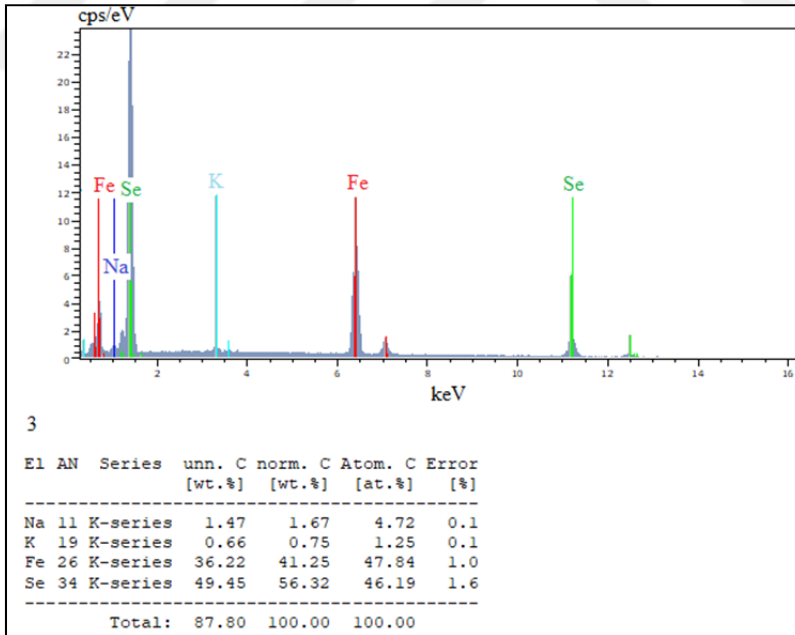
$(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin yüzey morfolojisi ve kompozisyonunu SEM-EDS tekniği kullanılarak incelendi. Şekil 4.69a-d’de örneğe ait, ikincil modta (SE) ve 1.00, 5.00, 10.00 ve 20.00 KX büyütme oranlarında alınan SEM görüntüleri verilmiştir.

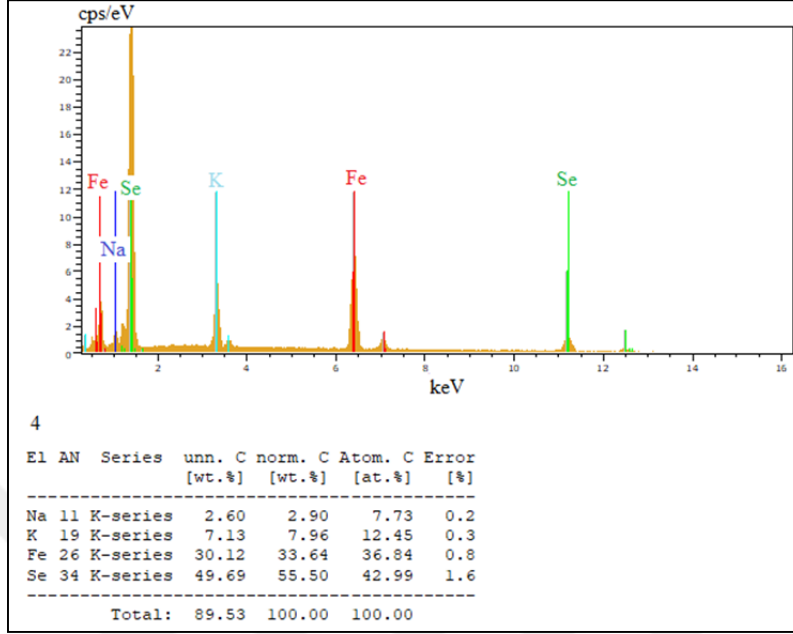
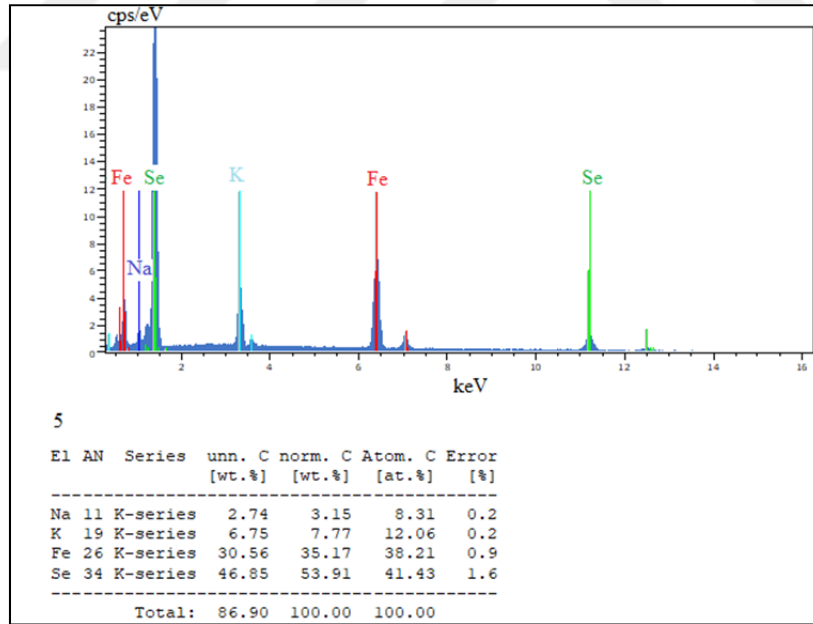


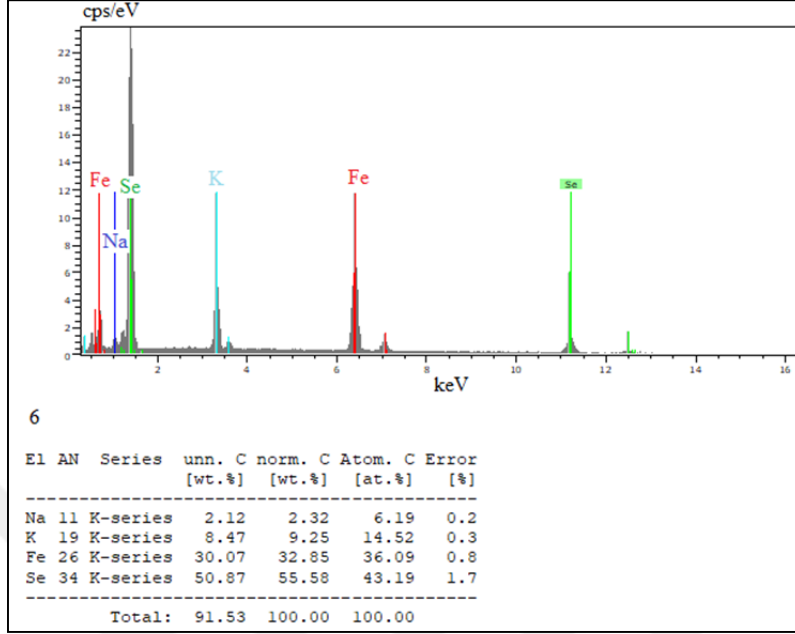
Şekil 4.69.  $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin a) 1.00 KX, b) 5.00 KX, c) 10.00 KX ve d) 20.00 KX büyütmelemlerde alınan SEM görüntüleri

SEM görüntülerinden örneğin ardışık tabak benzeri yapılardan oluştuğu gözlenebilir. Bu düzlemler kristaldeki ab-düzlemlerine denk gelir. SEM ölçümleri için örnek hazırlanırken örneğin ab düzlemi boyunca kolayca kesildiği c ekseni boyunca da çok zor kesildiği görülmüştür. 20.00 KX büyütmede alınan  $2\mu m$ -ölçekli SEM görüntüsü incelendiğinde tabak benzeri yapıların eni ve boyu olan ama kalınlığı olmayan gerçek anlamda ideal düzlem yapısına benzediği söylenebilir. Örneğin kompozisyonlarının belirlenmesi için SEM'e bağlı EDS kullanılmıştır.  $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneği için EDS analizinde kullanılan bölgeler Şekil 4.70'deki SEM fotoğrafında verilirken bu bölgelerdeki EDS sonuçları ve yüzde atomik oranları Şekil 4.71-76'da sırasıyla verilmiştir.

Şekil 4.70.  $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneği için EDS analizinde kullanılan bölgelerŞekil 4.71.  $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneği için seçilen 1. bölgenin EDS analizi

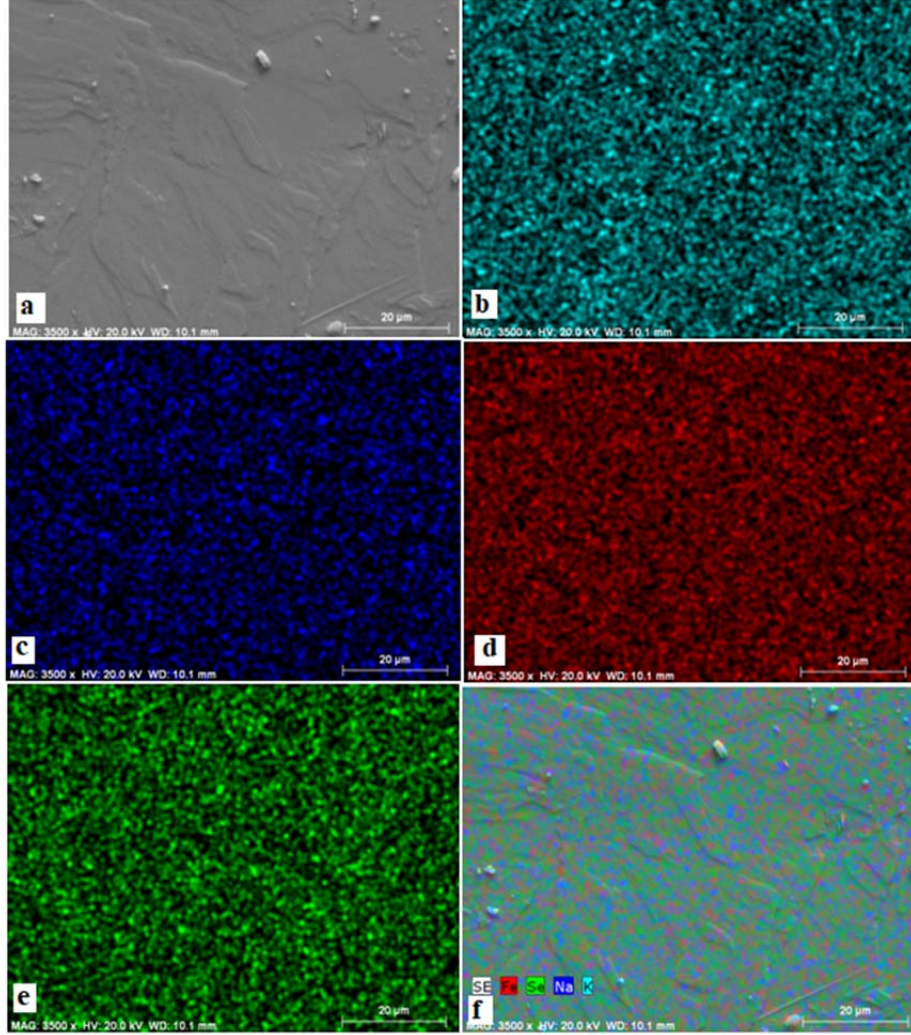
Şekil 4.72.  $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneği için seçilen 2. bölgenin EDS analiziŞekil 4.73.  $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneği için seçilen 3. bölgenin EDS analizi

Şekil 4.74.  $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneği için seçilen 4. bölgenin EDS analiziŞekil 4.75.  $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneği için seçilen 5. bölgenin EDS analizi



Şekil 4.76.  $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneği için seçilen 6. bölgenin EDS analizi

Örneğin EDS analizi incelendiğinde reaksiyonda kullanılan K, Na, Fe ve Se dışında safsızlık diyebileceğimiz başka elementlere ait spektrum gözlenmemiştir. Reaksiyonda kullanılan elementler ise örnek boyunca homojen olarak dağılmış olup  $K_2Se$  ya da  $Na_2Se$  gibi faz bölgeleri oluşmamıştır. SEM fotoğraflarından görüldüğü gibi örnek yüzeyinde toz şeklinde olan yer yer küçük kümelenmeler oluşmuştur. Bu kümelenmelerinin de kompozisyonun belirlenmesi için 3.ve 6. bölgeler de analize dâhil edilmiştir. Sadece 3. bölgenin EDS analizi incelendiğinde K ve Na miktarları çok düşük kalmış ve FeSe fazının hâkim olduğu gözlenmiştir. 6. Bölgenin kompozisyonu ise  $(K_{0.87}Na_{0.37})_{0.8}Fe_{1.73}Se_{2.07}$  olarak belirlenmiştir. 3. bölge dışındaki diğer bölgelerin EDS ortalaması alınarak örneğin kompozisyonu  $(K_{0.76}Na_{0.45})_{0.8}Fe_{1.77}Se_{2.05}$  olarak belirlenmiştir.  $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$  nominal duruma göre K ve Fe değeri azalmış Na ve Se değerleri de artmıştır.



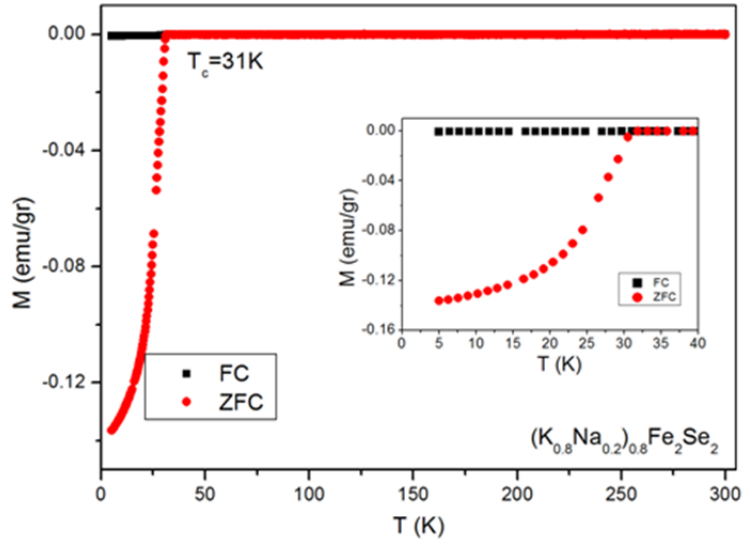
Şekil 4.77.  $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$  için EDS nokta haritalaması a) Noktalama yapılan bölgenin 5.0KX SEM görüntüsü, b) K nokta haritalaması, c) Na nokta haritalaması, d) Fe nokta haritalaması, e) Se nokta haritalaması, f) K, Na, Fe ve Se için toplu nokta haritalaması.

Elementlerin örnek içerisindeki dağılımının incelenmesi için EDS nokta haritalaması yapılmıştır. Şekil 4.77’de noktalama yapılan bölgenin 5.0KX SEM görüntüsünün yanında her bir elementin nokta haritalaması ve örneği oluşturan tüm

elementlerin nokta haritalaması bir arada verilmiştir. Haritadan Fe, Se, K ve Na elementlerinin örnek yüzeyi boyunca homojen olarak dağıldığı görülebilir.

#### 4.3.3.3. $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$ Örneğinin Manyetik Ölçüm Sonuçları

$(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$  kristalinin 10 Oe alan altında alınan sıfır alan soğutmalı (ZFC) ve alan soğutmalı (FC) sıcaklığa bağlı manyetizasyon eğrileri Şekil 4.78’de verilmiştir. ZFC eğrisinden görüldüğü gibi örnek 31 K’de çok keskin bir süperiletkenlik geçiş göstermiştir. Diyamanyetizmaya keskin geçiş bulk süperiletkenliğin varlığını ve yüksek kristal kalitesini gösterir. Süperiletkenlik geçiş sıcaklığın üstündeki normal durum sıcaklıklarında ZFC ve FC eğrileri sıcaklıktan bağımsız olarak düz bir meyil seyretmiştir. Bu durum örneğin Pauli paramagnet olduğunu gösterir. Ayrıca Şekil 4.78’in iç grafiğinde görüldüğü gibi ZFC eğrisi 5 K civarında 0.14 emu/gr doyum değerine doğru meyletmiştir.

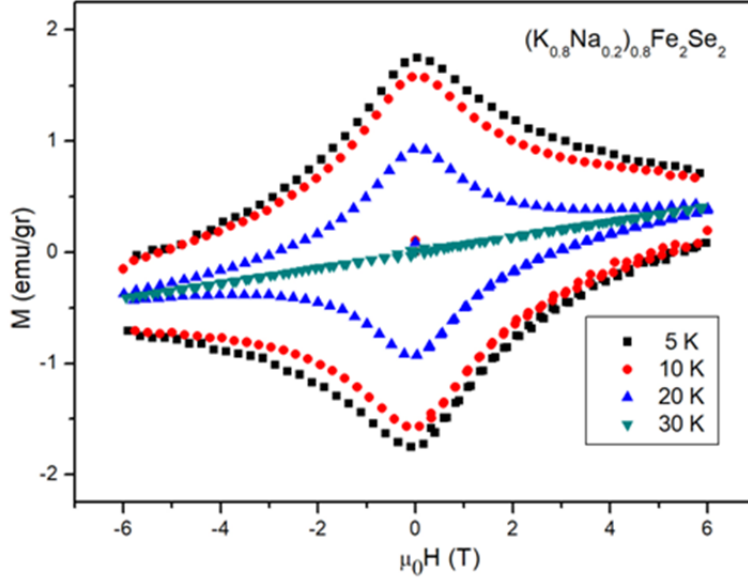


Şekil 4.78.  $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin  $M-T$  eğrisi

Şekil 4.79’da  $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$  kristalinin  $\mp 6T$  manyetik alan aralığında ve 5, 10, 20 ve 30 K sıcaklıklarında alınan  $M-H$  eğrisi gösterilmektedir. Eğriden ilk

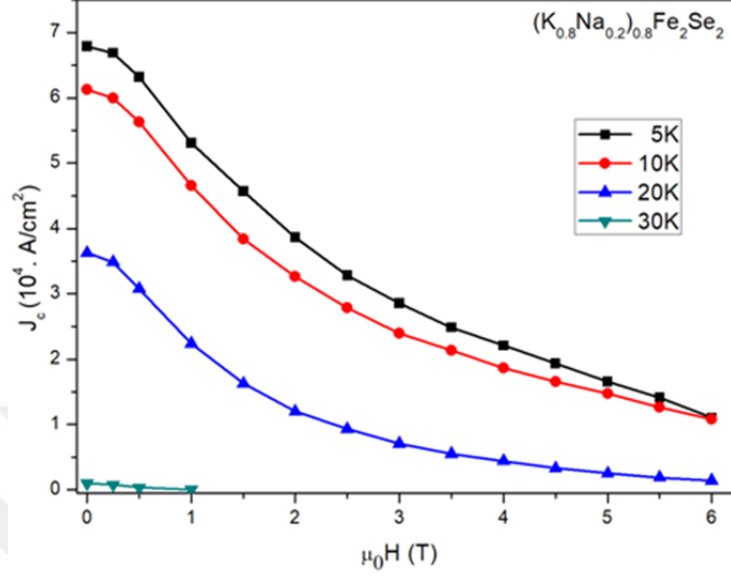


göze çarpan durum 5, 10 ve 20 K sıcaklıklarında örneğin karakteristik II. tip süperiletken davranış sergilemesidir. Ayrıca  $M-H$  eğrilerinin bu sıcaklıklarda simetrik olması bulk tipi çivilemenin manyetik alanın giriş ve çıkışını kontrol ettiğini gösterir (Ozaki ve ark, 2012). Sıcaklığın artmasıyla birlikte histerezis eğrilerinin alanı azalmış ve 30 K'de yumuşak ferromanyetik tipi bir davranış ortaya çıkmıştır. Bu davranış ortaya çıkmadan önce örnek,  $\mp 1T$  aralığında zayıf histerezis davranışı göstermiştir. Bu bağlamda örneğin üst kritik manyetik alanı,  $H_{c2}$ , 30K'de 1T civarındadır. Buna ek olarak 5, 10, 20K sıcaklıklarında  $M-H$  eğrisi birbiriyle çakışmadığı için bu sıcaklıklarda  $H_{c2}$  değeri uygulanan 6T değerinden daha yüksektir. Manyetizasyonun doğrusallıktan sapmaya başladığı ve vortekslerin oluştuğu düşük kritik alan değerleri,  $H_{c1}$ , 5, 10, 20 ve 30 K sıcaklıklarında sırasıyla 0.205, 0.188, 0.166 ve 0.024T olarak belirlenmiştir. Öte yandan, sistemdeki akı tuzaklanmasını göstermesi açısından önemli olan sıfır alandaki manyetizasyon değerleri 5,10 ve 20K için sırasıyla 1.77, 1.57 ve 0.95 emu/gr olarak ölçülmüştür. Dolayısıyla sistemin akı tuzaklama yeteneği sıcaklığın artmasıyla azalmıştır.



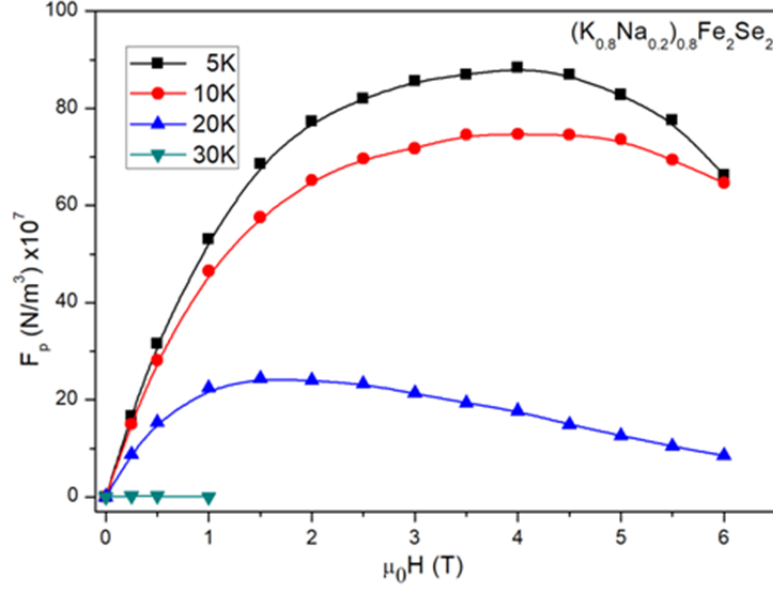
Şekil 4.79.  $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin  $M$ - $H$  eğrisi

Bean'ın kritik durum yoğunluğu kullanılarak  $M$ - $H$  eğrilerinden örneğin kritik akım yoğunluğu,  $J_c$ , Denklem (4.1)'den hesaplanabilir. Hesaplanan  $J_c$  değerleri sıcaklığın artmasıyla azalmış olup Şekil 4.80'deki grafikte verilmiştir. Özellikle, 5K'de hesaplanan  $J_c$ ,  $6.7 \times 10^4$  A/cm<sup>2</sup> olarak bulunmuştur. Bu değer  $(K_{0.93}Na_{0.07})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinden yaklaşık 2.5 kat ve  $(K_{0.95}Na_{0.05})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinden yaklaşık 250 kat daha yüksektir. Bu çerçevede, 0.2 oranındaki Na katkılması, 0.05 ve 0.07 oranındaki Na katkılarlarına göre  $J_c$  oranını artırması açısından daha uygundur.



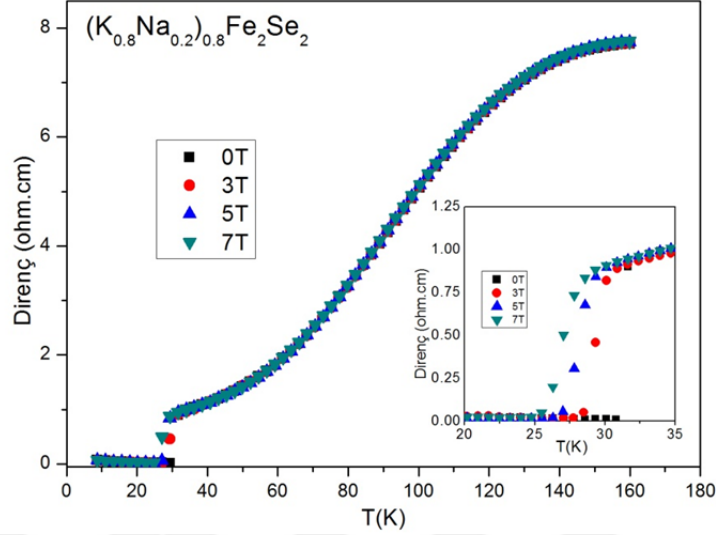
Şekil 4.80.  $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin kritik akım yoğunluğunun manyetik alana karşı grafiği

Kritik akım değerleri kullanılarak birim hacimdeki vorteks örgüsü ile çivileme merkezleri arasındaki etkileşimin bir ölçüsü olan hacimsel çivileme kuvveti  $F_p$ 'yi Denklem (4.2) yardımıyla hesaplayabiliriz. Hesaplanan çivileme kuvvetleri,  $F_p$ , Şekil 4.81'de 5, 10, 20 ve 30 K için verilmiştir. Daha önceki örneklerde olduğu gibi termal aktiviteli akı akışı (TAFF) davranışından dolayı sistemin çivileme kuvveti sıcaklıkla birlikte azalmıştır. Ayrıca çivileme kuvvetinin maksimum değerleri,  $F_{pmax}$ , sıcaklık artıkça düşük alana doğru kaymıştır.



