

İNÖNÜ ÜNİVERSİTESİ  
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> BİLEŞİĞİNDE Y YERİNE FARKLI İYONİK YARIÇAPA SAHİP Nd  
KATKILANMASININ ETKİSİ

TEKİN İZGİ

105461

YÜKSEK LİSANS TEZİ  
FİZİK ANABİLİM DALI

TC. YÜKSEK ÖĞRETİM KURULU  
DOKÜMANTASYON MERKEZİ

MALATYA  
2001



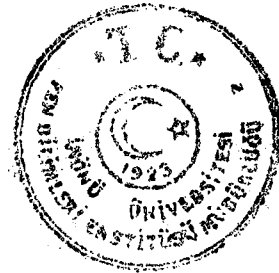
İNÖNÜ ÜNİVERSİTESİ  
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

$YBa_2Cu_3O_{7-8}$  BİLEŞİMİNDE Y YERİNE FARKLI İYONİK YARIÇAPA SAHİP Nd  
KATKILANMASININ ETKİSİ

TEKİN İZGİ

YÜKSEK LİSANS TEZİ  
FİZİK ANABİLİM DALI

MALATYA  
2001



“ Fen Bilimleri Enstitüsü Müdürlüğüne “

İş bu çalışma, jürimiz tarafından Fizik Anabilim Dalında YÜKSEK LİSANS TEZİ olarak kabul edilmiştir.

Başkan...*Doc. Dr. Asiye ULUĞ*.....

*A. Uluğ*

Üye...*Doc. Dr. Ali BAZRİ*.....

*A. Bazri*

Üye...*Yrd. Doc. Dr. H. İbrahim ADIGÜZEL*.....

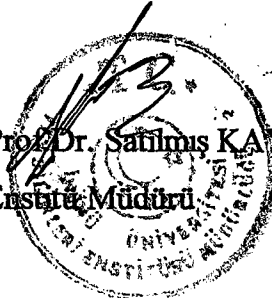
*H. İbrahim Adigüzel*

ONAY

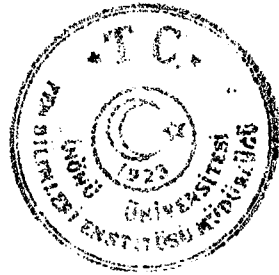
Yukarıdaki imzaların, adı geçen öğretim üyelerine ait olduğunu onaylıyorum.

*12.11/2001*

*Satılmış KAYA*  
Enstitü Müdürü



**Sevgili  
Anneme ve Babama**



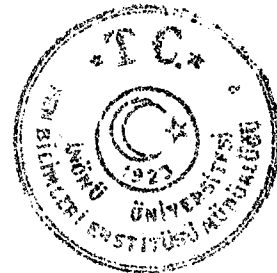
## ÖZET

Bu çalışmada  $YBa_2Cu_3O_{7-x}$  süperiletken sisteminde Yttrium yerine iyonik yarıçapı Yttrium' a göre daha büyük olan Neodmium katkılanmış ve oluşan  $Y_{1-x}Nd_xBa_2Cu_3O_{7-x}$  ( $0 \leq x \leq 1$ ) bileşiklerin yapısal ve elektriksel özellikleri incelenmiştir.

Örneklerin ısı işlem sıcaklıkları DTA ile tespit edilmiş ve ısı işlemlerin tamamı oksijen atmosferinde gerçekleştirilmiştir. Örneklerin elektriksel özellikleri direnç-sıcaklık ölçümleri ile yapısal karakterizasyonları ise XRD ve FTIR ölçümleri kullanılarak yapılmaya çalışılmıştır.

Direnç ölçümleri, örneklerin tamamının süperiletken özellik gösterdiğini ve 80-100 K sıcaklık aralığında geçiş sıcaklığına sahip olduğu görülmüştür. XRD sonuçlarından, örneklerin düşük oranda safsızlığa sahip olduğunu göstermiştir. Örneklerin birim hücre parametreleri XRD verileri kullanılarak elde edilmiş ve artan Nd oranı ile birim hücre parametrelerinin arttığı gözlenmiştir.

$YBa_2Cu_3O_{7-x}$  sisteminde Yttrium yerine Neodmium katkılanması ile  $YBa_2Cu_3O_{7-x}$  bileşiğinde Cu-O eksensel antisimetrik gerilme moduna karşılık gelen  $573 \text{ cm}^{-1}$ ' deki IR bandı  $533 \text{ cm}^{-1}$ ' e, Cu-O simetrik gerilme moduna karşılık gelen  $621 \text{ cm}^{-1}$ ' deki IR bandı ise  $588 \text{ cm}^{-1}$ ' e kaymıştır.



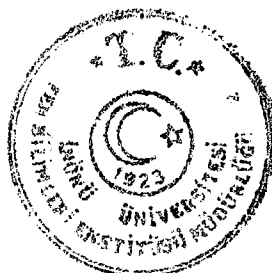
## ABSTRACT

In this study, Neodmium which has bigger ionic radius was used instead of yttrium oxide in the  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  superconductor system and structural and electrical properties of  $\text{Y}_{1-x}\text{Nd}_x\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  ( $0 \leq x \leq 1$ ) compounds were investigated.

Heat treatments of the samples were carried out in DTA under oxygen atmosphere. Electrical properties of samples were determined by Resistance-Temperature (R-T) measurements. XRD and FTIR techniques were used for the structural characterization of samples.

Resistance measurements showed that all samples were superconductors and  $T_c$  (transition temperature) is between 80-100 K. XRD results indicated that samples had low amount of impurity. The unit cell parameters of samples were calculated using XRD data and it was observed that unit cell parameters increases with increasing Nd ratio.

In the  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  system where Nd was used instead of yttrium, Cu-O axial unsymmetric stretching band which appears at  $573 \text{ cm}^{-1}$  shifted to  $533 \text{ cm}^{-1}$  and Cu-O axial symmetric stretching band which appears at  $621 \text{ cm}^{-1}$  to  $588 \text{ cm}^{-1}$  in the IR spectrum.



## TEŞEKKÜR

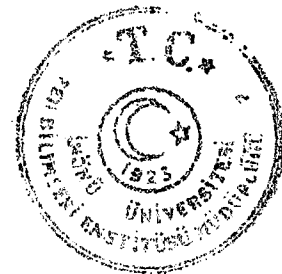
Bu çalışmanın gerçekleşmesinde çok değerli yardımları ve sürekli desteği için tez yöneticisi Sayın Hocam Yrd.Doç.Dr. H. İbrahim ADIGÜZEL' e,

Çalışmalarım süresince gösterdiği ilgi için Bölüm Başkanımız Sayın Prof.Dr. Selçuk ATALAY'a,

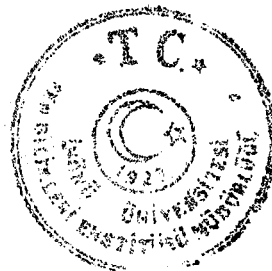
Direnç ölçümlerinin bir kısmının alınmasında yardımcı olan KARADENİZ TEKNİK ÜNİVERSİTESİ Fizik Bölümüne,

Direnç ölçümlerinin bir kısmının alınmasında yardımcı olan Sayın Doç.Dr. M. Eyüphan YAKINCI' ya