Şekil 4.81.  $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin çivileme kuvvetinin manyetik alana karşı grafiği

Bilindiği gibi II.tip süperletkenlerde düşük kritik alan,  $H_{c1}$ , değeri üstündeki manyetik alanlarda manyetik akı çizgileri dediğimiz girdaplar (vorteksler) mevcuttur. Örnek içerisinde akım geçtiğinde Lorentz kuvvetinden dolayı bu girdaplar hareket ederek bir elektrik alan ve elektriksel direncin oluşmasına sebep olur. Girdap hareketlerinin kısıtlayan mekanizmalar örnek içerisindeki çivileme merkezleridir. Farklı manyetik alan altında direnç ölçümleri (magnetodirenç) örnek içerisindeki akı hareketi ve akı çivilemesi hakkında önemli bilgiler sağlar. Bu bağlamda  $(K_{0.93}Na_{0.07})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin magnetodirenç ölçümleri 0, 3, 5 ve 7 T için yapılmış olup Şekil 4.82’de verilmiştir.

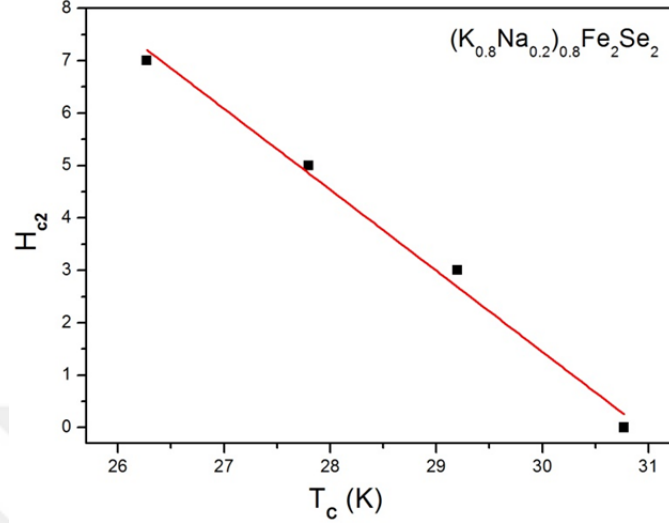


Şekil 4.82.  $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin magneto-direnç eğrisi

Şekil incelendiğinde, manyetik alanın artmasıyla direnç sıcaklık eğrisinin genişlediği ve  $T_c$  değerlerinin düşük sıcaklıklara doğru kaydığı görülebilir. Manyetik alanın olmadığı durumda  $T_c = 30.77$  K iken manyetik alan 7 T olduğunda  $T_c$  değeri 26.27 K civarına kadar düşmektedir. Magnetodirenç eğrisi kullanılarak farklı manyetik alanlardaki  $T_c$  belirlenerek Şekil 4.83'teki üst kritik alan  $H_{c2}$  sıcaklık bağımlılığı grafiği çıkarılabilir. Üst kritik alanın  $T=0$  K'deki değeri  $H_{c2}(0)$ , aşağıda verilen, Werthamer-Helfond-Hohenberg (WHH) formülü kullanılarak hesaplanabilir.

$$H_{c2}(0) = -0.693 T_c \left( \frac{dH_{c2}(0)}{dT} \right)_{T_c} \quad (4.4)$$

Burada  $\frac{dH_{c2}(0)}{dT}$  ifadesi Şekil 4.83'deki doğrunun eğimi olarak alınabilir. Bu formülden  $H_{c2}(0)$  ifadesi 33 Tesla olarak hesaplanır.



Şekil 4.83.  $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin üst kritik alan,  $H_{c2}$ , sıcaklık bağımlılığı

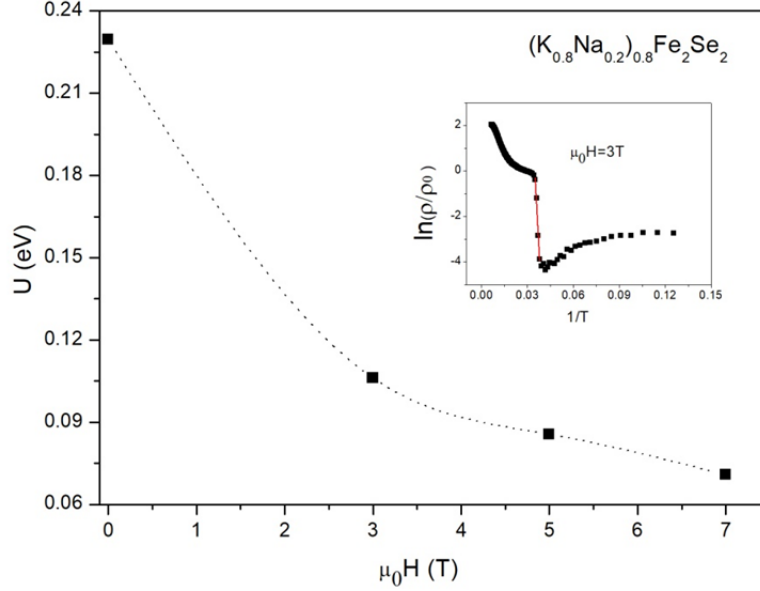
$H_{c2}(0)$  ifadesi belirlendikten sonra Ginzburg-Landau uyum uzunluğu,  $\xi$ , aşağıdaki eşitlik yardımıyla hesaplayabiliriz.

$$H_{c2}(0) = \Phi_0 / 2\pi\xi^2 \quad (4.5)$$

Burada,  $\Phi_0$ , manyetik alan akı quantum değeri olup değeri  $2.07 \times 10^{-15} \text{ Tm}^2$  olarak verilir. Bu denklem kullanılarak Ginzburg-Landau uyum uzunluğu 3.16 nm olarak hesaplanmıştır. Manyetik alan altındaki direnç eğrilerinin davranışı termal aktiviteli akı akışı (TAFF) modeliyle açıklanabilir. Bu modelde örneğin direnç ifadesi:

$$\rho(H, T) = \rho_0 \exp [-U(H)/k_B T] \quad (4.6)$$

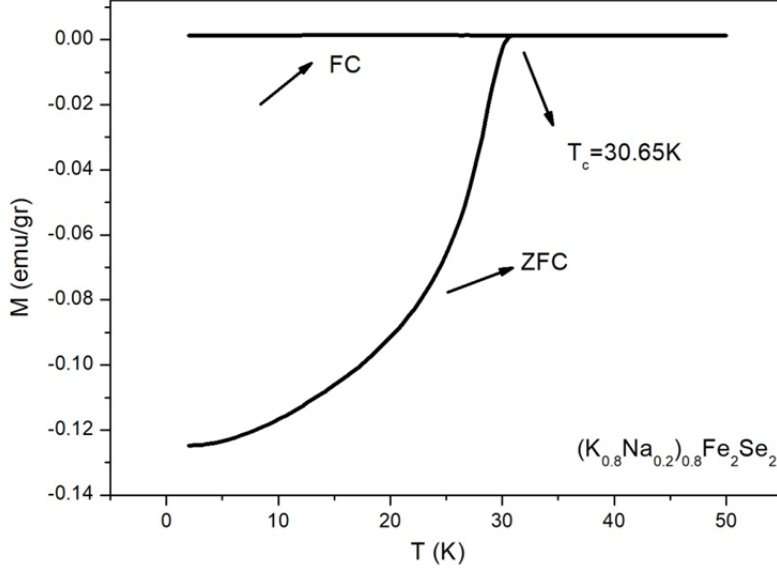
ile verilir. Burada  $U$ , akı çivileme enerjisi ya da aktivasyon enerjisi olarak adlandırılır.  $U$  değeri,  $\ln(\rho/\rho_0)$ 'in  $1/T$ 'ye karşı çizilen grafiğini eğiminden bulunmuş olup Şekil 4.84'ün iç kısmında verilmiştir.



Şekil 4.84.  $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin akı çivileme enerjisi manyetik alan grafiği

Şekil 4.84 incelendiğinde manyetik alanın artmasıyla birlikte örneğin çivileme enerjisinin düştüğü görülebilir. Manyetik alanın olmadığı durumda  $U$  değeri 0.23 eV iken manyetik alanın 7 T olduğu durumda 0.07 eV değerine kadar düşmektedir.

Burada ilginç olan durum magnetodirenç ölçümlerinin örnek hazırlandıktan iki yıl sonra yapılmış olmasıdır. İki yıl geçmesine rağmen örnekteki süperiletken faz bozulmamış olup geçiş sıcaklığı sıfır alanda 31 K civarında olduğu gözlenmiştir. Örnekteki süperiletkenlik fazın kararlı durumu manyetizasyon sıcaklık ölçümlerinde de (Şekil 4.85) gözlenmiş ve 31 K'deki süperiletkenlik geçiş korunmuştur. Örnekler bu süre zarfında glove box içerisinde tutulmuştur. Bu ölçümler  $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$  sistemindeki süperiletkenlik fazın,  $H_2O-O_2$  içeriğinin 0.1 ppm civarında olduğu ortamlarda kararlı olduğunu ve yaşlanma etkisinin olmadığını gösterir.



Şekil 4.85.  $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin iki yıl sonra ölçümü alınan  $M-T$  eğrisi

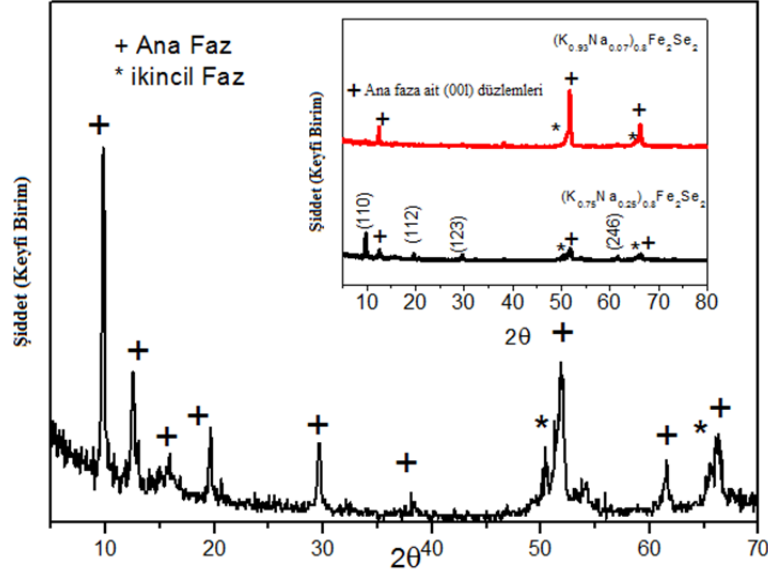
#### 4.3.4. $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$ Örneğinin Analiz Sonuçları

$(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$  tek kristali de  $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğindeki basamaklar takip edilerek üretilmiştir. Burada farklı olarak Na miktarı artırılıp Na:K oranı, 1:3 olarak alınmıştır. Elde edilen kristallerin karakterizasyonu için XRD, SEM-EDS ve PPMS kullanılmıştır.

##### 4.3.4.1. $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$ Örneğinin XRD Analiz Sonuçları

$(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin XRD sonuçları Şekil 4.86'da verilmiştir. XRD ölçümü, Cu hedeften gelen  $K\alpha$  ışınımı kullanılarak  $2^\circ \leq 2\theta \leq 80^\circ$  aralığında  $0.02^\circ$  artışlarla oda sıcaklığında yapılmıştır.





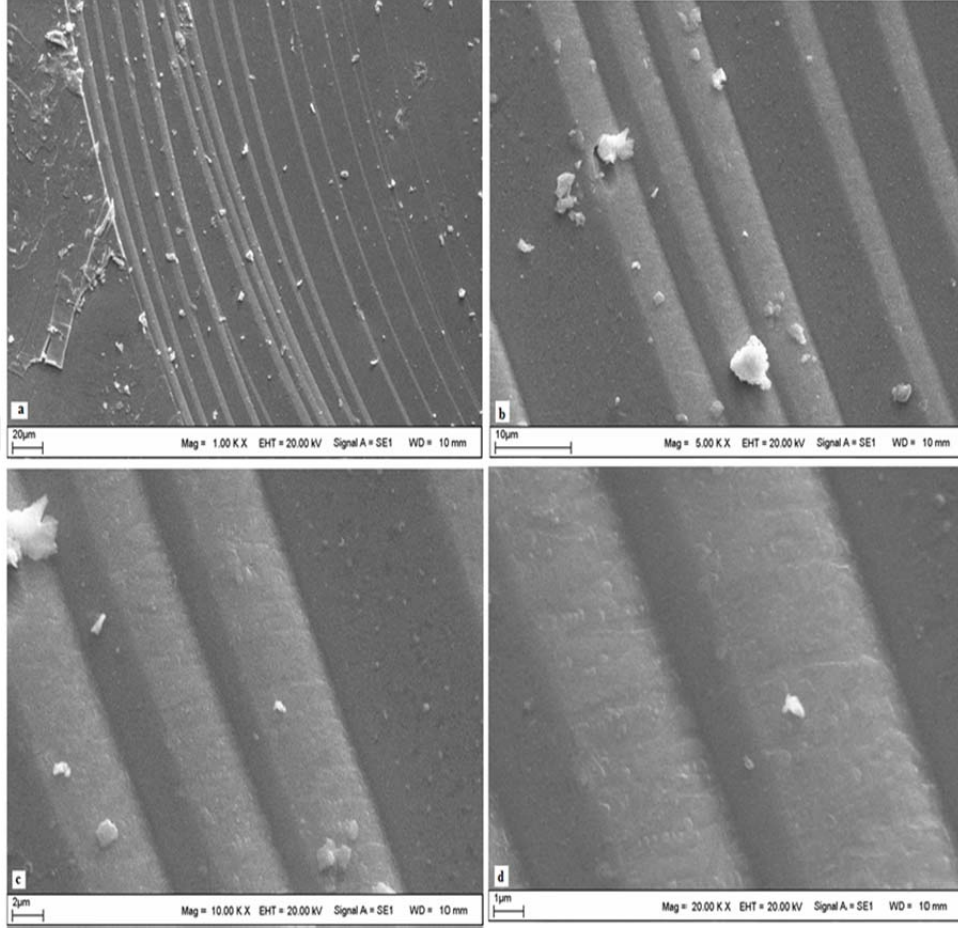
Şekil 4.86.  $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$  Örneğinin XRD desenleri

XRD desenindeki gözlenen pikleri, ana faz ve ikincil faz olarak iki kısımda inceleyebiliriz. Burada '+' ile etiketlenen ana faz,  $A=Na, K$  ya da  $Rb$  alkali metallere ve düzenli  $Fe$  boşluğundan oluşan antiferromanyetik  $A_2Fe_4Se_5$  fazıdır. Diğer taraftan '\*' ile etiketlenen ikincil fazın ise süperiletkenlik fazına ait olduğu düşünülmektedir.  $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinde dikkat çeken durum  $A_2Fe_4Se_5$  fazına ait yansımaların diğer örnekler göre artmış olmasıdır. Bu durum Şekil 4.86'nın iç kısmında  $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$  ve  $(K_{0.93}Na_{0.07})_{0.8}Fe_2Se_2$  XRD desenlerinin bir arada verilmesiyle daha iyi anlaşılabilir.  $(K_{0.93}Na_{0.07})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinde  $A_2Fe_4Se_5$  fazına ait  $(00l)$  düzlemlerine ait yansımalar gözlenirken,  $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinde ise bu düzlemlere ek olarak  $(123)$  gibi  $(00l)$  tipinde olmayan düzlemlere ait yansımaların da arttığı gözlenmiştir. Ayrıca tüm yansımaların da şiddeti  $(K_{0.93}Na_{0.07})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğine göre azalmıştır. Buradan  $0.25$  oranındaki  $Na$  katkılanması sistemin kristal kalitesini olumsuz etkilemiş olabileceğini söyleyebiliriz. Örneğin örgü parametreleri ise  $a = 3.9130 \text{ \AA}$  ve  $c = 14.0571 \text{ \AA}$  olarak hesaplanmıştır. Ayrıca Denklem (4.3) yardımıyla sistem

içerisindeki süperiletkenlik hacmin oranı yaklaşık %10 olarak hesaplanmıştır. Bu değer  $(K_{0.93}Na_{0.07})_{0.8}Fe_2Se_2$  ve  $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneklerine göre daha düşüktür.

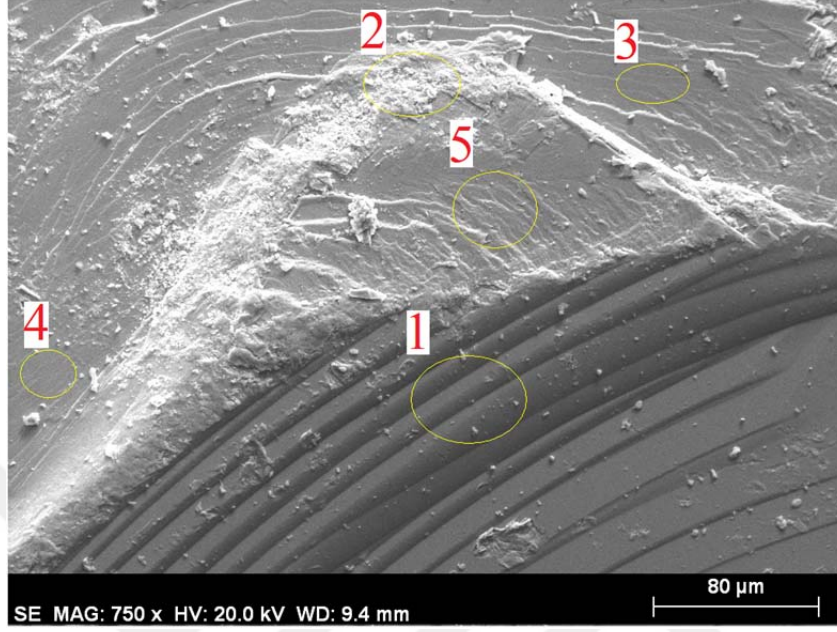
#### 4.3.4.2. $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$ Örneğinin SEM ve EDS Analiz Sonuçları

$(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin yüzey morfolojisi ve kompozisyonu SEM-EDS tekniği kullanılarak incelendi. Şekil 4.87a-d’de örneğe ait, ikincil modta (SE) ve 1.00, 5.00, 10.00 ve 20.00 KX büyütme oranlarında alınan SEM görüntüleri verilmiştir. SEM görüntüleri incelendiğinde örnekte traverten tipi katmanların üst üste istiflendiği gözlenir. Bu yapılar  $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinden farklı olarak eni ve boyunun yanında kesitin de azımsanmayacak şekilde büyüdüğü 10.00 ve 20.00 KX SEM görüntülerinden görülebilir. XRD sonuçlarında gözlenen (123) gibi (00l) tipinde olmayan düzlemlerin artması bu duruma sebep olduğu düşünülebilir.

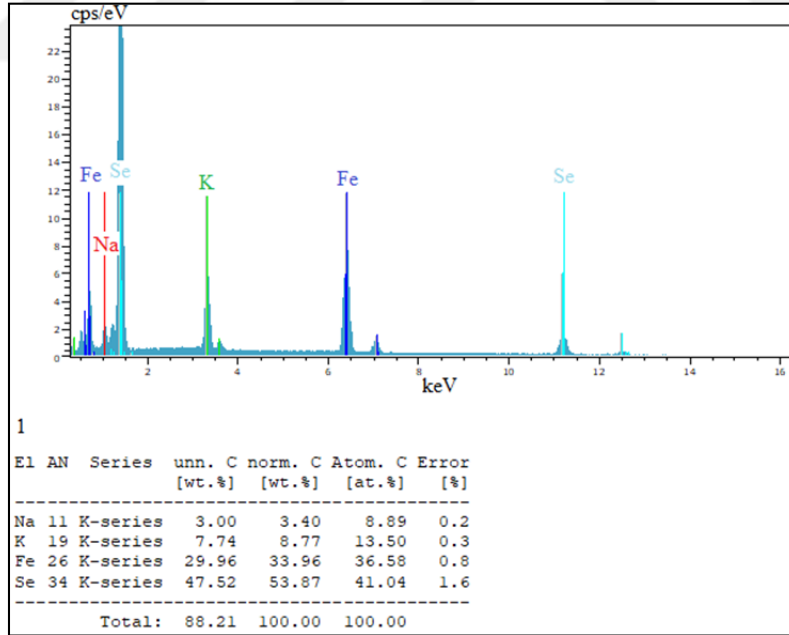


Şekil 4.87.  $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin a) 1.00 KX, b) 5.00 KX, c) 10.00 KX ve d) 20.00 KX büyütmelerde alınan SEM görüntüleri

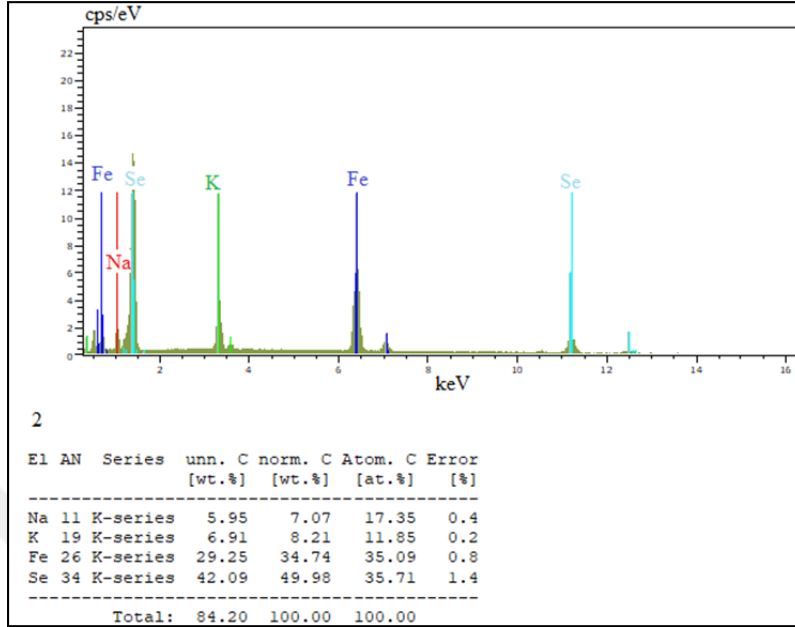
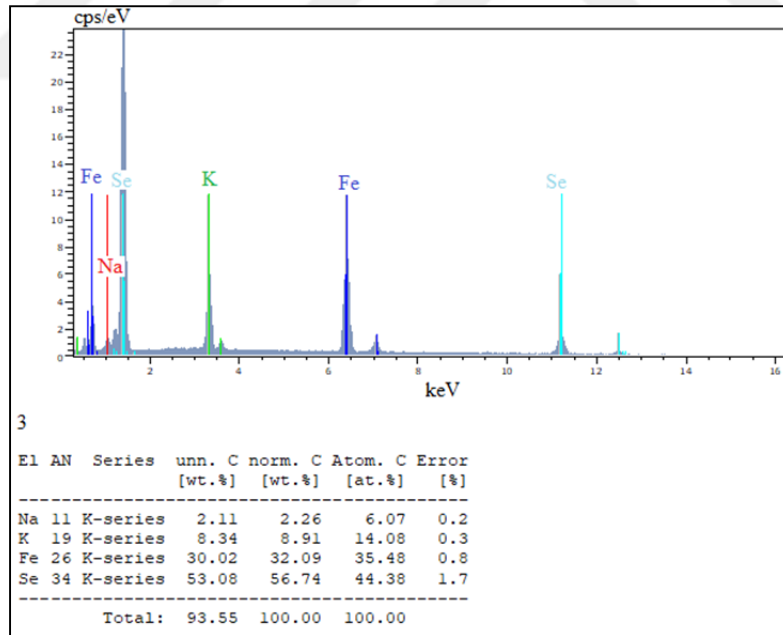
Örneğin elementel analizleri SEM'e bağlı EDS ile incelenmiştir.  $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneği için EDS analizinde kullanılan bölgeler Şekil 4.88'deki SEM fotoğrafında verilmiştir. Seçilen beş bölgedeki elementlerin EDS sonuçları ve yüzde atomik oranları Şekil 4.89-93'de sırasıyla verilmiştir.

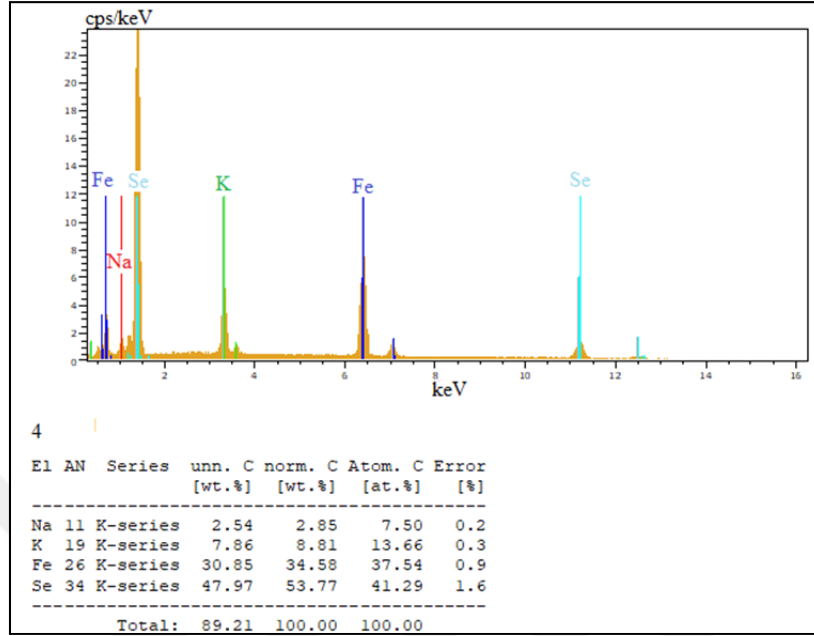
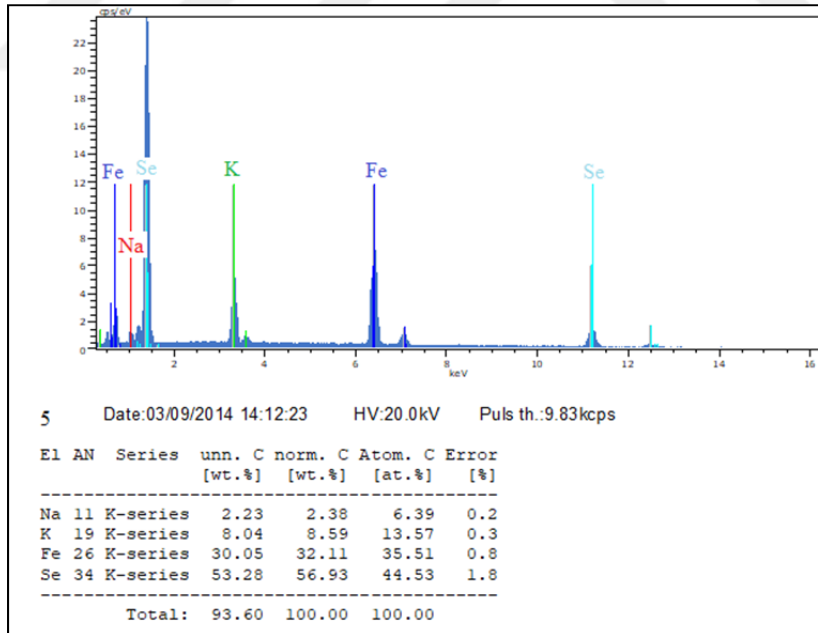


Şekil 4.88.  $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneği için EDS analizinde kullanılan bölgeler

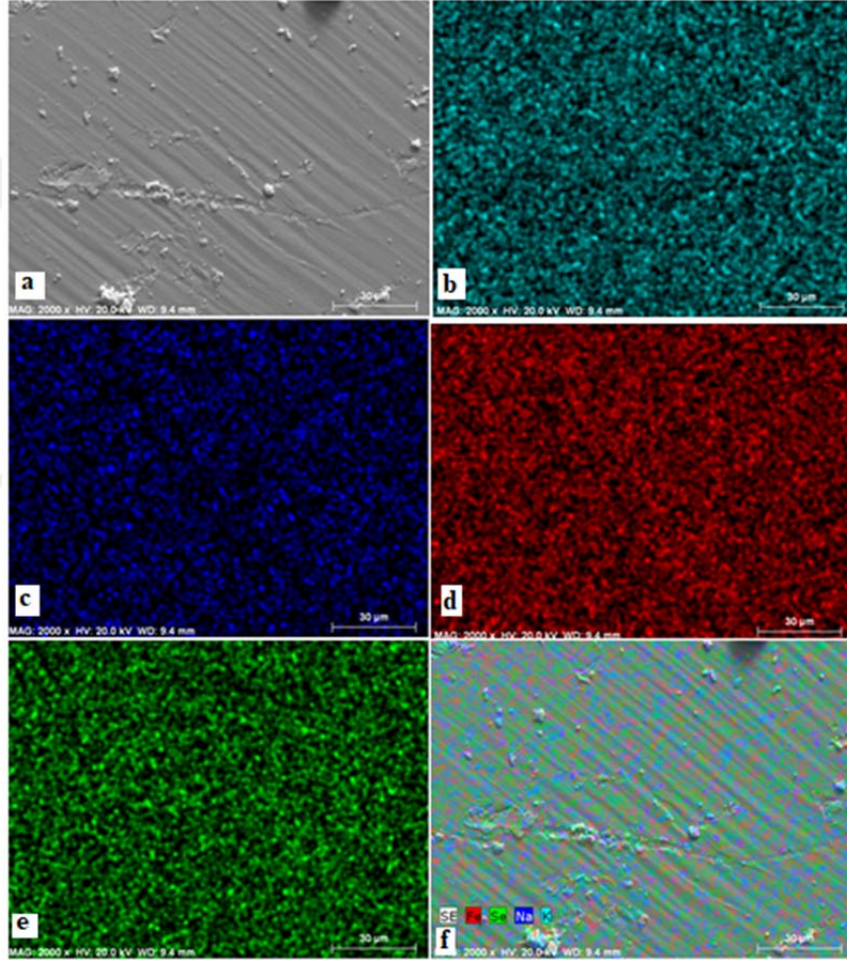


Şekil 4.89.  $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneği için seçilen 1. bölgenin EDS analizi

Şekil 4.90.  $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneği için seçilen 2. bölgenin EDS analiziŞekil 4.91.  $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneği için seçilen 3. bölgenin EDS analizi

Şekil 4.92.  $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneği için seçilen 4. bölgenin EDS analiziŞekil 4.93.  $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneği için seçilen 5. bölgenin EDS analizi

EDS analizleri incelendiğinde, K, Na, Fe ve Se dışında başka safsızlık diyebileceğimiz elementlerin spektrumları gözlenmemiştir. EDS analizinde kullanılan beş bölgenin spektrumlarının ortalaması alınarak örneğin kompozisyonu  $(K_{0.80}Na_{0.56})_{0.8}Fe_{1.73}Se_{1.99}$  olarak belirlenmiştir. Başlangıç stokiyometrisine göre K ve Na değerleri artmış Fe değeri ise azalmıştır. Ayrıca  $K_2Se$  ya da  $Na_2Se$  ikili fazlara ait bölgelere rastlanılmamıştır.



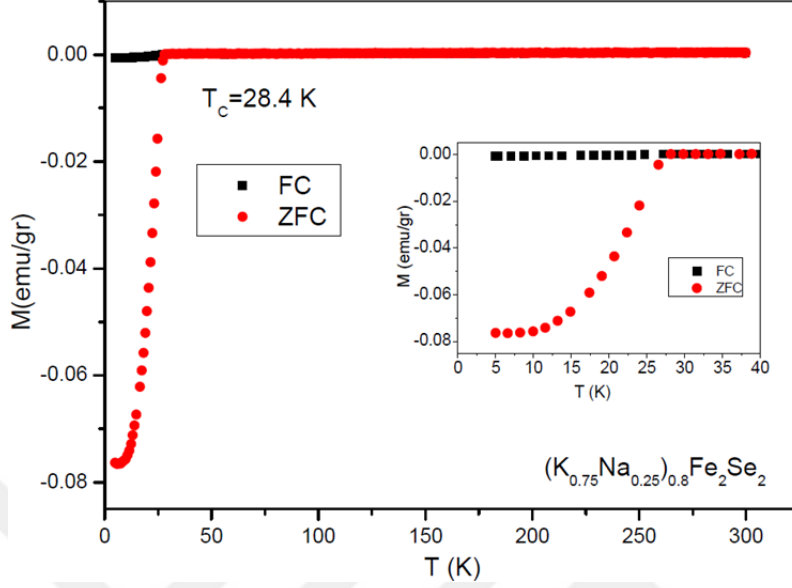
Şekil 4.94.  $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$  için EDS nokta haritalaması a) Noktalama yapılan bölgenin 5.0KX SEM görüntüsü, b) K nokta haritalaması, c) Na nokta haritalaması, d) Fe nokta haritalaması, e) Se nokta haritalaması, f) K, Na, Fe ve Se için toplu nokta haritalaması

Elementlerin örnek içerisindeki dağılımının incelenmesi için EDS nokta haritalaması yapılmıştır. Şekil 4.94’de noktalama yapılan bölgenin 5.0KX SEM görüntüsünün yanında her bir elementin nokta haritalaması ve örneği oluşturan tüm elementlerin nokta haritalaması bir arada verilmiştir. Harita incelendiğinde Fe, Se, K ve Na elementlerinin örnek yüzeyi boyunca homojen olarak dağıldığı görülebilir.

#### 4.3.4.3. $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$ Örneğinin Manyetik Ölçüm Sonuçları

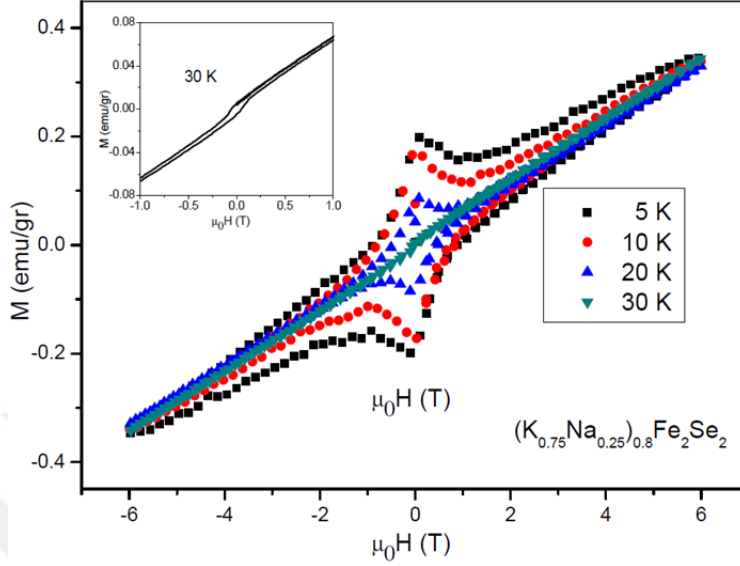
$(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$  kristalinin 5-300K sıcaklık aralığında, 10 Oe alan altında alınan sıfır alan soğutmalı (ZFC) ve alan soğutmalı (FC) sıcaklığa bağlı manyetizasyon eğrileri Şekil 4.95’de verilmiştir. Örnek 28 K civarında süperiletkenlik geçiş göstererek diyamanyetik karakter göstermeye başlamıştır. Geçiş sıcaklığın üstündeki sıcaklık aralıklarında FC ve ZFC eğrilerindeki manyetizasyon değeri neredeyse sabit sifıra yakın bir sinyal sergilemiştir. Bu durum örneğin Pauli paramagnet karakter sergilediğini gösterir. Geçiş sıcaklığının altındaki diyamanyetik sinyala bakıldığında 5K civarında 0.075 emu/gr değerine doğru bir doyuma ulaştığı görülebilir. Bu doyum değeri,  $(K_{0.93}Na_{0.07})_{0.8}Fe_2Se_2$  ve  $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneklerine göre daha düşük bulunmuştur. Geçiş sıcaklığının ve doyum değerinin düşmesi, 0.25 oranındaki Na katkılmasının sistemdeki süperiletkenlik fazını olumsuz etkilediği sonucuna varmamızı sağlar.





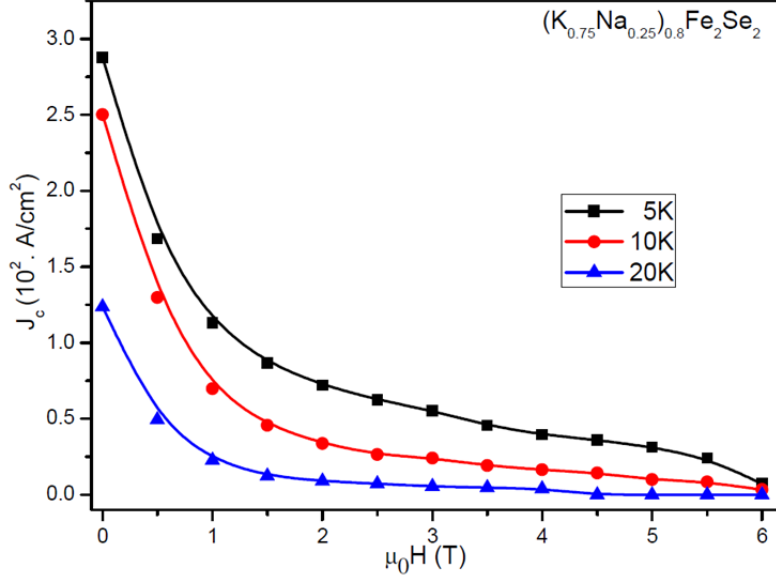
Şekil 4.95.  $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin  $M-T$  eğrisi

Şekil 4.96’da  $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$  kristalinin kristalinin  $\mp 6T$  manyetik alan aralığında ve 5, 10, 20 ve 30 K sıcaklıklarında alınan  $M-H$  eğrisi gösterilmektedir. 5, 10, 20 K sıcaklıklarında örnek, tipik II.tip süperiletken histerezis davranışı göstermiştir. Sıcaklıkla birlikte histerezislerin alanı azalmış ve 30K’de süperiletkenlik faz kaybolmuştur. Ancak Şekil 4.96’nın iç grafiğinde görüldüğü gibi 30K’de ferromanetik tipte bir histerezis ortaya çıkmıştır.  $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin süperiletkenlik durumdaki histerezis alanları,  $(K_{0.93}Na_{0.07})_{0.8}Fe_2Se_2$  ve  $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneklerinin histerezis alanlarından çok daha dardır. Bu da  $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğindeki süperiletkenlik hacmin diğer örneklerle göre düşük kaldığını söyleyebiliriz. Bu durum  $M-T$  sonuçlarıyla da uyumludur. Ayrıca sıfır alandaki manyetizasyon değeri 5K’de 0.2 emu/gr olup,  $(K_{0.93}Na_{0.07})_{0.8}Fe_2Se_2$  ve  $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneklerine göre daha düşüktür. Buradan da  $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$  akı çivileme kapasitesinin diğer örneklerle göre daha düşük olduğunu söyleyebiliriz.



Şekil 4.96.  $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin  $M-H$  eğrisi

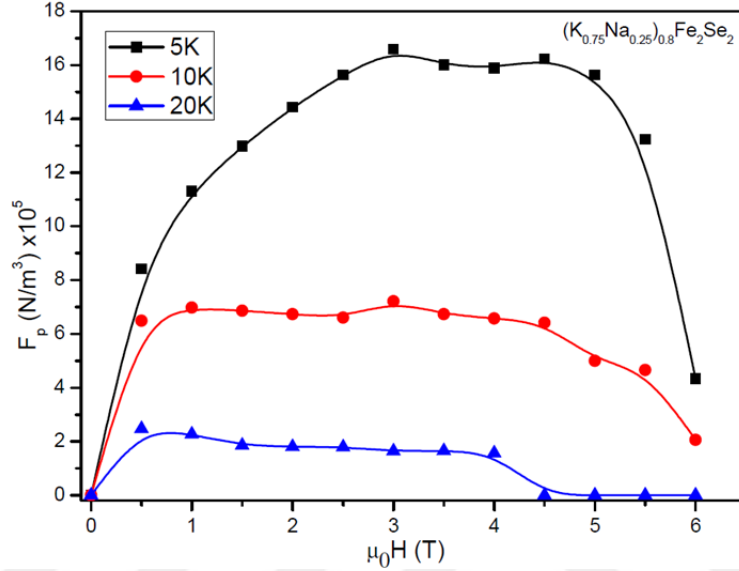
$(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin kritik akım yoğunlukları,  $M-H$  eğrisindeki her alan değerinde pozitif manyetizasyon ve negatif manyetizasyon değerinin mutlak değerlerinin toplamı olan  $\Delta M = |M^+| + |M^-|$ , Denklem (4-1)'den hesaplanabilir. Hesaplanan kritik akım yoğunluğunun manyetik alana karşı grafiği 5,10 ve 20K için Şekil 4.97'de verilmiştir. Örneğin 5K'de ve sıfır alan altındaki kritik akım yoğunluğu  $2.87 \times 10^2$  A/cm<sup>2</sup> olarak hesaplanmıştır. Bu değer,  $(K_{0.93}Na_{0.07})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğine göre ( $2.78 \times 10^4$  A/cm<sup>2</sup>) yaklaşık 100 kat daha düşüktür.



Şekil 4.97.  $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin kritik akım yoğunluğunun manyetik alana karşı grafiği

Kritik akım yoğunlukları kullanılarak, akı çizgileri ile çivileme merkezleri arasındaki etkileşimden ortaya çıkan hacimsel çivileme kuvveti Denklem (4.2)'den hesaplanabilir. Hesaplanan hacimsel çivileme kuvvetinin manyetik alana karşı grafiği Şekil 4.98'de verilmiştir. Şekil incelendiğinde, çivileme kuvvetlerinin sıcaklıkla birlikte azaldığı görülebilir. Örneğin 20 K sıcaklığındaki çivileme kuvvetinin 4.5 T alan altında sıfır olarak hesaplanmıştır. Bu alan değerinin oluşturduğu Lorentz kuvveti çivileme merkezlerinin aktivasyon enerjisini yenerek manyetik akı çizgilerinin örnek boyunca hareket etmesine sebep olduğu söylenebilir. Bu durum örnekteki süperiletkenlik fazını bozarak akım taşımamasını engeller. 5 ve 10 K sıcaklıklarında da çivileme kuvvetleri 4.5 T alan değerinde keskin bir düşüş göstererek sıfır değerine doğru azalmıştır.  $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin 5K maksimum çivileme kuvveti değeri,  $(K_{0.93}Na_{0.07})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğine göre 200 kat,  $(K_{0.8}Na_{0.2})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğine göre ise yaklaşık 530 kat az hesaplanmıştır. Buradan da 0.07 ve 0.2 oranlarındaki Na katkılarını, 0.25

oranındaki Na katkılmasına göre çivileme kuvveti değerlerininin yüksekliği açısından daha uygun olduğu görülebilir.



Şekil 4.98.  $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin çivileme kuvvetinin manyetik alana karşı grafiği

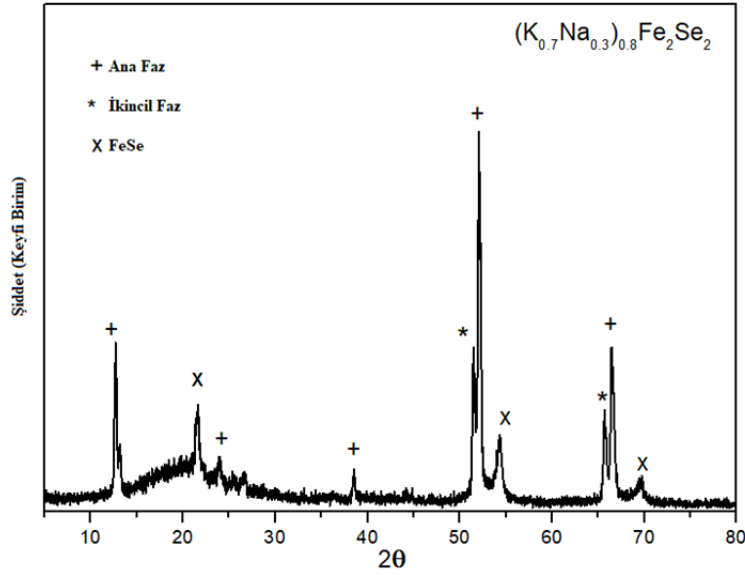
#### 4.3.5. $(K_{0.7}Na_{0.3})_{0.8}Fe_2Se_2$ Örneğinin Analiz Sonuçları

$(K_{0.7}Na_{0.3})_{0.8}Fe_2Se_2$  öz akı (self-flux) tekniğiyle hazırlanmıştır. Diğer  $(K_{1-x}Na_x)_{0.8}Fe_2Se_2$  örneklerinden farklı olarak sinterleme sıcaklığı  $930^\circ C$ 'de, ani soğutma (quench) sıcaklığı ise  $550^\circ C$ 'de yapılmıştır. Na:K oranı ise 3:7 olarak alınmıştır. Elde edilen kristallerin karakterizasyonu için XRD, SEM-EDS ve PPMS kullanılmıştır.

##### 4.3.5.1. $(K_{0.7}Na_{0.3})_{0.8}Fe_2Se_2$ Örneğinin XRD Analiz Sonuçları

Şekil 4.99'da  $(K_{0.7}Na_{0.3})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin XRD desenleri verilmiştir. XRD ölçümleri, Cu hedeften gelen  $K\alpha$  ışınımı kullanılarak  $2^\circ \leq 2\theta \leq 80^\circ$  aralığında  $0.02^\circ$  artışlarla oda sıcaklığında yapılmıştır. Diğer  $(K_{1-x}Na_x)_{0.8}Fe_2Se_2$  örneklerinde olduğu gibi '+' ile etiketlenen ana faz, A=Na, K ya da Rb alkali metallere ve

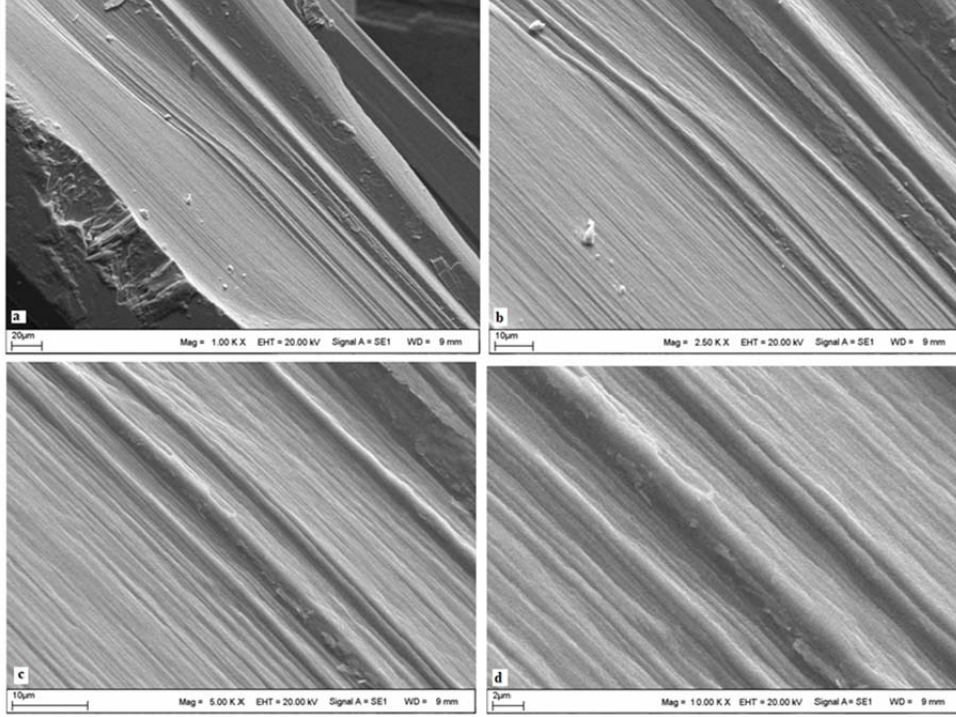
düzenli Fe boşluğundan oluşan antiferromanyetik  $A_2Fe_4Se_5$  fazıdır. Öte yandan ‘\*’ ile etiketlenen ikincil faz ise antiferromanyetik faz içerisinde büyüyen süperiletkenlik fazıdır. Bu iki faza ek olarak FeSe’ye ait yansımalar da gözlenmiştir.  $550^\circ C$ ’de sinterleme sıcaklığı FeSe’nin  $\beta$  fazının büyüme sıcaklığına yakın olmasından dolayı bu faz oluşmuş ve bu faza ait yansımalar XRD’de gözlenmiştir.  $(K_{0.7}Na_{0.3})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin tetragonal yapıdaki  $I4/mmm$  uzay grubuna ait  $ThCr_2Si_2$  tipinde olup örgü parametreleri  $a = 3.9077 \text{ \AA}$  ve  $c = 14.0008 \text{ \AA}$  olarak hesaplanmıştır.



Şekil 4.99.  $(K_{0.7}Na_{0.3})_{0.8}Fe_2Se_2$  Örneğinin XRD desenleri

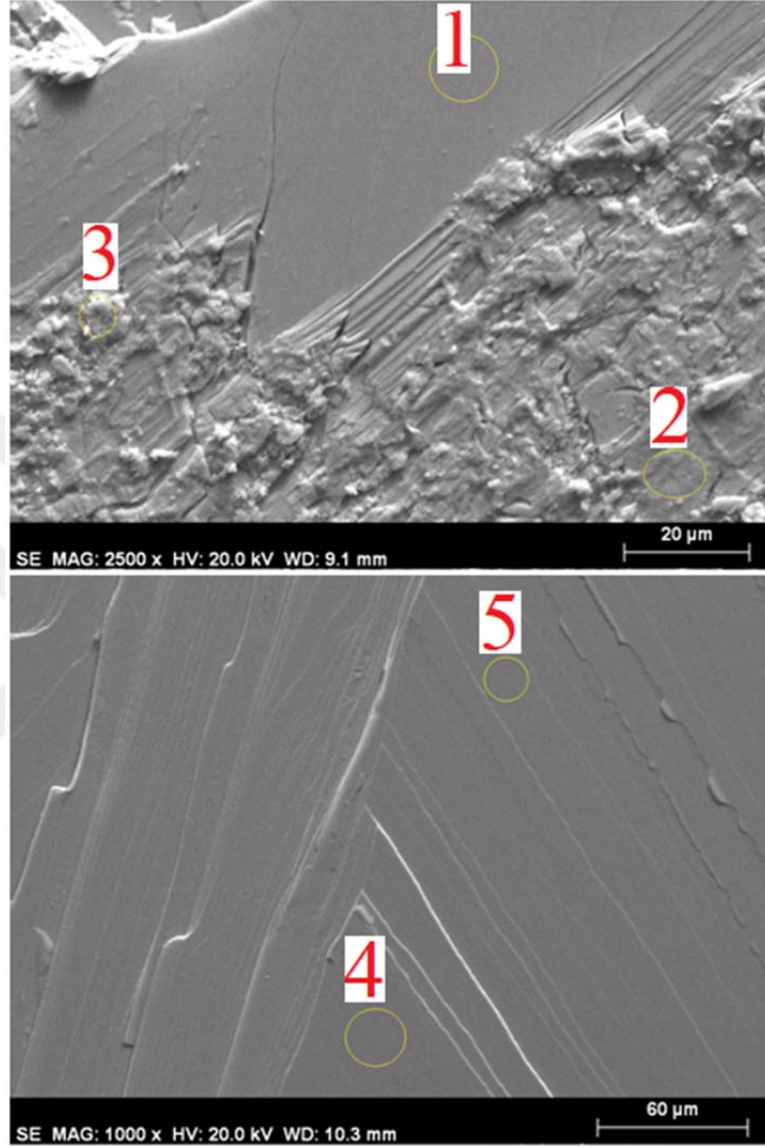
#### 4.3.5.2. $(K_{0.7}Na_{0.3})_{0.8}Fe_2Se_2$ Örneğinin SEM ve EDS Analiz Sonuçları

$(K_{0.7}Na_{0.3})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin yüzey morfolojisi ve kompozisyonunu SEM-EDS tekniği kullanılarak incelendi. Şekil 4.100a-d’de örneğe ait, ikincil modta (SE) ve 1.00, 2.50, 5.00 ve 10.00 KX büyütme oranlarında alınan SEM görüntüleri verilmiştir. SEM görüntüleri incelendiğinde örnekte tabakalı yapının egemen olduğu görülebilir. Bu tabakalı yapılar birbiri ardına dizilmiş tabak tipi düzlemlerden oluşmuştur.

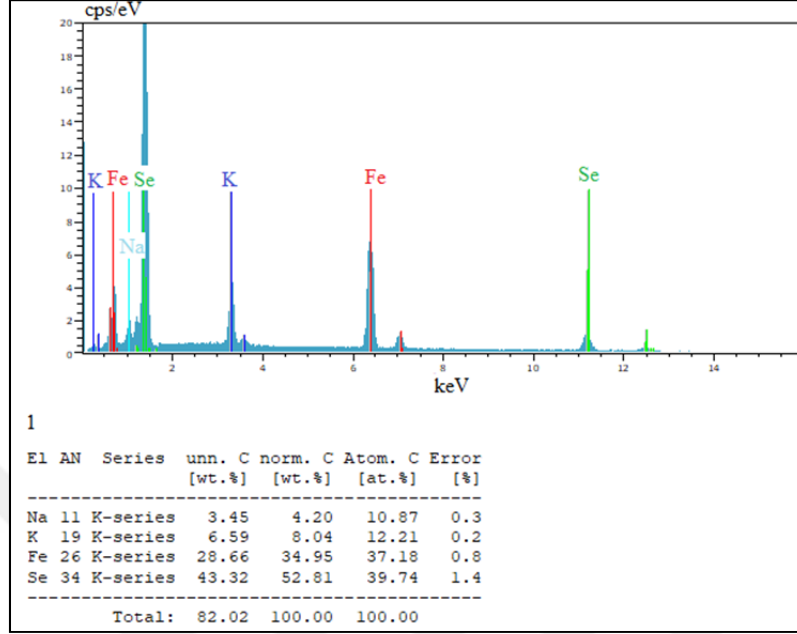
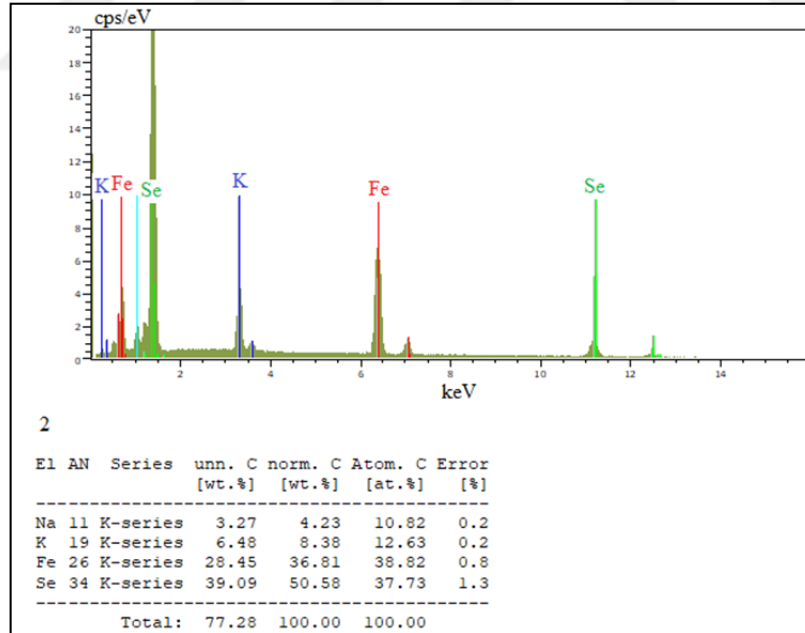


Şekil 4.100.  $(K_{0.7}Na_{0.3})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin a) 1.00 KX, b) 2.50 KX, c) 5.00 KX ve d) 10.00 KX büyütmelerde alınan SEM görüntüleri

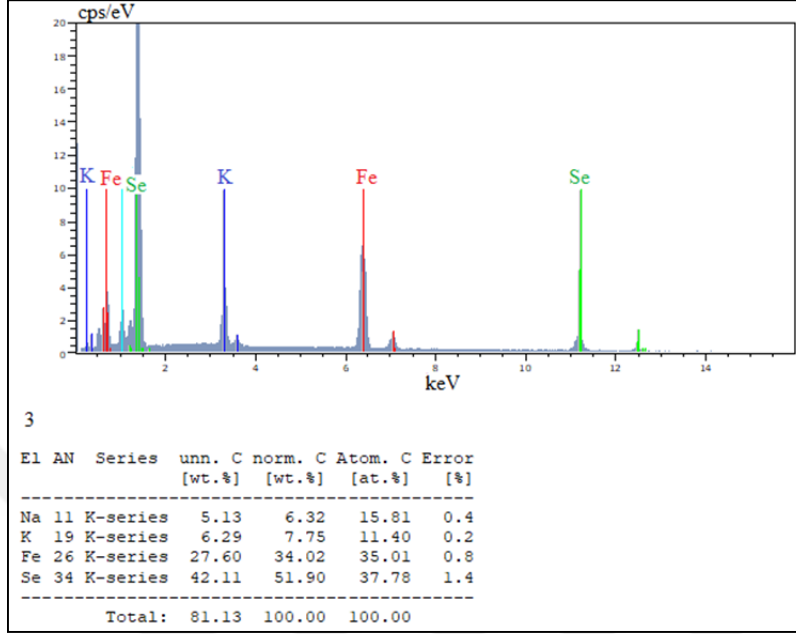
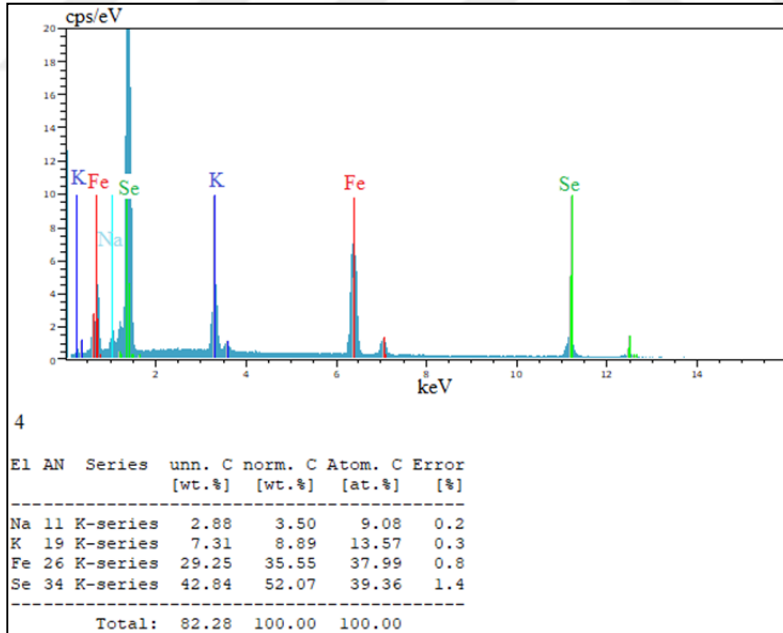
Örneğin elementel analizleri SEM'e bağlı EDS ile incelenmiştir.  $(K_{0.7}Na_{0.3})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneği için EDS analizinde kullanılan bölgeler Şekil 4.101'deki SEM fotoğraflarında verilmiştir. Seçilen beş bölgedeki elementlerin EDS sonuçları ve yüzde atomik oranları Şekil 102-106'da sırasıyla verilmiştir.

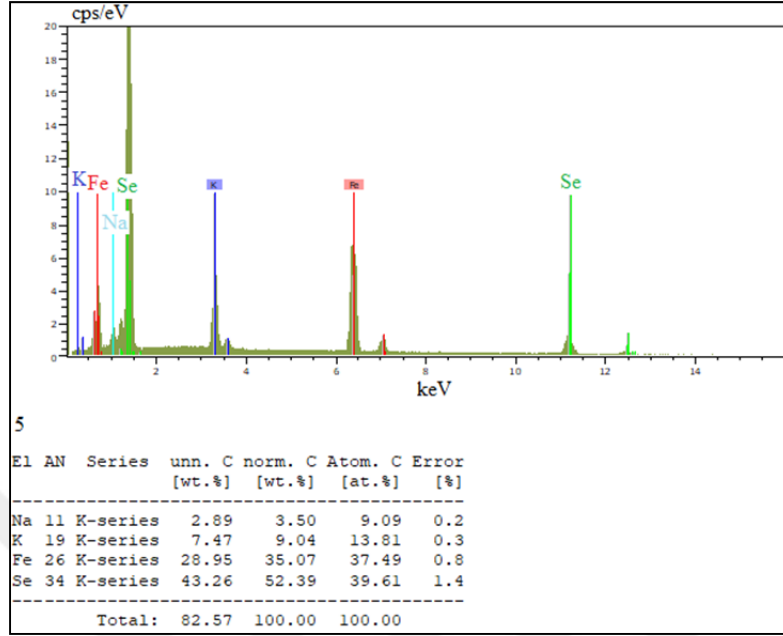


Şekil 4.101.  $(K_{0.7}Na_{0.3})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneği için EDS analizinde kullanılan bölgeler

Şekil 4.102.  $(K_{0.7}Na_{0.3})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneği için seçilen 1. bölgenin EDS analiziŞekil 4.103.  $(K_{0.7}Na_{0.3})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneği için seçilen 2. bölgenin EDS analizi



Şekil 4.104.  $(K_{0.7}Na_{0.3})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneği için seçilen 3. bölgenin EDS analiziŞekil 4.105.  $(K_{0.7}Na_{0.3})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneği için seçilen 4. bölgenin EDS analizi

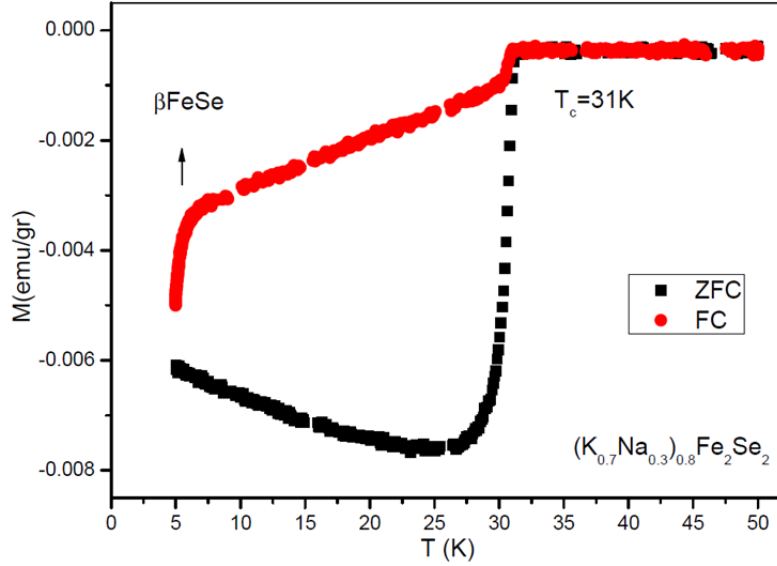


Şekil 4.106.  $(K_{0.7}Na_{0.3})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneği için seçilen 5. bölgenin EDS analizi

Örneğin EDS bulguları incelendiğinde reaksiyona katılan K, Na, Fe ve S dışında safsızlık diyebileceğimiz başka elementlere ait spektrumlar gözlenmemiştir. Seçilen beş bölgenin spektrum ortalaması alınarak örneğin kompozisyonu  $(K_{0.74}Na_{0.66})_{0.8}Fe_{1.79}Se_{1.86}$  olarak belirlenmiştir.

#### 4.3.5.3. $(K_{0.7}Na_{0.3})_{0.8}Fe_2Se_2$ Örneğinin Manyetik Ölçüm Sonuçları

$(K_{0.7}Na_{0.3})_{0.8}Fe_2Se_2$  kristalinin 5-50 K sıcaklık aralıklarında, 10 Oe alan altında alınan sıfır alan soğutmalı (ZFC) ve alan soğutmalı (FC) manyetizasyon-sıcaklık ölçüm sonuçları Şekil 4.107’de verilmiştir.

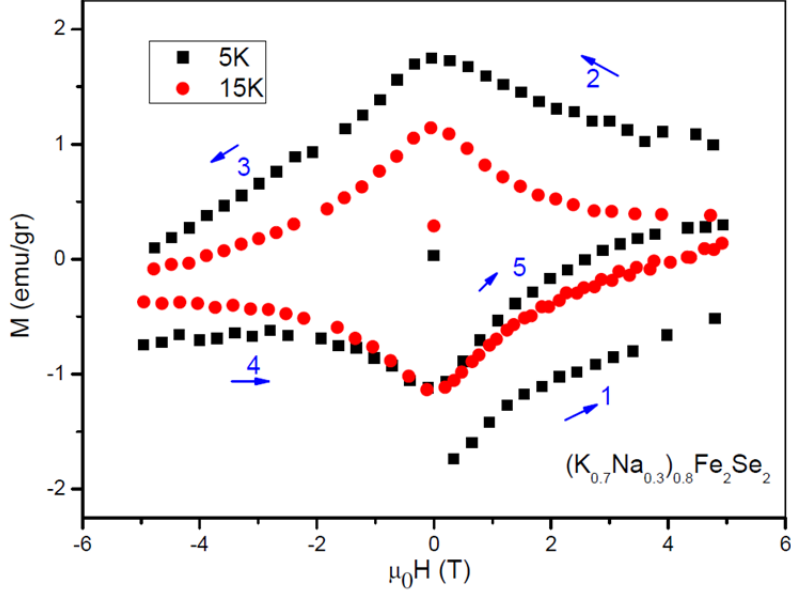


Şekil 4.107.  $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin  $M-T$  eğrisi

Örneğin,  $M-T$  eğrisi incelendiğinde FC ve ZFC ölçümlerinin ikisinde de örnek 31K civarında süperiletkenlik faza geçtiği görülebilir. Ayrıca FC eğrisinde 9K civarında  $\beta$ -FeSe süperiletkenlik geçişi de gözlenmiştir. Buradan da örnek içerisinde hem  $K_{0.8}Fe_2Se_2$  sistemine ait süperiletkenlik fazı ve FeSe sistemine ait  $\beta$ -FeSe süperiletkenlik fazı olduğu sonucuna varılır. Bu durum XRD sonuçlarıyla da uyumludur. Na konsantrasyonunun artması ve sinterleme sıcaklığının  $550^\circ C$ 'ye çekilmesi sistem içerisinde  $\beta$ -FeSe fazının da oluşmasına yol açmış ve 9K civarında bu faza ait süperiletkenlik geçiş gerçekleşmiştir. ZFC eğrisi incelendiğinde geçiş sıcaklığının altında manyetizasyon sinyali  $-0.008$  emu/gr değerine kadar düştükten sonra doyuma ulaşmamış sıcaklığın düşmesiyle birlikte  $-0.006$  emu/gr değerine doğru yükselmiştir. Bu duruma sistem içerisindeki reaksiyona girmeyen ferromanyetik karakterli Fe safsızlıkları sebep olduğu düşünülebilir.

$(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin 5 ve 15 K sıcaklıklarında  $\pm 5$  T manyetik alan aralıklarında alınan  $M-H$  eğrileri Şekil 4.108'de gösterilmiştir. Öncelikle

manyetik alan 0'dan 5 T'ye artırılarak şekilde gösterilen 1, 2, 3 ve 4 nolu oklar yönünde deney gerçekleştirilmiştir. *M-H* eğrisinin bir tam turundan sonra manyetik alan 5 T'ye gelince (5 nolu ok) deney sonlandırılmıştır. Örneğin *M-H* eğrisi 5 ve 15 K'de II.Tip süperiletken tipi bir histerezis davranışı göstermiş ve sıcaklığın artması eğrinin genişliğini azaltmıştır. Ayrıca 15 K'de alınan *M-H* eğrisi simetrik bir davranış göstererek turunu tamamlamıştır. Manyetik alanın tekrar 0'dan 5 T'ye artırıldığı durumda da aynı yolu izleyerek simetrik davranışı korumuştur. Ancak 5 K'de yapılan ölçümde bu durum gözlenmemiştir. Deneyin ilk çeyreğindeki (1 nolu ok yönü) diyamanyetik sinyaller deneyin son çeyreğindeki (5 nolu ok yönü) diyamanyetik sinyallere göre daha yüksek bulunmuştur. Bu durum örnek içerisindeki iki farklı süperiletken fazının varlığına dayandırabilir. 5K'de örnek içerisinde  $K_{0.8}Fe_2Se_2$  süperiletken fazı,  $\beta$ -FeSe süperiletken fazı ve vortekslerin bulunduğu safsızlık bölgeleri vardır.  $K_{0.8}Fe_2Se_2$  ve  $\beta$ -FeSe fazlarının çivileme yetenekleri birbirinden farklı olduğu için *M-H* eğrisinde bu iki faza ait çivileme kuvvetlerinin etkisi gözleneceğinden *M-H* eğrisinde simetrik davranış gözlenmemiştir. 15 K'de ise  $\beta$ -FeSe fazı süperiletken durumda olmadığı için sistem içerisinde vortekslerin bulunduğu safsızlık bölgeleri gibi davranır. Böylece sistemdeki  $K_{0.8}Fe_2Se_2$  süperiletken fazı 15 K'de, diğer  $(K_{1-x}Na_x)_{0.8}Fe_2Se_2$  örneklerinde olduğu gibi bulk tipi bir çivileme mekanizmasına sahip olup simetrik *M-H* eğrisi özelliği gösterir.



Şekil 4.108.  $(K_{0.75}Na_{0.25})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinin  $M-H$  eğrisi

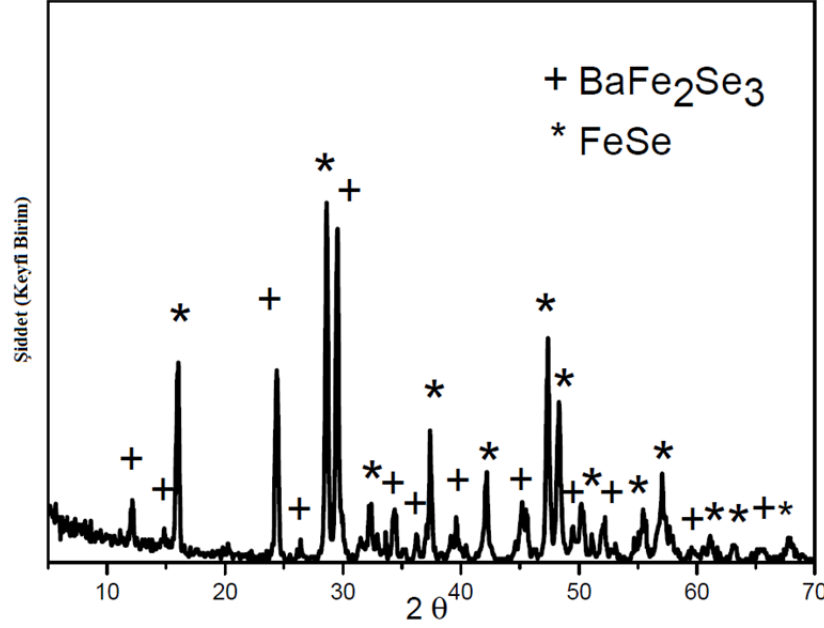
#### 4.4. $BaFe_2Se_2$ Örneğinin Analiz Sonuçları

$BaFe_2Se_2$  örneği materyal ve metot kısmında ayrıntılı anlatıldığı gibi  $BaSe$ ,  $FeSe$  ve  $Fe$  kullanılarak hazırlanmıştır.  $FeSe$  miktarı fazla tutularak flux olarak kullanılmıştır. Örneğin karakterizasyonu için XRD, SEM-EDS ve PPMS kullanılmıştır.

##### 4.4.1. $BaFe_2Se_2$ Örneğinin XRD Analiz Sonuçları

$BaFe_2Se_2$  örneğinin XRD sonuçları Şekil 4.109'da verilmiştir. XRD ölçümü,  $Cu$  hedeften gelen  $K\alpha$  ışınımı kullanılarak  $2^\circ \leq 2\theta \leq 80^\circ$  aralığında  $0.02^\circ$  artışlarla oda sıcaklığında yapılmıştır. XRD desenindeki gözlenen pikler  $FeSe$  ve  $BaFe_2Se_3$  fazlarıyla uyushmaktadır. Akı (flux) olarak  $FeSe$  kullanıldığından  $FeSe$  fazına karşılık gelen piklerin bulunması beklenen bir durumdur. Ancak ilginç olan  $BaFe_2Se_2$  stokiyometrik oranlarda başlanılmasına rağmen reaksiyon sonunda  $BaFe_2Se_3$  kompozisyonuna ulaşılmıştır. Buradan da  $FeSe$  akısı içerisinde  $BaFe_2Se_2$  kompozisyonundan ziyade  $BaFe_2Se_3$  yapısının büyümeye daha elverişli olduğu

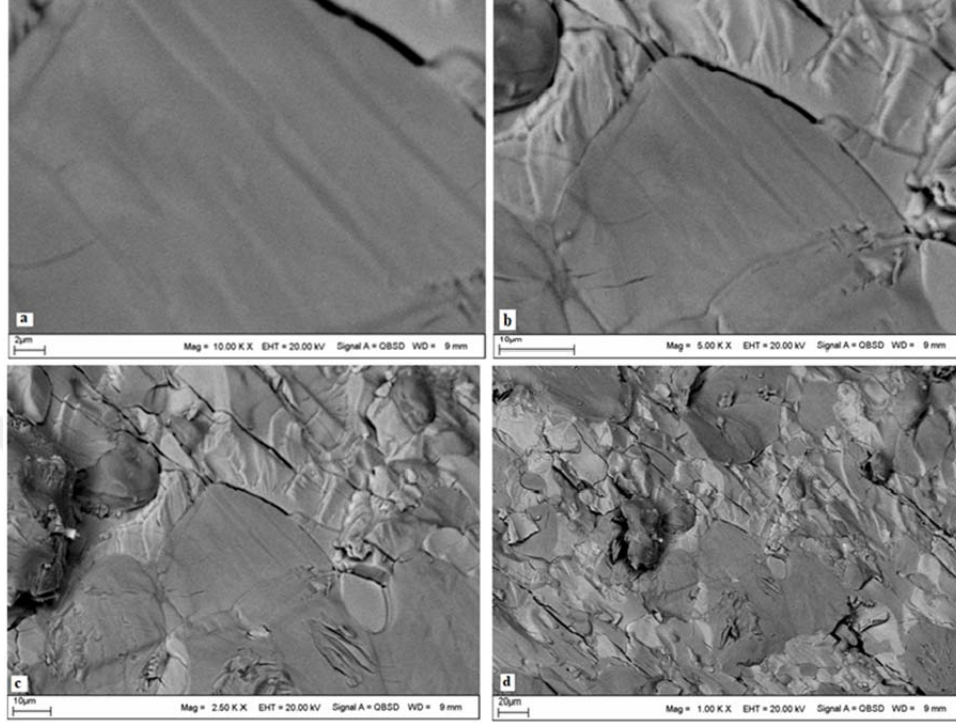
söylenbilir. Bu yapının kristal yapısı ortorombik yapıda olup  $Pnma$  uzay grubuna dâhil edilebilir. Yapının örgü parametreleri  $a= 11.9740 \text{ \AA}$ ,  $b=5.4298 \text{ \AA}$ ,  $c= 9.1640 \text{ \AA}$  olarak hesaplanmıştır.



Şekil 4.109.  $BaFe_2Se_2$  Örneğinin XRD desenleri

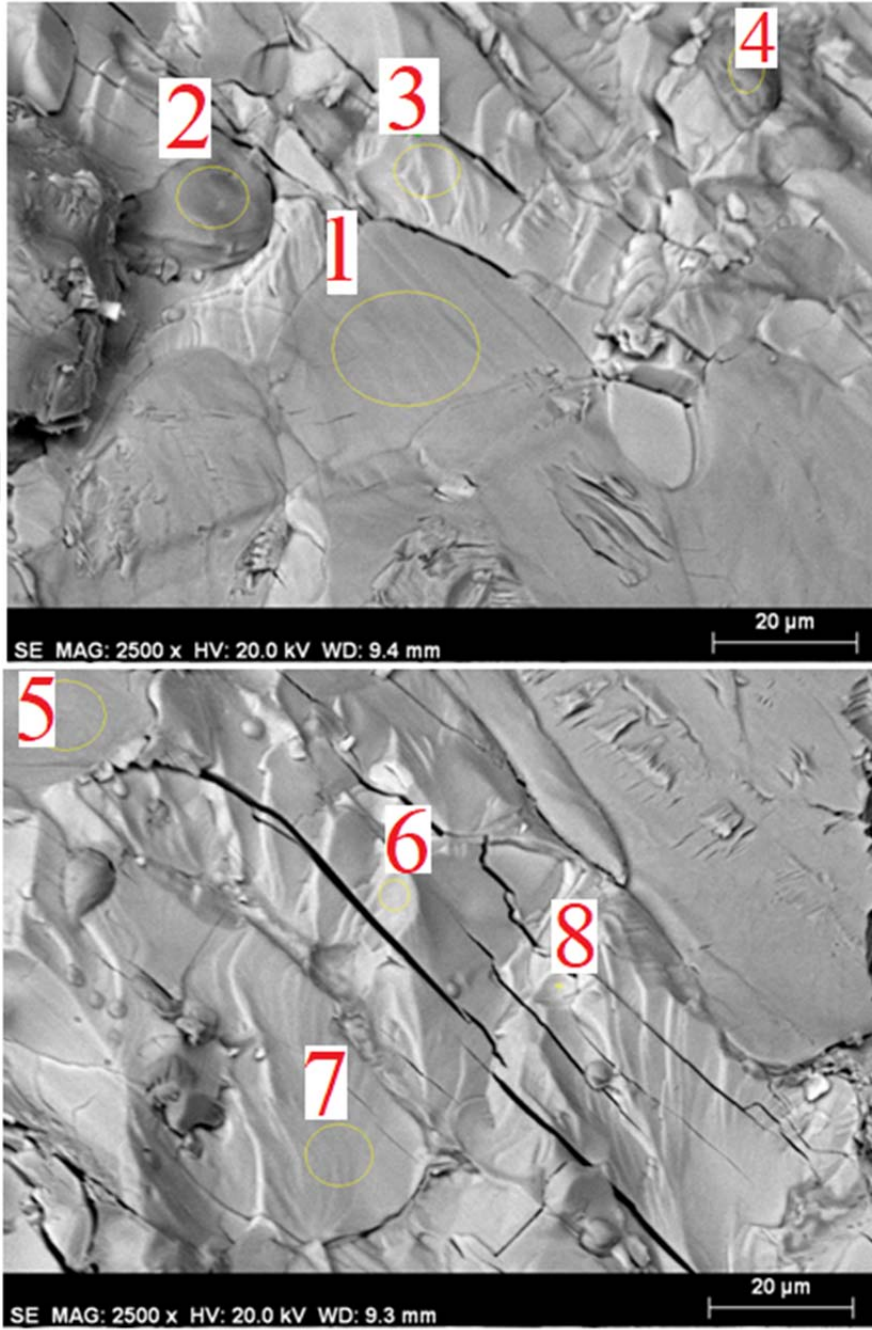
#### 4.4.2. $BaFe_2Se_2$ Örneğinin SEM ve EDS Analiz Sonuçları

$BaFe_2Se_2$  örneğinin yüzey morfolojisi ve kompozisyonunu SEM-EDS tekniği kullanılarak incelendi. Şekil 4.110a-d'de örneğe ait, geri saçılan elektron modunda (BSE) ve 1.00, 2.50, 5.00 ve 10.00 KX büyütme oranlarında alınan SEM görüntüleri verilmiştir.



Şekil 4.110. BaFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneğinin a) 10.00 KX, b) 5.00 KX, c) 2.50 KX ve d) 1.00 KX büyütmelerde alınan SEM görüntüleri

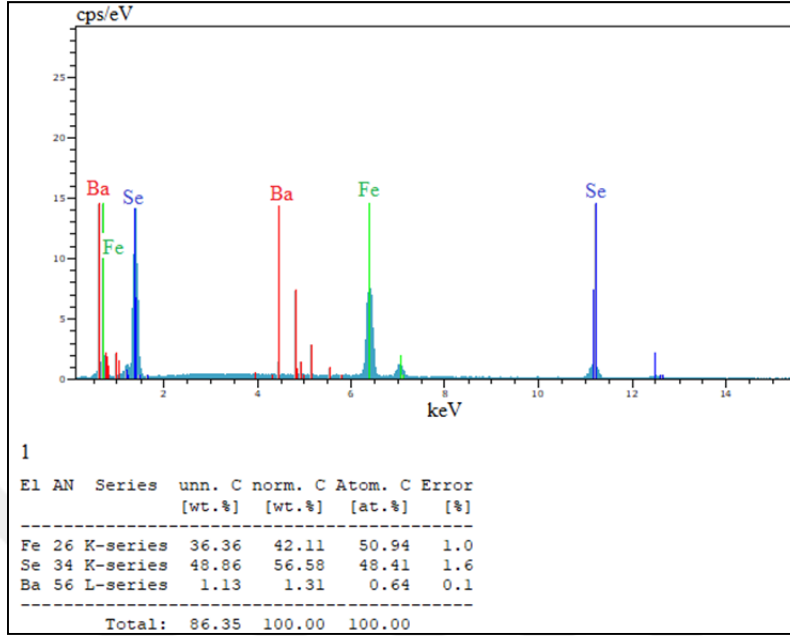
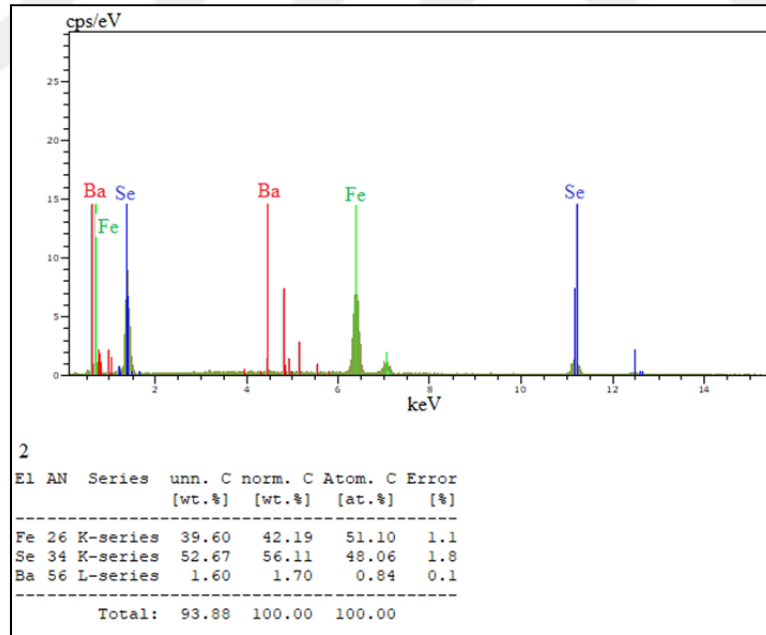
SEM görüntüleri incelendiğinde FeSe<sub>0.6</sub>Te<sub>0.4</sub> ve (K<sub>1-x</sub>Na<sub>x</sub>)<sub>0.8</sub>Fe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneklerinin aksine teras tipi tabakalı yapıların gözlenmediği görülmüştür. Ayrıca örnek yüzeyinde gri ve siyah tonlu bölgeler görülmektedir. SEM görüntülerindeki farklı tonların varlığı kristaldeki farklı fazların malzeme içerisinde kümelenmiş olduğunu ve kristalin tek kristal formda büyümediğini gösterir.

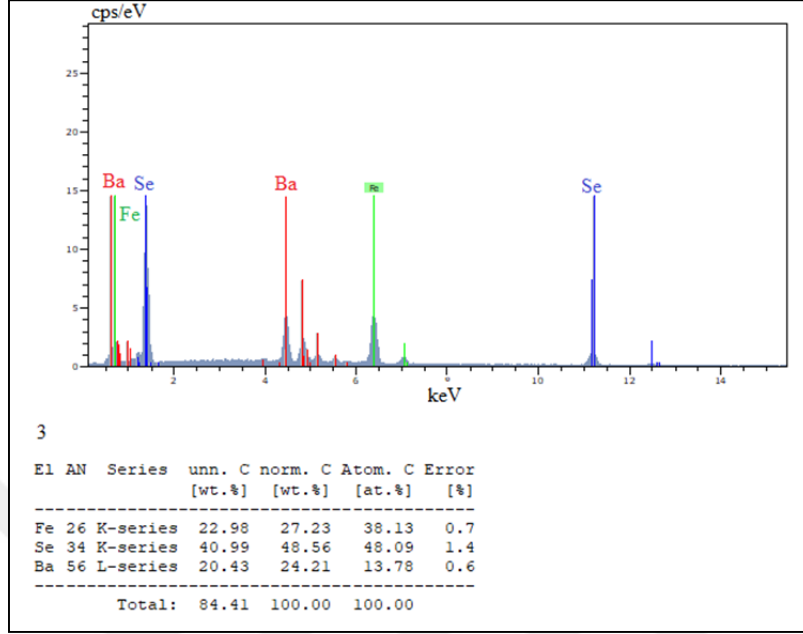
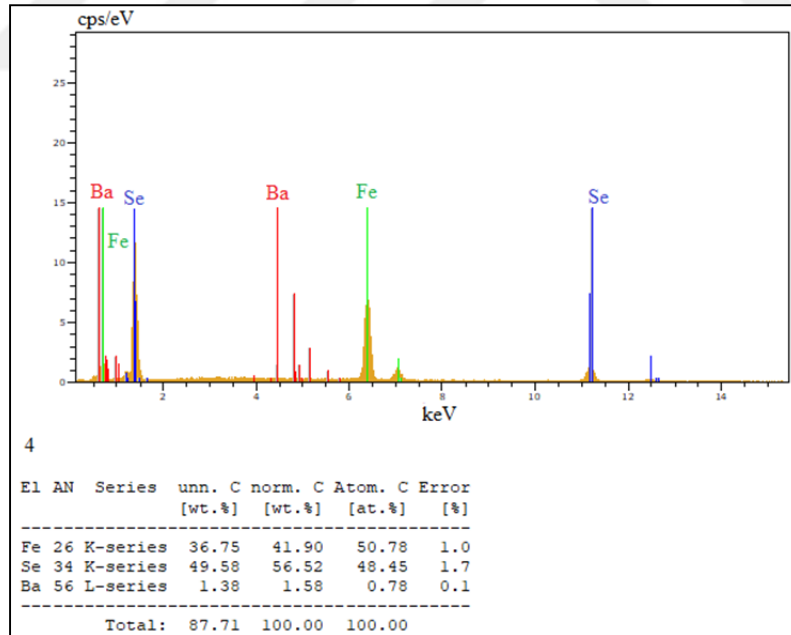


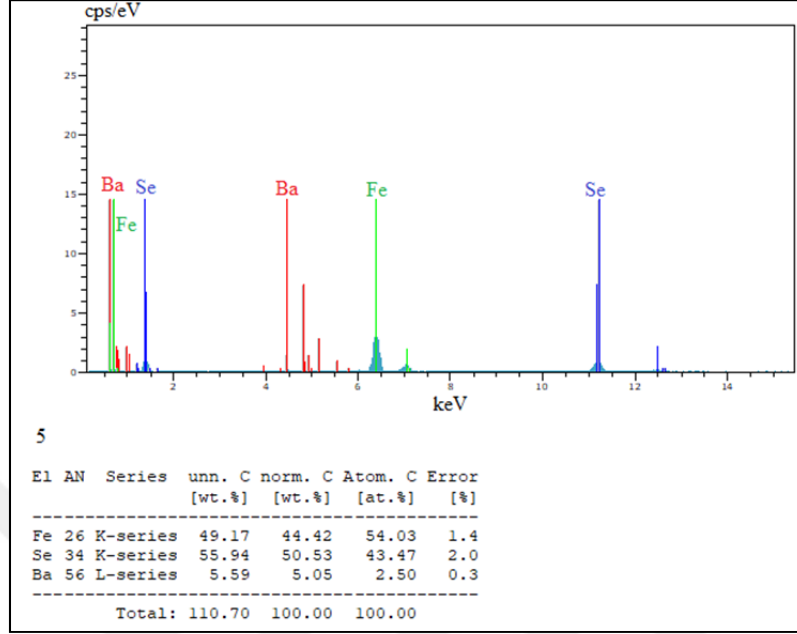
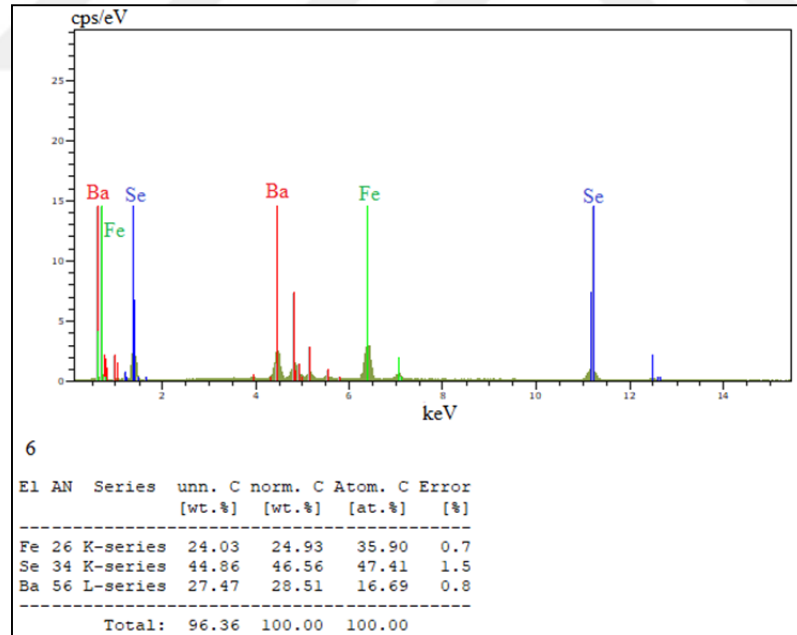
Şekil 4.111. BaFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneği için EDS analizinde kullanılan bölgeler

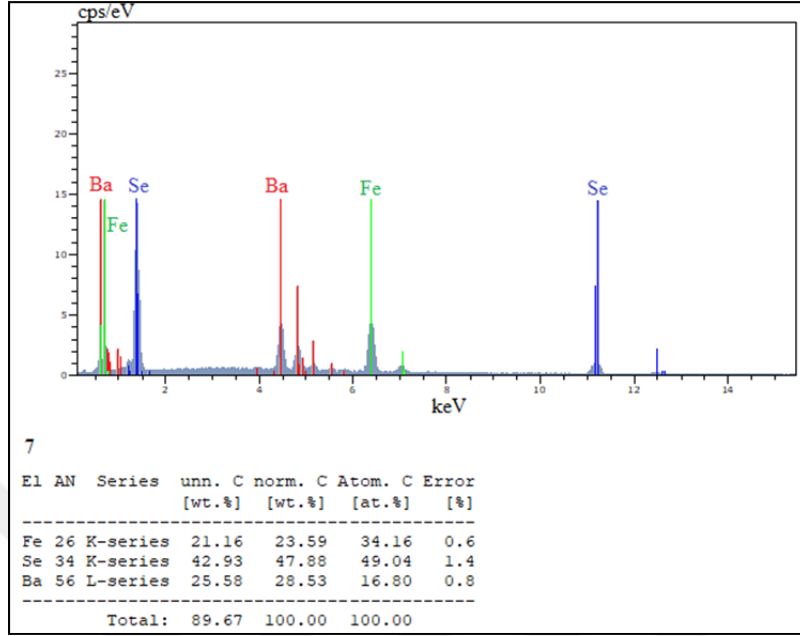
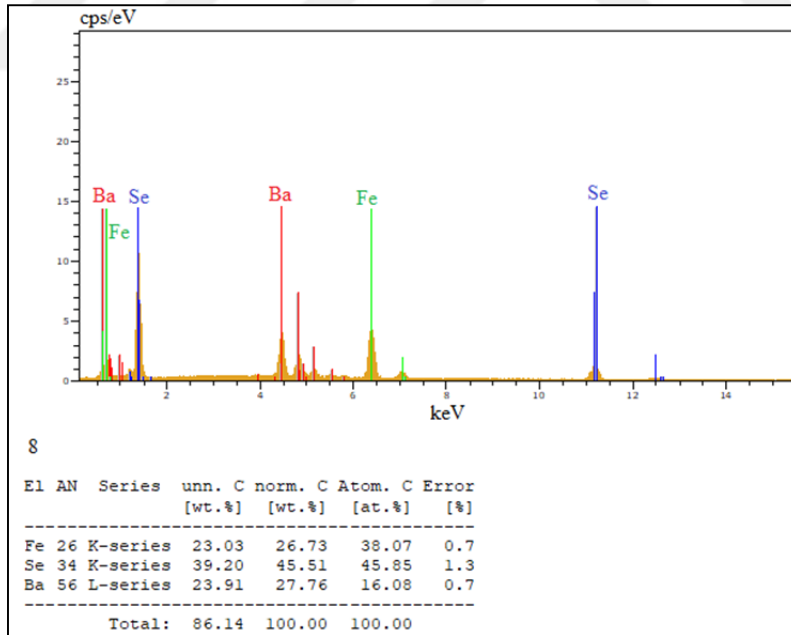


Örneğin elementel analizleri SEM'e bağlı EDS ile incelenmiştir.  $BaFe_2Se_2$  örneği için EDS analizinde kullanılan bölgeler Şekil 4.111'deki SEM fotoğraflarında verilmiştir. Seçilen sekiz bölgedeki elementlerin EDS sonuçları ve yüzde atomik oranları Şekil 4.112-119'da sırasıyla verilmiştir. EDS analizine göre seçilen bölgeler SEM fotoğraflarında görülen gri ve siyah bölgelere göre seçilmiştir. Siyah bölgeler olarak görülen 1, 2, 4 ve 5. bölgelerdeki spektrum ortalamaları alındığında örnek kompozisyonu,  $Ba_{0.02}Fe_{1.03}Se_{0.94}$  olarak belirlenir. Buradaki baryum miktarı önemsenmeyecek kadar azdır. Bu açıdan bu bölgeler  $\beta$ -FeSe süperiletken fazına karşılık gelmektedir. SEM fotoğraflarında beyaz bölgeler olarak görülen 3, 6, 7 ve 8. bölgenin spektrum ortalaması alındığında  $Ba_{0.16}Fe_{0.36}Se_{0.48}$  kompozisyonuna ulaşılır. Bu kompozisyon da XRD desenlerinde gözlenen  $BaFe_2Se_3$  fazına karşılık gelir. Böylece başlangıç stokiometrisi  $BaFe_2Se_2$  olarak seçilen örnek FeSe akısı içerisinde  $BaFe_2Se_3$  formunda büyümüştür.

Şekil 4.112. BaFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneği için seçilen 1. bölgenin EDS analiziŞekil 4.113. BaFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneği için seçilen 2. bölgenin EDS analizi

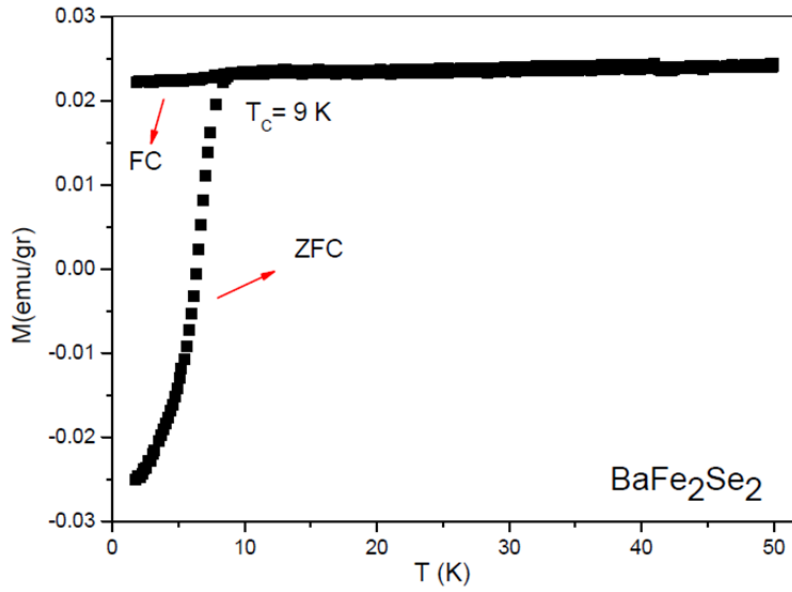
Şekil 4.114. BaFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneği için seçilen 3. bölgenin EDS analiziŞekil 4.115. BaFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneği için seçilen 4. bölgenin EDS analizi

Şekil 4.116. BaFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneği için seçilen 5. bölgenin EDS analiziŞekil 4.117. BaFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneği için seçilen 6. bölgenin EDS analizi

Şekil 4.118. BaFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneği için seçilen 7. bölgenin EDS analiziŞekil 4.119. BaFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneği için seçilen 8. bölgenin EDS analizi

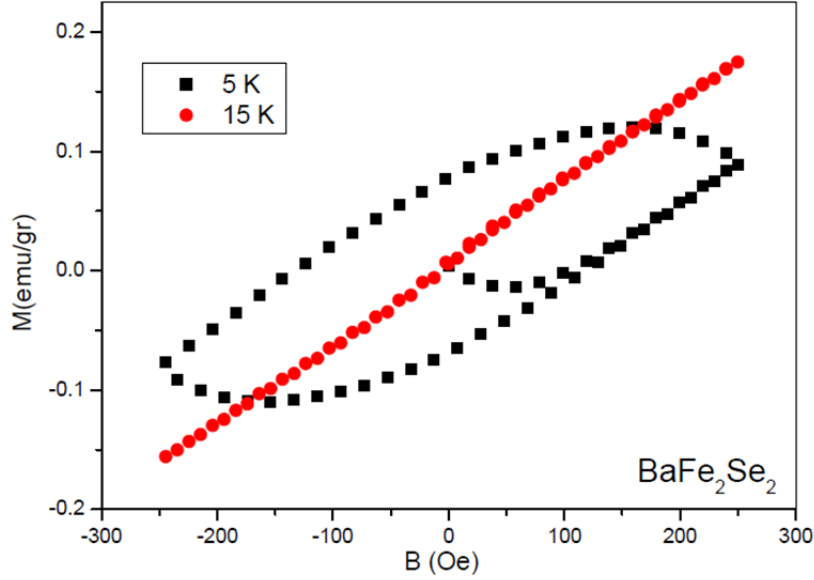
#### 4.4.3. BaFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> Örneğinin Manyetik Ölçüm Sonuçları

BaFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneğinin 20 Oe'te ölçülen sıcaklığa bağlı sıfır alan soğutmalı (ZFC) ve alan soğutmalı (FC) manyetizasyonları Şekil 4.120'de gösterilmiştir. BaFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneğinin 0-50 K arasındaki ZFC-FC eğrilerinin çakışık olduğunu ve  $T_c=9$  K civarında süperiletkenlik geçişinin olduğu sıcaklık değerinde ayrıştığı görülmektedir.



Şekil 4.120. BaFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub>örneğinin  $M$ - $T$  eğrisi

BaFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneğinin manyetizasyon-manyetik alan eğrileri Şekil 4.121'de verilmiştir. Şekilden de görüldüğü BaFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneği 5K'de süperiletken histeresis davranışı göstermiştir. 15K'deki manyetizasyon-manyetik alan eğrisine bakıldığında ise malzemede süperiletkenlik fazının kaybolduğu ferromanyetik tipte bir davranışın baskın olduğu görülmektedir.



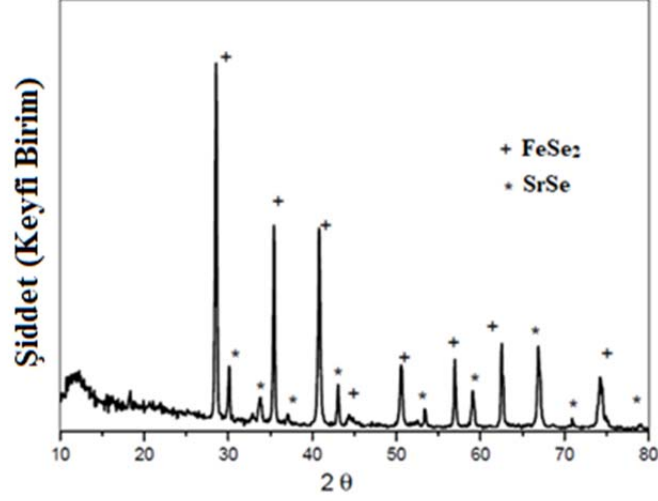
Şekil 4.121. BaFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub>örneğin *M-H* eğrisi

#### 4.5. SrFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> Örneğinin Analiz Sonuçları

SrFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneği SrSe, Fe ve Se başlangıç malzemeleri kullanılarak hazırlanmıştır. Örneğin karakterizasyonu için XRD, SEM-EDS ve PPMS kullanılmıştır.

##### 4.5.1. SrFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> Örneğinin XRD Analiz Sonuçları

SrFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneğinin XRD desenleri Şekil 4.122'de verilmiştir. XRD ölçümü, Cu hedeften gelen K $\alpha$  ışınımı kullanılarak  $2^\circ \leq 2\theta \leq 80^\circ$  aralığında  $0.02^\circ$  artışlarla oda sıcaklığında yapılmıştır. XRD desenlerine bakılırsa SrFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneği çok fazlı bir davranış sergilemiştir. Gözlenen pikler SrSe, FeSe<sub>2</sub> pikleriyle uyumaktadır. SrFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneği ortorombik yapıdaki *Pnma* uzay grubuna dâhil edilmiş olup örneğin örgü parametreleri de  $a= 11.020 \text{ \AA}$ ,  $b=5.45 \text{ \AA}$ ,  $c= 9.140 \text{ \AA}$  olarak hesaplanmıştır.

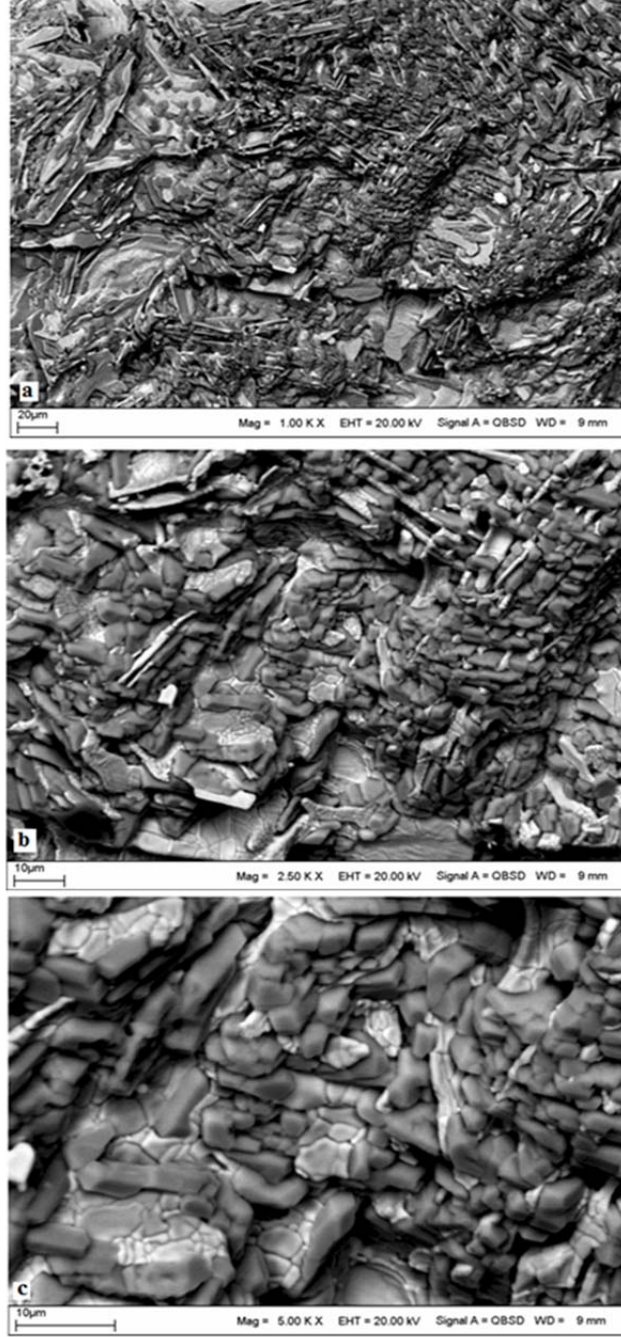


Şekil 4.122. SrFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> Örneğinin XRD desenleri

#### 4.5.2. SrFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> Örneğinin SEM ve EDS Analiz Sonuçları

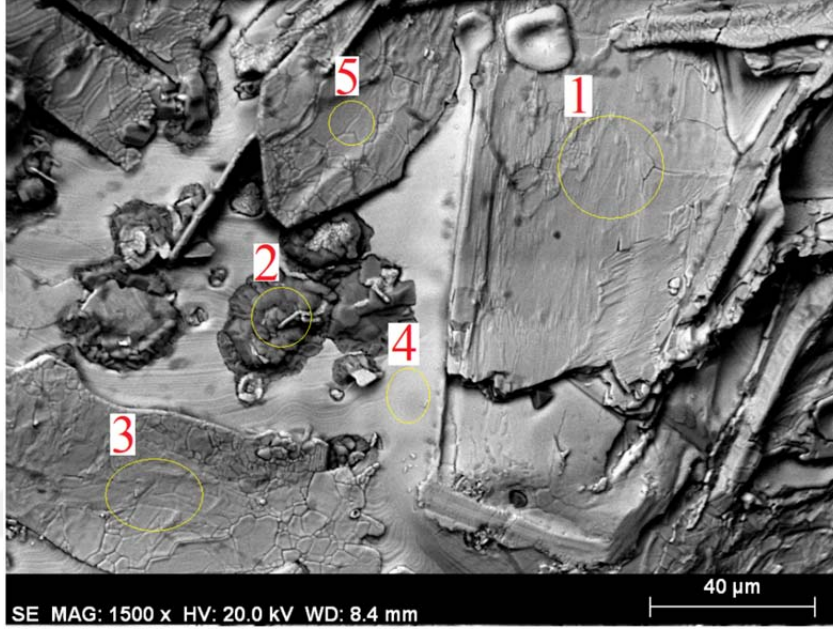
SrFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneğinin yüzey morfolojisi ve kompozisyonunu SEM-EDS tekniği kullanılarak incelendi. Örneğe ait, geri saçılan elektron modunda (BSE) ve 1.00, 2.50 ve 5.00 KX büyütme oranlarında alınan SEM görüntüleri Şekil 4.123a-c'de verilmiştir. SEM görüntülerinden görüldüğü üzere örnek teras tipi birbiri ardına dizilmiş düzlemlerin oluşmadığı farklı fazların örnek içerisinde kümелendiği görülmüştür.



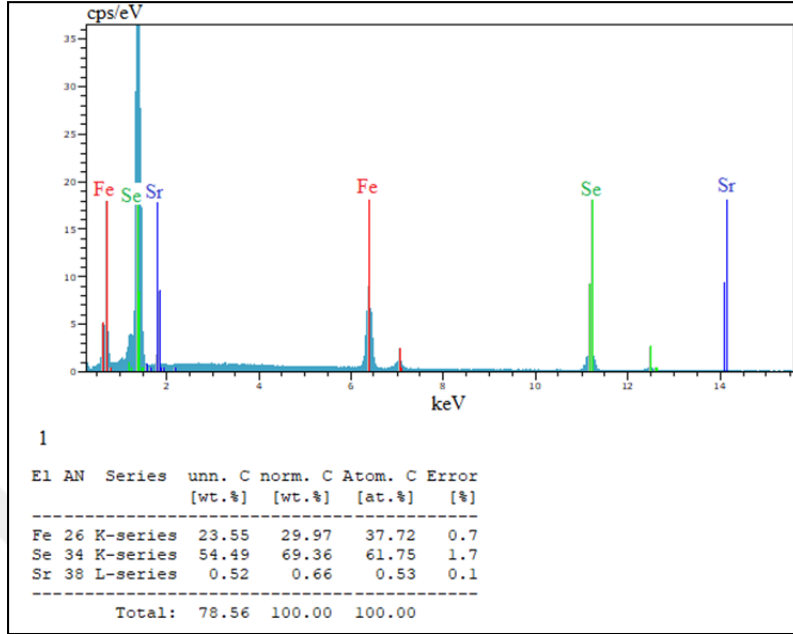
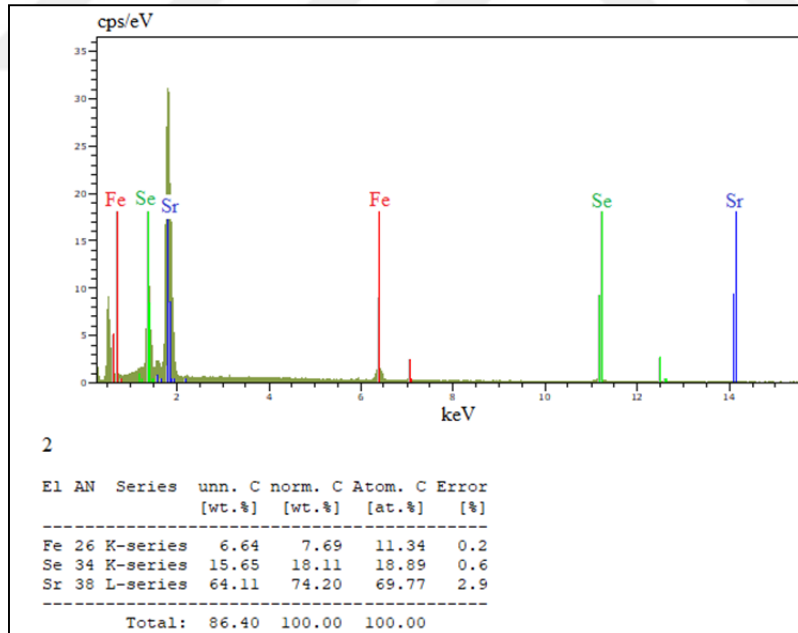


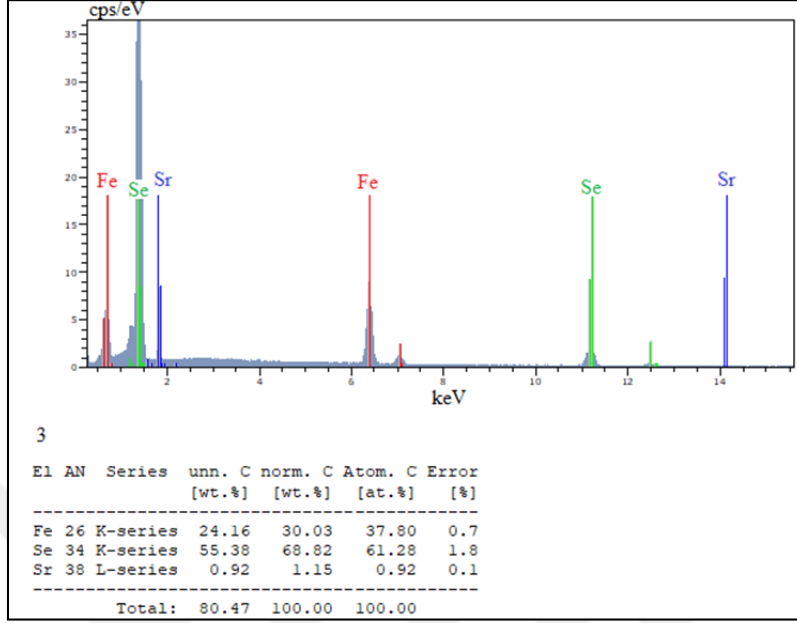
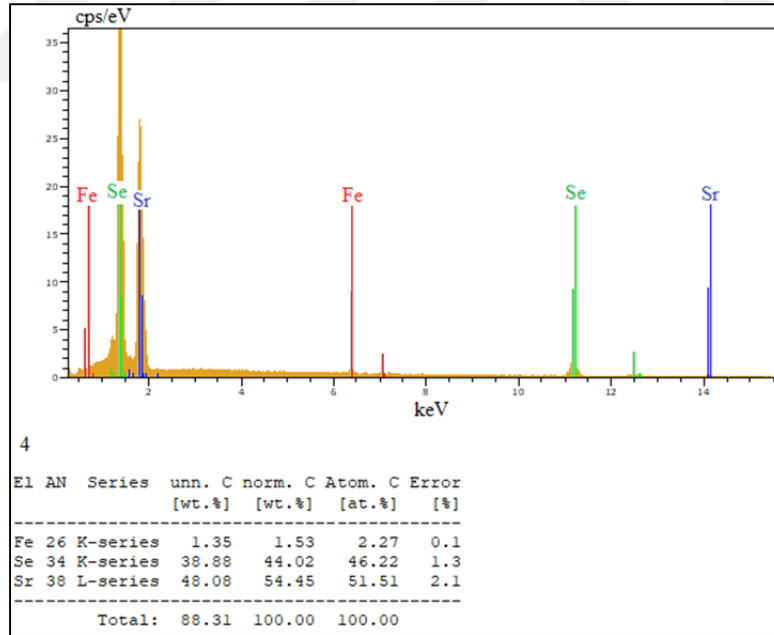
Şekil 4.123. SrFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneğinin a) 1.00 KX, b) 2.50 KX ve c) 5.00 KX büyütmelerde alınan SEM görüntüleri

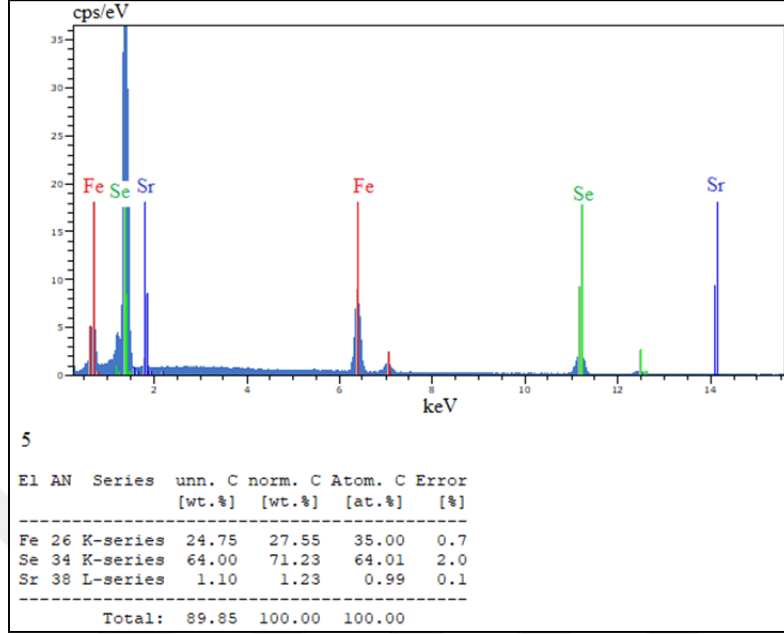
Örneğin elementel analizleri SEM'e bağlı EDS ile incelenmiştir.  $\text{SrFe}_2\text{Se}_2$  örneği için EDS analizinde kullanılan bölgeler Şekil 4.124'deki SEM fotoğraflarında verilmiştir. Seçilen beş bölgedeki elementlerin EDS sonuçları ve yüzde atomik oranları Şekil 4.125-129'da sırasıyla verilmiştir.



Şekil 4.124.  $\text{SrFe}_2\text{Se}_2$  örneği için EDS analizinde kullanılan bölgeler

Şekil 4.125. SrFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneği için seçilen 1. bölgenin EDS analiziŞekil 4.126. SrFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneği için seçilen 2. bölgenin EDS analizi

Şekil 4.127. SrFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneği için seçilen 3. bölgenin EDS analiziŞekil 4.128. SrFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneği için seçilen 4. bölgenin EDS analizi

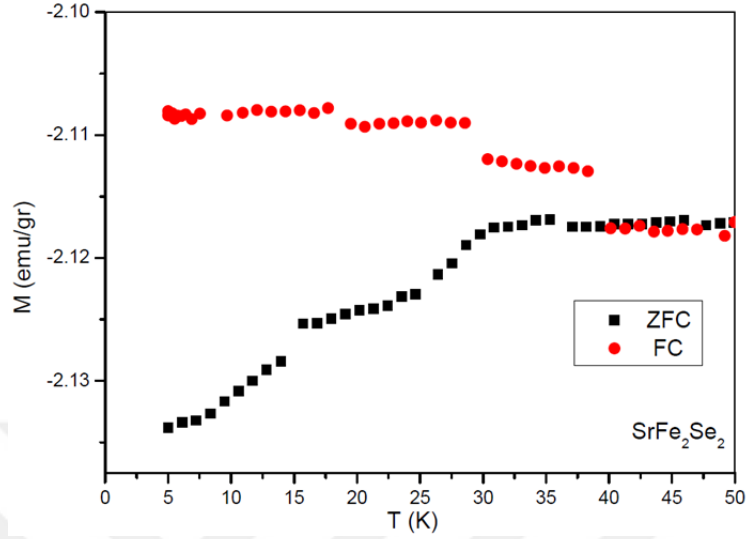


Şekil 4.129. SrFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneği için seçilen 5. bölgenin EDS analizi

Örneğin EDS bulguları incelendiğinde reaksiyona katılan Sr, Fe ve Se dışında safsızlık diyebileceğimiz başka elementlere ait spektrumlar gözlenmemiştir. 1, 3 ve 5. bölgelerde Sr miktarı 0.92 gibi önemsenmeyecek kadar az miktarda bulunmuştur. SEM fotoğraflarında gri bölgelere karşılık gelen bu bölgelerin FeSe<sub>2</sub> fazına karşılık geldiği düşünülmektedir. Öte yandan 4. bölgenin EDS bulgusu incelendiğinde demir miktarı 2.27 gibi çok düşük bir değerde kalmıştır. SEM fotoğraflarında beyaz bölgelere karşılık gelen bu bölgenin SrSe fazına karşılık geldiği düşünülmektedir. Buradan da başlangıç malzemesi olarak kullanılan SrSe'nin çok stabil olmasının yanında Fe ve Se içinde ayrışmadığını söyleyebiliriz.

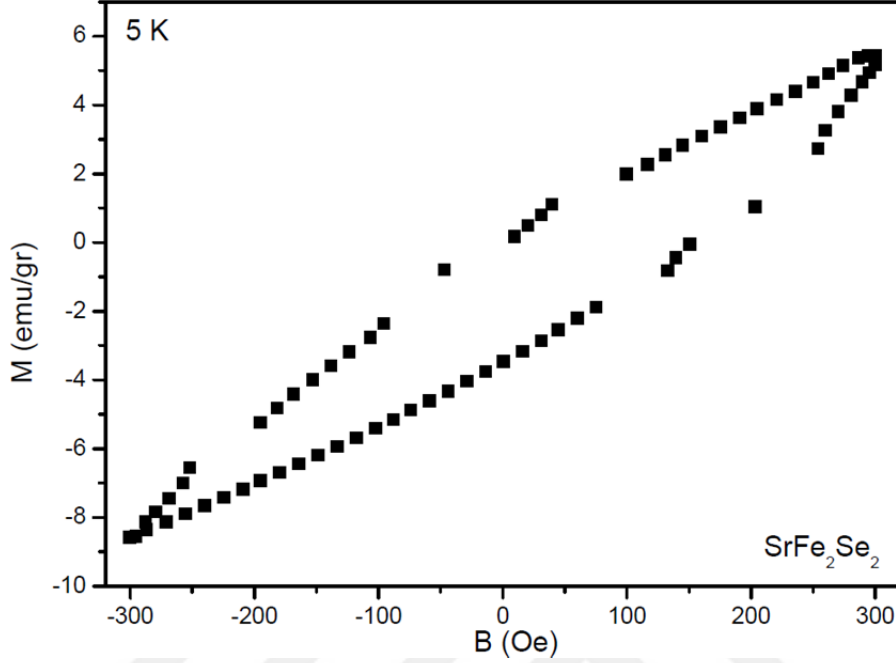
#### 4.5.3. SrFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> Örneğinin Manyetik Ölçüm Sonuçları

SrFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneğinin 10 Oe'te ölçülen sıcaklığa bağlı sıfır alan soğutmalı (ZFC) ve alan soğutmalı (FC) manyetizasyonları Şekil 4.130'da gösterilmiştir.



Şekil 4.130.  $\text{SrFe}_2\text{Se}_2$ örneğinin  $M$ - $T$  eğrisi

0-50 K arasında ölçülen ZFC eğrilerine bakılırsa manyetizasyon değeri 50 K'den 30 K'ye kadar -2.115 emu/gr sabit bir değerde seyrettikten sonra  $T=29\text{K}$  civarında süperiletkenlik tipi bir düşüş göstermiştir. Buradaki bu düşüş süperiletkenliğe geçişten kaynaklanabileceği gibi bir manyetik yapı değişiminden de kaynaklanabilir. XRD, SEM ve EDS analizinde görüldüğü gibi malzemedeki çoklu faz davranışı göstermiş ve kullanılan SrSe tam olarak ayrışmamıştır. Bu sebeple manyetizasyon-sıcaklık eğrisindeki geçişlerin süperiletkenlik geçişi olabileceği konusunda net bir şey söyleyemeyiz.



Şekil 4.131.  $\text{SrFe}_2\text{Se}_2$ örneğinin  $M-H$  eğrisi

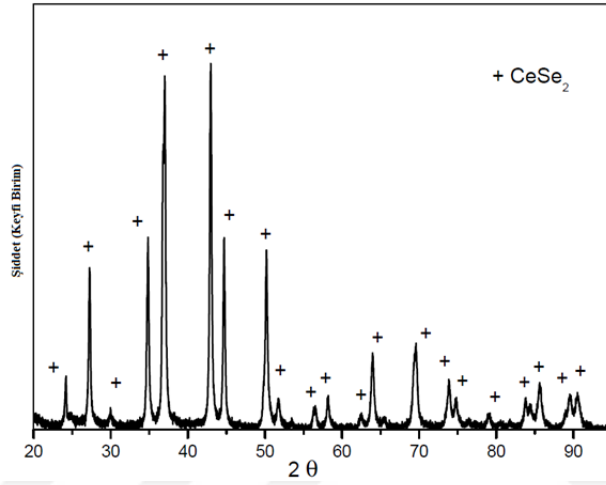
$\text{SeFe}_2\text{Se}_2$  örneğinin manyetizasyon-manyetik alan eğrileri 5K için Şekil 4.131’de verilmiştir. Eğrinin davranışından örneğin ferromanyetik bir karakter gösterdiği söylenebilir.  $\text{SeFe}_2\text{Se}_2$  örneğinin ferromanyetik bir karakter göstermesi reaksiyona girmemiş Fe atomlarından kaynaklanabilir.  $M-T$  eğrisinde görülen geçiş süperiletken bir geçiş olsa bile buradaki süperiletken hacmin küçük olması sebebiyle  $M-H$  ölçümlerinde Meissner etkisi gözlenmemiş ve pozitif manyetik alan değerlerinde pozitif manyetizasyon değerleri gözlenmiştir.

#### 4.6. $\text{CeFe}_2\text{Se}_2$ Örneğinin Analiz Sonuçları

$\text{CeFe}_2\text{Se}_2$  örneği,  $\text{CeSe}_2$ , Fe ve Se başlangıç malzemeleri kullanılarak hazırlanmıştır. Örneğin karakterizasyonu için XRD, SEM-EDS ve PPMS kullanılmıştır.

#### 4.6.1. CeFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> Örneğinin XRD Analiz Sonuçları

CeFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneğinin hazırlanma sürecinde ilk olarak CeSe<sub>2</sub> başlangıç malzemesi hazırlanmıştır. Elde edilen CeSe<sub>2</sub> kristallerinin XRD ölçümleri Şekil 4.132’de verilmiştir. XRD sonuçlarına bakılırsa CeSe<sub>2</sub> pikleri dışında safsızlık piklerine rastlanılmamış ve yüksek kalitede CeSe<sub>2</sub> kristalleri elde edilmiştir.

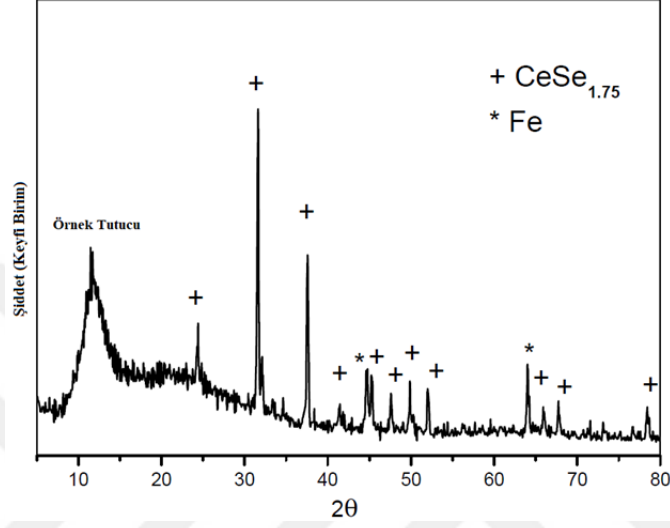


Şekil 4.132. CeSe<sub>2</sub> Örneğinin XRD desenleri

Elde edilen CeSe<sub>2</sub> kristaline Fe elementi CeFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> nominal kompozisyonu sağlanacak şekilde eklenerek ısıtılma sürecine tabi tutuldu. Elde edilen CeFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneğinin XRD desenleri Şekil 4.133’de verilmiştir. XRD ölçümü, Cu hedeften gelen K $\alpha$  ışınımı kullanılarak  $2^{\circ} \leq 2\theta \leq 80^{\circ}$  aralığında  $0.02^{\circ}$  artışlarla oda sıcaklığında yapılmıştır. Gözlenen piklerin CeSe<sub>1.75</sub> ve Fe elementinin pikleriyle uyumuştur.  $860^{\circ}\text{C}$  sıcaklık değerlerinde CeSe<sub>1.75</sub> fazı oluşmaya yatkın durumda olduğundan gözlenen piklerin CeSe<sub>1.75</sub> fazına ait olduğunu düşünülebilir. Bununla birlikte reaksiyona girmeyen Fe piklerinin de olması bu örnekte CeFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> nominal kompozisyonunun sağlanmadığı ve örneğin tek faz ve tek kristal formda büyümediğini söyleyebiliriz. Gözlenen pikler ortorombik yapıdaki *Cmma* uzay



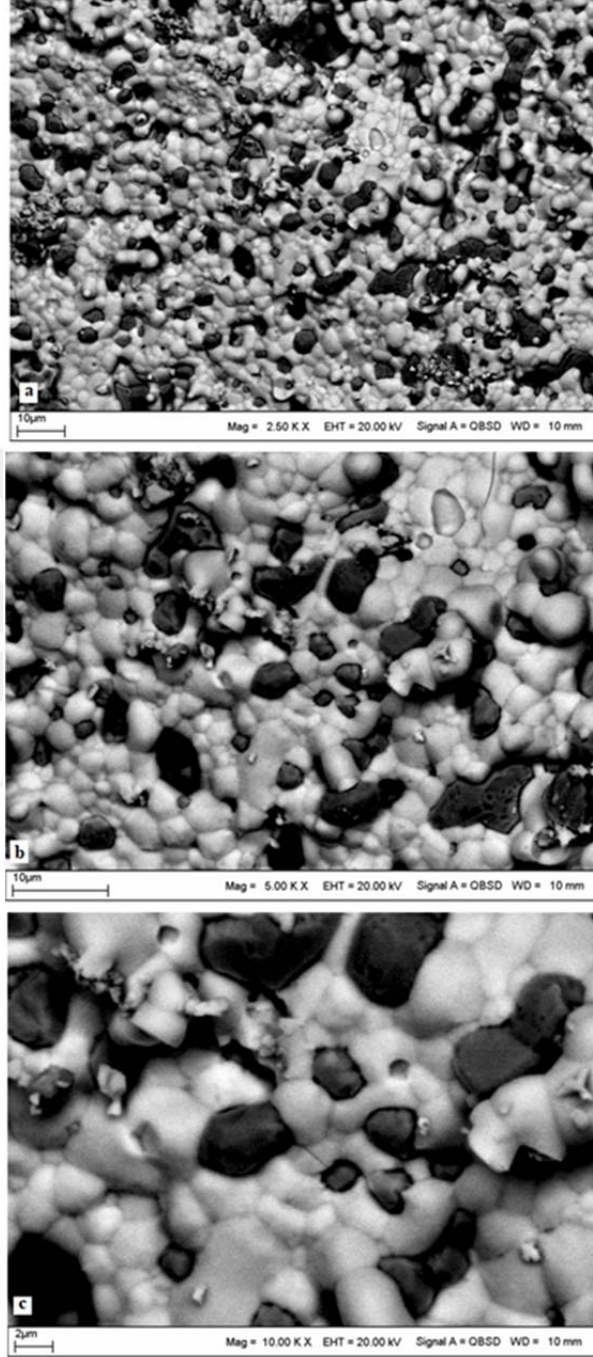
grubuna dâhil edilebilir. Örneğin örgü parametreleri ise  $a= 16.5958 \text{ \AA}$ ,  $b=17.0075 \text{ \AA}$ ,  $c= 12.8922 \text{ \AA}$  olarak hesaplanmıştır.



Şekil 4.133. CeFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> Örneğinin XRD desenleri

#### 4.6.2. CeFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> Örneğinin SEM ve EDS Analiz Sonuçları

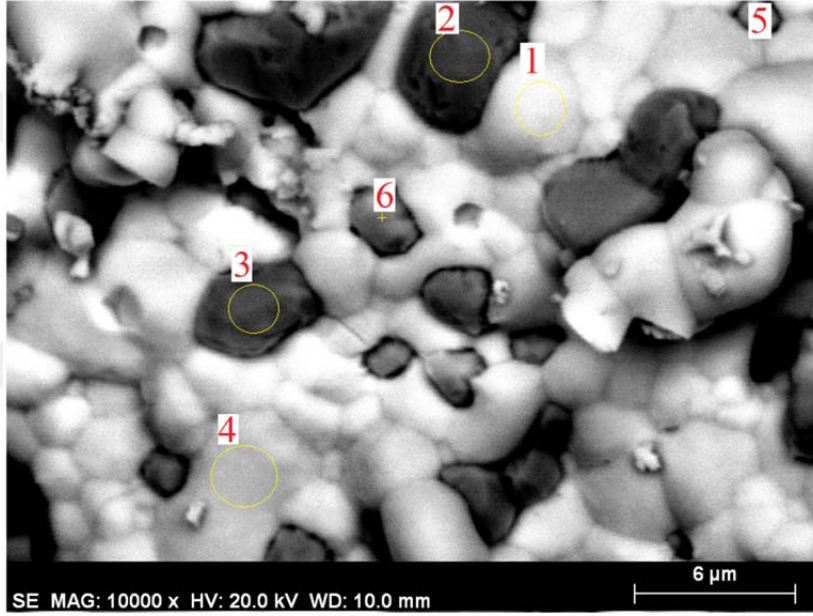
CeFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneğinin yüzey morfolojisi ve kompozisyonunu SEM-EDS tekniği kullanılarak incelendi. Örneğe ait, geri saçılan elektron modunda (BSE) ve 2.50, 5.00 ve 10.00 KX büyütme oranlarında alınan SEM görüntüleri Şekil 4.134a-c'de verilmiştir.



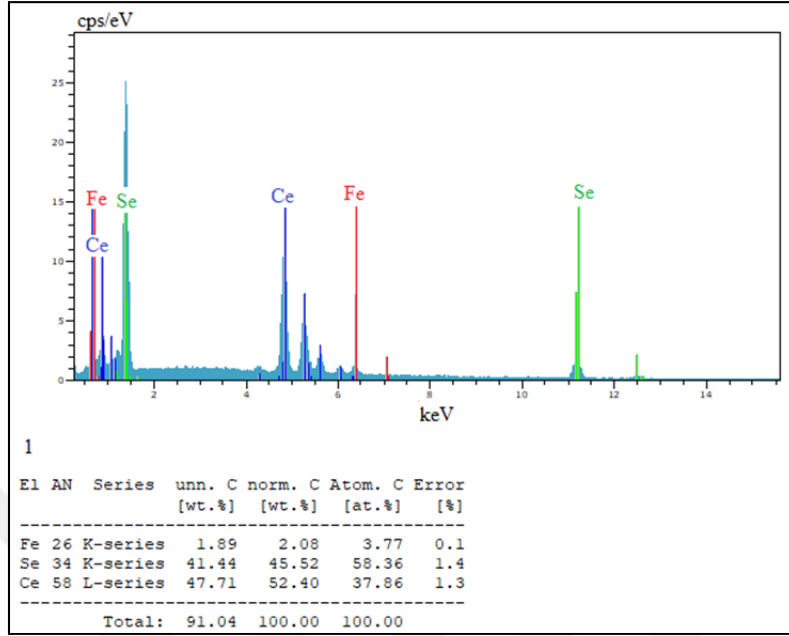
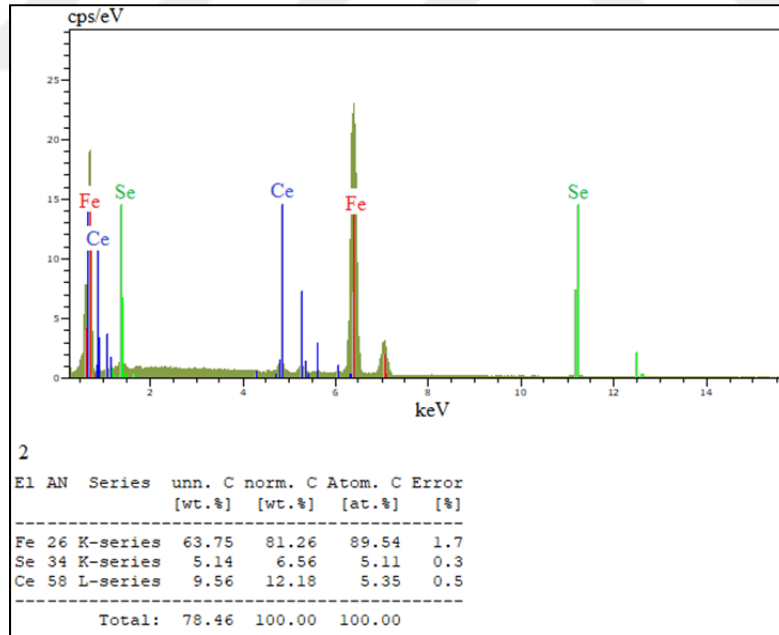
Şekil 4.134. CeFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneğinin a) 2.50 KX, b) 5.00 KX ve c) 10.00 KX büyütmelerde alınan SEM görüntüleri

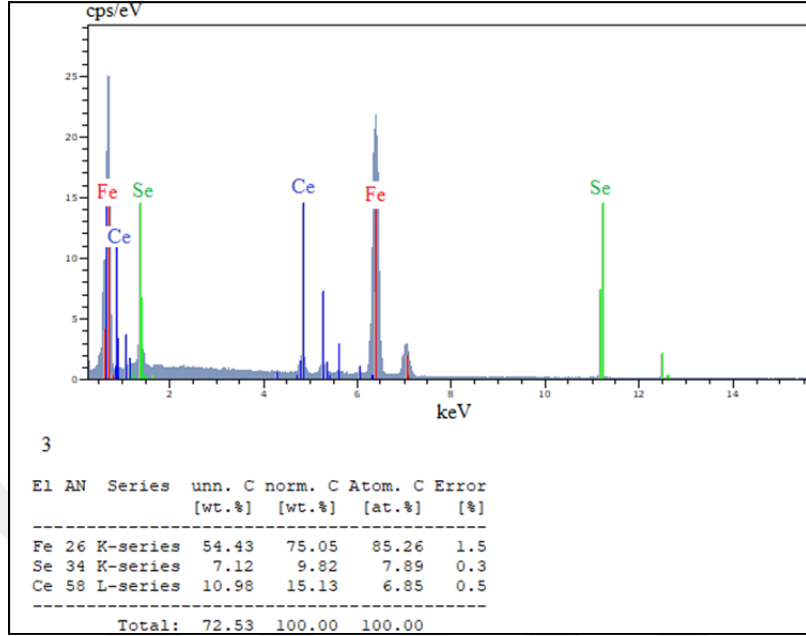
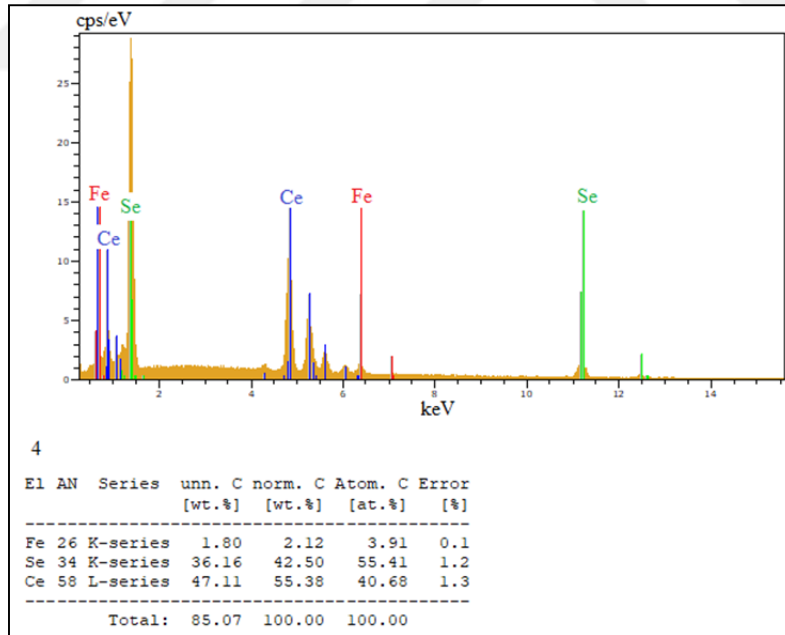
Şekil 4.134'daki SEM görüntülerinden görüldüğü üzere  $CeFe_2Se_2$  örneği birbiri üstüne istiflenmiş düzlemlerin oluşmadığı farklı fazlara karşılık gelen beyaz bölgeler ve bu bölgeler içerisinde de top şeklindeki siyah bölgelerden oluşmuştur.

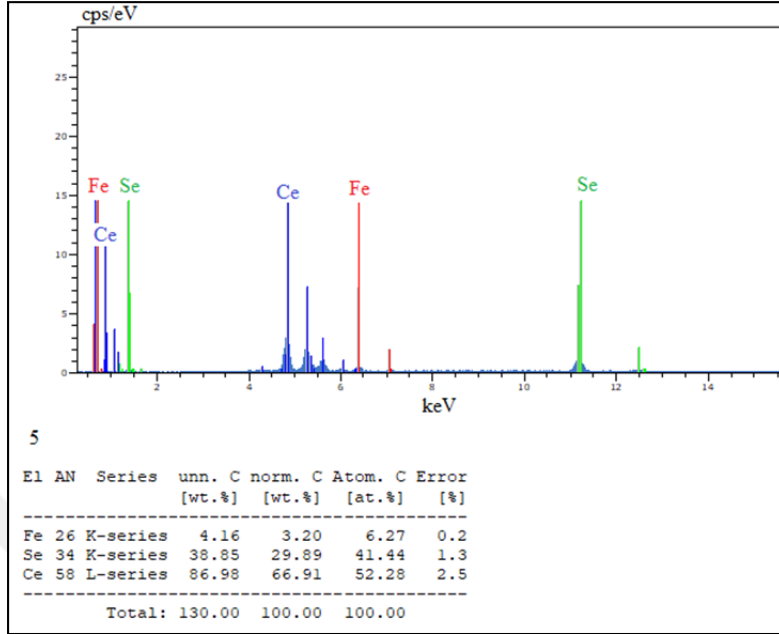
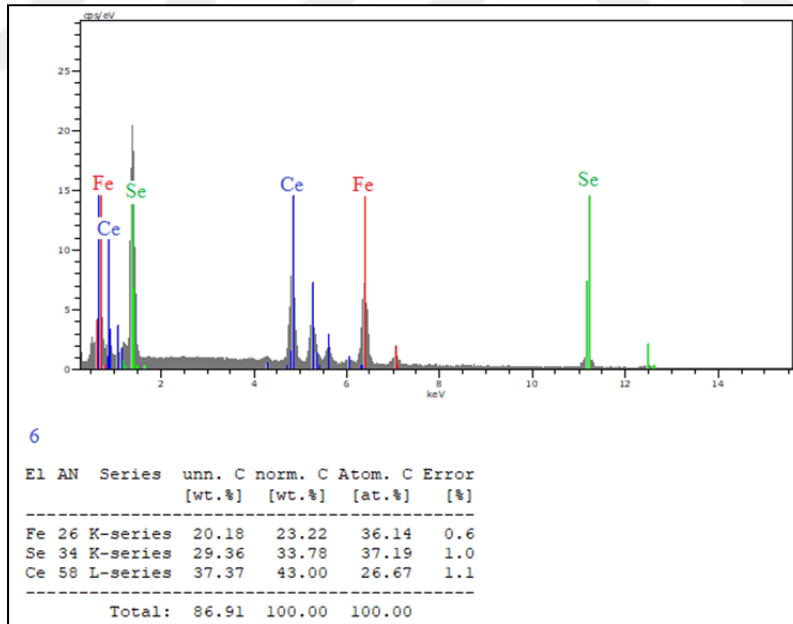
Örneğin elementel analizleri SEM'e bağlı EDS ile incelenmiştir.  $CeFe_2Se_2$  örneği için EDS analizinde kullanılan bölgeler Şekil 4.135'deki SEM fotoğraflarında verilmiştir. Seçilen altı bölgedeki elementlerin EDS sonuçları ve yüzde atomik oranları Şekil 4.136-141'de sırasıyla verilmiştir.



Şekil 4.135.  $CeFe_2Se_2$  örneği için EDS analizinde kullanılan bölgeler

Şekil 4.136. CeFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneği için seçilen 1. bölgenin EDS analiziŞekil 4.137. CeFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneği için seçilen 2. bölgenin EDS analizi

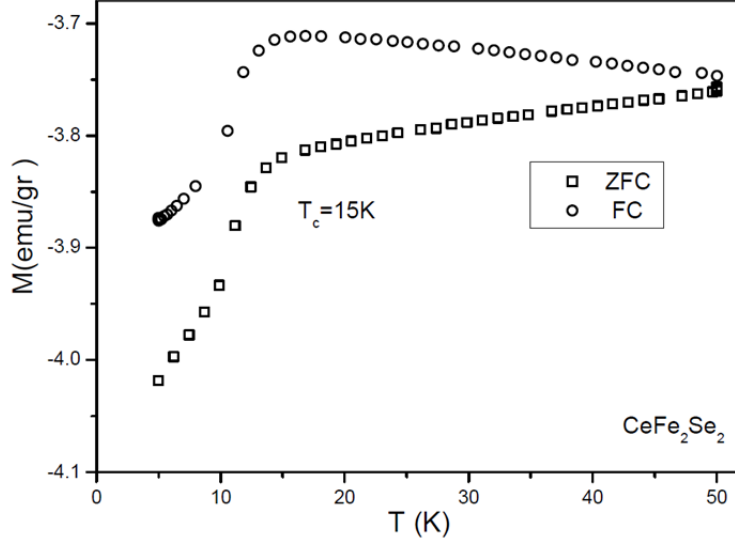
Şekil 4.138. CeFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneği için seçilen 3. bölgenin EDS analiziŞekil 4.139. CeFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneği için seçilen 4. bölgenin EDS analizi

Şekil 4.140. CeFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneği için seçilen 5. bölgenin EDS analiziŞekil 4.141. CeFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneği için seçilen 6. bölgenin EDS analizi

Seçilen bölgelerden 1, 4 ve 5. bölgelerin EDS analizi incelendiğinde Fe miktarı az kalmış ve SEM fotoğraflarında beyaz bölgelere karşılık gelen bu bölgelerin  $CeSe_{1.75}$  fazına karşılık geldiği söylenebilir. Öte yandan 2 ve 3. bölgelerde de Ce ve Se miktarları az kalmış Fe miktarı da %90'lara kadar yüksek bulunmuştur. SEM fotoğraflarında beyaz bölgeler içerisinde yer yer yerleşmiş top şeklindeki siyah bölgelere karşılık gelen bu bölgeler reaksiyona girmeyen Fe içerikli bölgelerdir. Son olarak 6. bölgenin EDS bulgusundan  $Ce_{0.8}(FeSe)_{1.08}$  kompozisyonuna ulaşılmıştır. Sonuç olarak EDS analizi,  $CeFe_2Se_2$  örneği boyunca  $CeSe_{1.75}$  ve Fe gibi kümelenmeler oluşmuş ve  $CeFe_2Se_2$  başlangıç stokiometrisine karşılık gelen bölgelere rastlanılmamıştır.

#### 4.6.3. $CeFe_2Se_2$ Örneğinin Manyetik Ölçüm Sonuçları

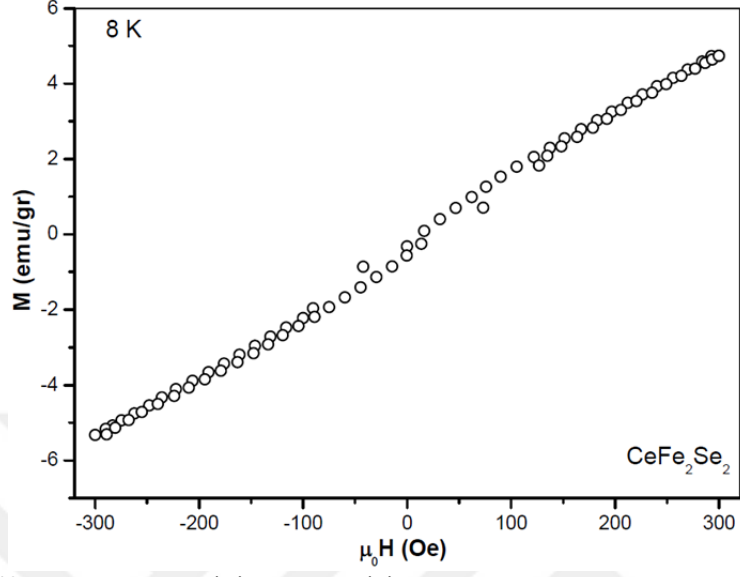
$CeFe_2Se_2$  örneğinin 5-50K aralığında ve 10 Oe alan altında ölçülen sıcaklığa bağlı sıfır alan soğutmalı (ZFC) ve alan soğutmalı (FC) manyetizasyonları Şekil 4.142'de gösterilmiştir. ZFC ve FC eğrileri incelendiğinde 15 K civarında bir faz geçişinin olduğunu rahatlıkla söyleyebiliriz. Bu geçişin süperiletkenlik geçişi olabileceği düşünülmektedir. Ayrıca ölçülen sıcaklık aralığında ölçülen FC ve ZFC eğrilerinden alınan sinyalin diyamanyetik türde olduğu da görülmektedir.



Şekil 4.142.  $\text{CeFe}_2\text{Se}_2$  örneğinin  $M$ - $T$  eğrisi

$\text{CeFe}_2\text{Se}_2$  örneğinin manyetizasyon-manyetik alan eğrileri 8 K için Şekil 4.143'de verilmiştir. Eğriden örneğin ferromanyetik tipte davrandığı söylenebilir. Malzeme boyunca reaksiyona girmemiş Fe atomlarının varlığı bu ferromanyetik karakterin ortaya çıkmasına öncülük ettiği düşünülebilir.  $M$ - $H$  eğrilerinde Meissner etkisinin gözlenmemesi malzeme içerisinde görülen süperiletken hacmin küçük olduğu ve malzemenin toptan diyamanyetik karakter gösterecek kadar güçlü bir süperiletken hacme sahip olmadığı sonucuna varılabilir.





Şekil 4.143.  $\text{CeFe}_2\text{Se}_2$ örneğinin  $M$ - $H$  eğrisi

## 5. SONUÇLAR VE ÖNERİLER

### 5.1. Sonuçlar

FeSe kristalinin faz diyagramına bakıldığında selenyum miktarına bağlı olarak  $\alpha$ -Fe<sub>7</sub>Se<sub>8</sub>,  $\beta$ -Fe<sub>7</sub>Se<sub>8</sub>,  $\delta$ ,  $\gamma$ ,  $\gamma'$ , FeSe<sub>2</sub> ve  $\beta$ -FeSe gibi belli başlı fazların varlığı görülebilir. Bu fazlar içerisindeki  $\beta$ -FeSe fazının 8 K'de süperiletken duruma geçtiğinin keşfedilmesiyle birlikte bu faza olan ilgi artmış ve birçok çalışma yayımlanmıştır.

Bu tez kapsamında ilk olarak FeSe örnekleri üretilmiştir. FeSe örnekleri iki farklı ısıl işlem süreci uygulanarak hazırlanmıştır. Örnek-A olarak isimlendirilen FeSe örneği, iki kez 780°C'de bir kez de 400°C'de sinterlenerek hazırlanmıştır. Örnek-B olarak isimlendirilen FeSe örneğinin ısıl işlem sürecinde 1000°C'ye çıkılmış FeSe'nin sıvı fazından FeSe elde edilmeye çalışılmıştır. Örneklerin XRD desenleri incelendiğinde gözlenen piklerin birbirinden oldukça farklı olduğu görülür. 780°C'de sinterlenen Örnek-A'nın XRD desenlerinde  $\delta$  fazına ait yansımalar gözlenmiştir. Diğer taraftan Örnek-B'de baskın olan süperiletken  $\beta$ -FeSe fazına ait yansımaların yanında  $\delta$  fazına ait nispeten düşük yansımalar da gözlenmiştir.

İki farklı soğutma hızında (yavaş soğutma (0.8°C/sa) ve hızlı soğutma (4.5°C/sa) hazırlanan FeTe<sub>0.6</sub>Se<sub>0.4</sub> tek kristallerin yapısal ve süperiletkenlik özellikleri incelenmiştir. Hızlı soğutma sistemin çoklu faz davranışını artırarak ikili fazların oluşmasına sebep olmuştur. Hızlı soğutulan örnekte FeSe ve FeTe'nin çeşitli ikili fazları gözlenmiş olup bu fazların sistemde etkili çivileme merkezleri oluşturarak histerezis eğrilerinin genişlemesine ve kritik akım yoğunluğunun artmasına sebep olduğu düşünülmüştür. Bu bağlamda FeTe<sub>0.6</sub>Se<sub>0.4</sub> kristallerinde süperiletkenlik özelliği açısından (4.5°C/sa) soğutma oranı, (0.8°C/sa) oranına göre daha uygun bir soğutma hızıdır.

Üretilen (K<sub>0.95</sub>Na<sub>0.05</sub>)<sub>0.8</sub>Fe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub>, (K<sub>0.93</sub>Na<sub>0.07</sub>)<sub>0.8</sub>Fe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub>, (K<sub>0.8</sub>Na<sub>0.2</sub>)<sub>0.8</sub>Fe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub>, (K<sub>0.75</sub>Na<sub>0.25</sub>)<sub>0.8</sub>Fe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> ve (K<sub>0.7</sub>Na<sub>0.3</sub>)<sub>0.8</sub>Fe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub> örneklerinin hepsinde birbiri içinde

büyüyen iki faz tespit edilmiştir. Bunlar antiferromanyetik düzenli ve boşluklu yapıdaki Fe düzlemine sahip  $A_2Fe_4Se_5$  (A: Alkali Metal) fazı ve bu faz içerisinde hacimce daha küçük olan süperiletken fazıdır.  $(K_{0.7}Na_{0.3})_{0.8}Fe_2Se_2$  örneğinde ayrıca  $\beta$ -FeSe fazı da büyümüştür.

$BaFe_2Se_2$  örneğinin XRD ve SEM-EDS analizinden FeSe ve  $BaFe_2Se_3$  fazlarını içerdiği anlaşılmıştır. Akı (flux) olarak FeSe kullanıldığından FeSe fazına karşılık gelen bölgelere rastlanılmıştır. Ancak ilginç olan  $BaFe_2Se_2$  stokiyometrik oranlarda başlanılmasına rağmen reaksiyon sonunda  $BaFe_2Se_3$  kompozisyonuna ulaşılmıştır. Buradan da FeSe akısı içerisinde  $BaFe_2Se_2$  kompozisyonundan ziyade  $BaFe_2Se_3$  yapısının büyümeye daha elverişli olduğu söylenebilir.

$SrFe_2Se_2$  örneği SrSe, Fe ve Se başlangıç malzemeleri kullanılarak hazırlanmıştır. XRD ve SEM-EDS analizinden başlangıç olarak kullanılan SrSe kimyasalının Fe ve Se içerisinde ayrışmadığı sonucuna varılmıştır. Bu sebeple  $SrFe_2Se_2$  örneği çok fazlı bir davranış sergilemiş  $SrFe_2Se_2$  stokiyometresine ulaşamamıştır. Örneğin ferromanyetik tipte bir davranış sergilediği  $M-H$  eğrisinden anlaşılmıştır.

$CeFe_2Se_2$  örneği, CeSe<sub>2</sub>, Fe ve Se başlangıç malzemeleri kullanılarak hazırlanmıştır. Yapılan XRD, SEM-EDS analizlerinden  $CeFe_2Se_2$  örneği boyunca CeSe<sub>1.75</sub> ve Fe gibi fazlar oluşmuş  $CeFe_2Se_2$  başlangıç stokiyometrisine karşılık gelen bölgelere rastlanılmamıştır. Örneğin manyetizasyon-sıcaklık grafiğinde 15 K süperiletken tipte bir geçiş gözlenmiş ancak  $M-H$  ölçümlerinde Meissner etkisinin gözlenmemesi örnek içerisinde süperiletkenlik hacmin az miktarda olduğunu göstermiştir.

## 5.2. Öneriler

Bu tez kapsamında FeSe'nin  $\beta$  ve  $\delta$  fazları, iki farklı soğutma hızıyla hazırlanan  $FeSe_{0.6}Te_{0.4}$ ,  $(K_{1-x}Na_x)_{0.8}Fe_2Se_2$ ,  $BaFe_2Se_2$ ,  $SrFe_2Se_2$  ve  $CeFe_2Se_2$  örnekleri hazırlanmıştır. Bu örneklerden  $\beta$ -FeSe örneği büyütülürken örnek içerisinde çok az miktarda  $\delta$  fazı da büyümüştür. Sinterleme işleminde soğutma

hızı olarak 10°C/sa değeri alınmıştır. Soğutma hızını biraz daha düşürüp 5°C/sa, 1°C/sa ve 0.5°C/sa gibi değerler alınarak soğutma hızının düşürülmesinin kristal içerisindeki  $\beta$  ve  $\delta$  fazlarının miktarına olan etkisi incelenebilir.

Sinterleme işlemi sırasında uygulanan soğutma hızlarının  $\text{FeTe}_{0.6}\text{Se}_{0.4}$  kristallerin yapısal ve süperiletkenlik özelliklerini ciddi şekilde etkilediğinin gözlenmesi farklı soğutma hızlarının da denenmesini akla getirebilir. Örneğin 0.8 °C/sa soğutma hızından daha düşük bir soğutma hızının sistemdeki süperiletkenlik faza olan etkisi incelenebilir.

$(\text{K}_{1-x}\text{Na}_x)_{0.8}\text{Fe}_2\text{Se}_2$  örneklerindeki süperiletkenlik fazın artırılması için K tarafına Rb, Cs gibi farklı katkılar yapılarak değişik ısıl işlem süreçleri uygulanabilir.

$\text{BaFe}_2\text{Se}_2$ ,  $\text{SrFe}_2\text{Se}_2$  ve  $\text{CeFe}_2\text{Se}_2$  başlangıç stokiyometrilerine ulaşılmadığı için daha farklı ısıl işlemler uygulanabilir. Buna ek olarak başlangıç malzemeleri ya da kullanılan akılar değiştirilebilir. Bunun yanında sıvı amonyak ya da Bridgman yöntemi gibi farklı kristal büyütme teknikleri de denenebilir.



## KAYNAKLAR

- Abrikosov, A. A., 1957. On the magnetic properties of superconductors of the second group. *Soviet Physics JETP*, 32, 1442-1452.
- Akça, G., 2018. Doktora Tezi, Çukurova Üniversitesi.
- Bardeen, J., Cooper, L. N., Schrieffer, J. R., 1957. Theory of superconductivity. *Phys. Rev.*, 108, 5, 1175-1204.
- Bao, W., Huang, Q.Z., Chen, G.F., Green, M.A., Wang, D.M., He, J.B., Qui, Y.M., 2011. A novel large moment antiferromagnetic order in  $K_{0.8}Fe_{1.6}Se_2$  superconductor. *Chin. Phys. Lett.*, 086104.
- Bean, C.P., 1964. Magnetization of high field superconductors. *R. Mod. Phys.*, 36, 31.
- Bednorz, J.G., Müller, K.A., 1986. Possible high  $T_c$  superconductivity in the Ba-La-Cu-O system. *Z. Phys. B*, 64 (2), 189–193.
- Buckel, W., Kleiner, R., 2004. Superconductivity. 2nd Edition. Wiley-Vch Verlag. Weinheim, Germany, 461s.
- Chen, G.F., Li, Z., Wu, D., Li, G., Hu, W.Z., Dong, J., Zheng, P., Luo, J. L., Wang, N.L., 2008. Superconductivity at 41K and its competition with spin-density-wave instability in layered  $CeO_{1-x}F_xFeAs$ . *PRL*, 100, 247002.
- Chen, X.H., Wu, T., Wu, G., Liu, R.H., Chen, H., Fang, D.F., 2008. Superconductivity at 43K in  $SmFeAsO_{1-x}F_x$ . *Nature*, 453, 761.
- Diacon, H.F., 1900. On the selenide of the iron. *Compt. Rend.*, 130, 1710-1712.
- Fang, M.H., Pham, H.M., Qian, B., Liu, T.J., Vehstedt, E.K., Liu, Y., Spinu, L., Mao, Z.Q., 2008. Superconductivity close to magnetic instability in  $Fe(Se_{1-x}Te_x)_{0.82}$ . *Phys. Rev. B*, 78, 224503.
- Ford, P.J., Saunders, G.A., 2004. The Rise of Superconductivity. CRC Press, Boca Raton, London, New York, Washington DC, 227s.
- Fossheim, K., Sudbo, A., 2004. Superconductivity Physics and Applications. John Wiley & Sons Ltd. England, 427s.

- Fröhlich, H., 1950. Theory of the superconducting state. I. The ground state at the absolute zero of temperature. *Phys. Rev.*, 79, 845.
- Guo, J., Jin, S., Wang, G., Wang, S., Zhu, K., Zhou, T., He, M., Chen, X., 2010. Superconductivity in the iron selenide  $K_xFe_2Se_2$  ( $0 \leq x \leq 1.0$ ). *Phys. Rev. B*, 82, 180520.
- Gündoğmuş, H., 2013. Doktora Tezi, Çukurova Üniversitesi.
- Gürsul, M., 2013. Yüksek Lisans Tezi, Çukurova Üniversitesi.
- Hanna, T., Muraba, Y., Matsuishi, S., Igawa, N., Kodama, K., Shamoto, S., Hosono, H., 2011. Hydrogen in layered iron arsenides: Indirect electron doping to induce superconductivity. *Phys. Rev. B*, 84, 024521.
- Hirone, T., Maeda, S., 1954. On the Ferrimagnetism of Iron Selenides. *Journal of Society of Japan*, 9,4, 496.
- Horigane, K., Takeshita, N., Lee, C.H., Hiraka, H., Yamada, K., 2009. First Investigation of Pressure Effects on Transition from Superconductive to Metallic Phase in  $FeSe_{0.5}Te_{0.5}$ . *J. Phys. Soc. Japan*, 78, 063705.
- Hosono, H., Yamamoto, A., Hiramatsu, H., Ma, Y., 2018. Recent advances in iron-based superconductors toward applications. *Materials Today*, 21, 3, 278-302.
- Hsu, F.C., Luo, J.Y., Yeh, K.W., Chen, T.K., Huang, T.W., Wu, P.M., Lee, Y.C., Huang, Y.L., Chu, Y.Y., Yan, D.C., Wu, M.K., 2008. Superconductivity in the PbO-type structure  $\alpha$ -FeSe. *Proc. Natl. Acad. Sci., U. S. A.*, 105, 14262–14264.
- Hu, R., Lei, H., Abeykon, M., Bozin, E.S., Billinge, S., Warren, J.B., Siegrist, T., Petrovic, C., 2011. Synthesis, crystal structure, and magnetism of  $\beta$ - $Fe_{1.00(2)}Se_{1.00(3)}$  single crystals. *Phys. Rev. B*, 83, 224502.
- Johnson P.D., Xu, G., Yin, W.G. 2015. Iron-Based Superconductors. Springer International Publishing, Switzerland, 436p.
- Josephson, B.D., 1962. Possible new effects in superconductive tunneling. *Phys. Letters*, 1251.

- Kamihara, Y., Hiramatsu, H., Hirano, M., Kawamura, R., Yanagi, H., Kamiya, T., Hosono, H., 2006. Iron-Based Layered Superconductor: LaOFeP. *J. Am. Chem. Soc.*, 128, 31, 10012-10013.
- Kamihara, Y., Watanabe, T., Hirano, M., Hosono, H., 2008. Iron-Based Layered Superconductor  $\text{La}[\text{O}_{1-x}\text{F}_x]\text{FeAs}$  ( $x=0.05-0.12$ ) with  $T_c=26\text{K}$ . *J. Am. Chem. Soc.*, 130, 2396-3297.
- Kantarıcı Güler, N., 2016. Doktora Tezi, Çukurova Üniversitesi.
- Kantarıcı Güler, N., Özçelik, B., Ekicibil, A., Onar, K., Yakıncı, M.E., Okazaki, H., Takeya, H., Takano, Y., 2015. Structure and physical properties of iron selenide  $\text{K}_x\text{Fe}_{2-y}\text{Se}_2$ . *Material Chemistry and Phys.*, 164, 157-162.
- Lei, H., Petrovic, C., 2011. Anisotropy in transport and magnetic properties of  $\text{K}_{0.64}\text{Fe}_{1.44}\text{Se}_2$ . *Phys. Rev. B*, 83, 184504.
- Li, M.T., Chen, L., Feng, Z.J., Deng, D.M., Kang, B.J., Cao, S.X., Lin, C.T., Zhang, J.C., 2014. Anisotropy characteristics and critical behaviors in Mn doped  $\text{K}_{0.8}\text{Fe}_2\text{Se}_2$  single crystal. *Physica C*, 506, 40-46.
- Li, S., Cruz, C., Huang, Q., Chen, G.F., Xia, T.L., Luo, J.L., Wang, N.L., Dai, P., 2009. Structural and magnetic phase transitions in  $\text{Na}_{1-\delta}\text{FeAs}$ . *Phys. Rev. B*, 80, 020504(R), 1-4.
- Liu, R.H., Luo, X.G., Zhang, M., Wang, A.F., Ying, J.J., Wang, X.F., Yan, Y.J., Xiang, Z.J., Cheng, P., Ye, G.J., Li, Z.Y., Chen, X.H., 2011. Coexistence of superconductivity and antiferromagnetism in single crystals  $\text{A}_{0.8}\text{Fe}_{2-y}\text{Se}_2$  ( $A= \text{K}, \text{Rb}, \text{Cs}, \text{Tl/K}, \text{ and Tl/Rb}$ ): Evidence from magnetization and resistivity. *Europhys. Lett.*, 94, 27008.
- Liu, Y., Xing, Q., Dennis, K.W., McCallum, R.W., Lograsso, T.A., 2012. Evolution of precipitate morphology during heat treatment and its implications for the superconductivity in  $\text{K}_x\text{Fe}_{1.6+y}\text{Se}_2$  single crystals. *Phys. Rev.*, 86, 144507.
- Luetkens, H., Klauss, H.H., Kraken, M., Litterst, F.J., Dellmann, T., Klingeler, R., Hess, C., Khasanov, R., Amato, A., Baines, C., Kosmala, M., Schuman,



- O.J., Braden, M., Borrero, J.H., Leps, N., Kondrat, A., Behr, G., Werner, J., Büchner, B., 2009. The electronic phase diagram of the  $\text{LaO}_{1-x}\text{F}_x\text{FeAs}$  superconductor. *Nat. Mater.* 8, 305–309.
- Margadonna, S., Takabayashi Y., McDonald M.T., Kasperkiewicz K., Mizuguchi, Y., Takano, Y., Fitch, A.N., Suard, E., Prassides, K., 2008. Crystal structure of the new  $\text{FeSe}_{1-x}$  superconductor. *Chem. Commun.*, 5607-5609.
- Maxwell, E., 1950. Isotope effect in the superconductivity of mercury. *Phys.Rev.* 78, 477.
- McQueen, T.M., Huang, Q., Ksenofontov, V., Felser, C., Xu, Q., Zandbergen, H., Hor, Y.S., Allred, J., Williams, A.J., Qu, D., Checkelsky, J., Ong, N.P., Cava, R.J., 2009. Extreme sensitivity of superconductivity to stoichiometry in  $\text{Fe}_{1+\delta}\text{Se}$ . *Phys. Rev. B*, 79, 014522.
- McQueen, T.M., Williams, A.J., Stephens, P.W., Tao, J., Zhu, Y., Ksenofontov, V., Casper, F., Felser, C., Cava, R.J., 2009. Tetragonal-to-orthorhombic structural phase transition at 90K in the superconductor  $\text{Fe}_{1.01}\text{Se}$ . *Phys. Rev. Lett.*, 103, 057002.
- Medvedev, S., McQueen, T.M., Troyan, I.A., Palasyuk, T., Eremets, M.I., Cava, R.J., Naghavi, S., Casper, F., Ksenofontov, V., Wortmann, G., Felser, C., 2009. Electronic and magnetic phase diagram of  $\alpha\text{-Fe}_{1.01}\text{Se}$  with superconductivity at 36.7K under pressure *Nature Mater.*, 8, 630-633.
- Meissner, W., Ochsenfeld, R., 1933. Ein neuer Effekt bei eintritt der Supraleitfähigkeit. *Naturwissenschaften*, 21, 787-788.
- Mizuguchi, Y., Tomioka, F., Tsuda, S., Yamaguchi, T., Takano, Y., 2008. Superconductivity at 27K in tetragonal FeSe under high pressure. *Appl.Phys. Lett.*, 93, 152505.
- Mizuguchi, Y., Takano, Y., Fitch, A.N., Suard, E., Prassides, K., 2008. Crystal structure of the new  $\text{FeSe}_{1-x}$  superconductor. *Chem. Commun.* 5607.

- Mizuguchi, Y., Tomioka, F., Tsuda, S., Yamaguchi, T., Takano, Y., 2009. Substitution effects on FeSe superconductor. *J. Phys. Soc. Japan*, 78, 7, 074712.
- Mizuguchi, Y., Takano, Y., 2010. Review of Fe chalcogenides as the simplest Fe-Based superconductor. *J. Phys. Soc. Japan*, 79, 102001.
- Miyazawa, K., Kihou, K., Shirage, P.M, Lee, C.H., Kito, H., Eisaki, H., Iyo, A., 2009. Superconductivity above 50 K in  $\text{LnFeAsO}_{1-y}$  (Ln= Nd, Sm, Gd, Tb, and Dy) synthesized by high-pressure technique. *J. Phys. Soc. Jpn.*, 78, 34712.
- Mourachkine, A., 2004. Room-Temperature Superconductivity, First Edition, Cambridge International Science Publishing, Cambridge, UK, 310s.
- Okamoto, H., 1991. The Fe-Se (Iron-Selenium) System. *J. Phase Equilib.*, 12, 383.
- Onar, K., 2017. Doktora Tezi, İnönü Üniversitesi.
- Omar, M. A., 1993. Elementary Solid State Physics, Revised Printing, Addison-Wesley Publishing Company, 669s.
- Onnes, H. K., 1911. The superconductivity of Mercury. *Leiden Comm.*, 120b, 122b, 124c.
- Ozaki, T., Takeya, H., Deguchi, K., Demura, S., Hara, H., Watanabe, T., Denholme, S.J., Okazaki, H., Fujioka, M., Yokota, Y., Yamaguchi, T., Takano, Y., 2013. Evolution of superconductivity in isovalent Te-substituted  $\text{K}_x\text{Fe}_{2-y}\text{Se}_2$  crystals. *Supercond. Sci. Technol.*, 26, 055002.
- Ozaki, T., Takeya, H., Okazaki, H., Deguchi, K., Demura, S., Kawasaki, Y., Hara, H., Watanabe, T., Yamaguchi, T., Takano, Y., 2012. One step synthesis of  $\text{K}_x\text{Fe}_{2-y}\text{Se}_2$  single crystal for high critical current density. *EPL*, 98, 27002.
- Özabacı, M., 2013. Doktora Tezi, İnönü Üniversitesi.
- Parker, D.R., Pitcher, M.J., Baker, P.J., Franke, I., Lancaster, T., Blundell, S.J., Clarke, S.J., 2009. Structure, antiferromagnetism and superconductivity of the layered iron arsenide NaFeAs. *Chem. Commun.*, 16, 2189-2191.

- Ren, Z.A., Lu, W., Yang, J., Yi, W., Shen, X.L., Li, Z.C., Che, G.C., Dong, X.L., Sung, L.L., Zhou, F., Zhao Z.X., 2008. Superconductivity at 55K in Iron-Based F-Doped Layered Quaternary Compound  $\text{Sm}(\text{O}_x\text{F}_{1-x})\text{FeAs}$ . *Chin. Phys.Lett.*, 25, 2215-2216.
- Reynolds, C.A., Serin, B., Wright, W.H., Nesbitt, L.B., 1950. Superconductivity of Isotopes of Mercury. *Phys. Rev.*, 78, 487.
- Ricci, A., Poccia, N., Campi, G., Joseph, B., Arrighetti, G., Barba, L., Reynolds, M., Burghammer, M., Takeya, H., Mizuguchi, Y., Takano, Y., Colapietro, M., Saini, N.L., Bianconi, A., 2011. Nanoscale phase separation in the iron chalcogenide superconductor  $\text{K}_{0.8}\text{Fe}_{1.6}\text{Se}_2$  as seen via scanning nanofocused x-ray diffraction. *Phys. Rev. B*, 84, 060511.
- Rotter, M., Tegel, M., Johrendt, D., 2008. Superconductivity at 38 K in the iron arsenide  $(\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x)\text{Fe}_2\text{As}_2$ . *Phys. Rev. Lett.*, 101, 107006.
- Rotter, M., Tegel, M., Johrendt, D., 2008. Spin-density-wave anomaly at 140 K in the ternary iron arsenide  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ . *Phys. Rev. B*, 78, 020503(R).
- Sales, B.C., Sefat, A.S., McGuire, M.A., Jin, R.Y., Mandrus, D., Mozharivskyj, 2009. Bulk superconductivity at 14 K in single crystals of  $\text{Fe}_{1+y}\text{Te}_x\text{Se}_{1-x}$ . *Phys. Rev. B*, 79, 094521.
- Saxena, A. K., 2010. High-Temperature Superconductors, First Edition, Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 218s.
- Sheahen, T.P., 2002. Introduction to High-Temperature Superconductivity. Kluwer Academic Publishers, 580s.
- Shimizu, K., Kimura, T., Furomoto, S., Takeda, K., Kontani, K., Omuki, Y., Amaya, K., 2001. Superconductivity in the nonmagnetic state of iron under pressure. *Letters to Nature*, 412, 316-318.
- Schuster, W., Ipser, H., Komarek, K.L., 1979. Thermodynamic properties of Iron-Selenium Alloys. *Monatshefte für Chemie*, 110, 1171-1188.

- Takanashi, H., Igawa, K., Arii, K., Kamihara, Y., Hirano, M., Hosono, H., 2008. Superconductivity at 43K in an iron-based layered compound  $\text{LaO}_{1-x}\text{F}_x\text{FeAs}$ . *Nature*, 453, 376-378.
- Wang, D.M., He, J.B., Xia, T.L., Chen, G.F., 2011. Effect of varying iron content on the transport properties of the potassium-intercalated iron selenide  $\text{K}_x\text{Fe}_{2-y}\text{Se}_2$ . *Phys. Rev. B*, 83, 132502.
- Wang, N.L., Hosono, H., Dai, P., 2013. *Materials, Properties, and Mechanisms Iron-Based Superconductors*. Pan Stanford Publishing, Boca Raton, 557p.
- Wang, X.C., Liu, Q.Q., Lv, Y.X., Gao, W.B., Yang, L.X., Yu, R.C., Li, F.Y., Jin, C.Q., 2008. The superconductivity at 18K in LiFeAs system. *Solid State Commun.*, 148, 538-540.
- Wang, Z., Cai Y., Yang H.X., Tian H.F., Wang Z.W., Ma C., Chen Z., Li J. Q., 2013. Microstructure and structural phase transitions in iron-based superconductors. *Chin. Phys. B* Vol. 22, No. 8, 087409.
- Wang, Z., Song Y.J., Shi, H.L., Wang, Z.W., Chen, Z., Tian, H.F., Chen, G.F., Guo, J.G., Yang, H.X., Li, J.Q., 2011. Microstructure and ordering of iron vacancies in the superconductor system  $\text{K}_y\text{Fe}_x\text{Se}_2$  as seen via transmission electron microscopy. *Phys. Rev. B* 83 140505.
- Wang, Z.W., Wang, Z., Song, Y.J, Ma, C., Cai, Y., Chen, Z., Tian, H.F., Yang, H.X., Chen, G.F., Li, J.Q., 2012. Structural phase separation in  $\text{K}_{0.8}\text{Fe}_{1.6+x}\text{Se}_2$  Superconductors. *J.Phys.Chem.C*, 116, 33, 17847-17852.
- Watanabe, T., Yanagi, H., Kamihara, Y., Kamiya, T., Hirano, M., Hosono., H., 2008. Nickel-based layered superconductor,  $\text{LaNiOAs}$ . *Journal of Solid State Chemistry*, 181, 2117-2220.
- Watanabe, T., Yanagi, H., Kamiya, T., Kamihara, Y., Hiramatsu, H., Hirano, M., Hosono, H., 2007. Nickel-based oxyphosphide superconductor with a layered crystal structure,  $\text{LaNiOP}$ . *Inorg. Chem.*, 46, 181, 7719-7721.
- Yeh, K.W., Huang, T.W., Huang, Y.L., Chen, T.A., Hsu, F.C., Wu, P.M., Lee, Y.C., Chu, Y.Y., Chen, C.L., Luo, J.Y., Yan, D.C., Wu, M.K., 2008.

- Tellurium substitution effect on superconductivity of the  $\alpha$ -phase iron selenide. *Europhys.Lett.*, 84, 37002.
- Yang, C.M., Chen, P.W., Kou, J.C, Diko, P., Chen, I.G., Wu, M.K., 2011. Low porosity FeSe preferred orientation crystal growth by Bridgman Method. *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, 21, 2845.
- Ying, T.P., Chen, X.L., Wang, G., Jin, S.F., Zhou, T.T., Lai, X.F., Zhang, H., Wang, W.Y., 2010. Observation of superconductivity at 30-46 K in  $A_x\text{Fe}_2\text{Se}_2$  (A= Li, Na, Ba, Sr, Ca, Yb, and Eu). *Sci. Rep.*, 2, 426.
- Zhang S.B., Sun Y.P., Zhu X.D., Zhu X.B., Wang B.S., Li G., Lei H.C., Luo X., Yang Z.R., Song W.H., Dai J. M., 2009. Crystal growth and superconductivity of  $\text{FeSe}_x$ . *Supercond. Sci. Technol.*, 22, 015020.
- Zhao, J., Cao, H., Bourret-Courchesne, E., Lee, D.H., Birgeneau, R.J., 2012. Neutron-diffraction measurement of an antiferromagnetic semiconducting phase in the vicinity of the high-temperature superconducting state of  $\text{K}_x\text{Fe}_{2-y}\text{Se}_2$ . *Phys.Rev.Lett.*, 109, 267003.
- <http://www.desy.de/~pschmues/Superconductivity.pdf>
- <http://www.eas.slu.edu/isotope/torch2.jpg>
- <http://www.futurescience.com/manual/sc500.html>
- <http://hoffman.physics.harvard.edu/materials/CuprateIntro.php>
- <http://hoffman.physics.harvard.edu/materials/SCintro.php>
- <http://library.cu.edu.tr/tezler/8864.pdf>
- <http://libratez.cu.edu.tr/tezler/9772.pdf>
- <http://www.mrsec.umn.edu/research/seeds/2011/greven2011.html>
- <http://www.vigorgb.com>

## **ÖZGEÇMİŞ**

05.03.1984 tarihinde Malatya'da doğdu. İlk, orta ve lise öğrenimini Malatya'da tamamladı. 2010 yılında Orta Doğu Teknik Üniversitesi Fen Edebiyat Fakültesi Fizik Bölümü'nden mezun oldu. 2013 yılında Çukurova Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Fizik Anabilim Dalında yüksek lisans eğitimini tamamladı ve aynı yıl Çukurova Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Fizik Anabilim Dalında doktora eğitimine başladı.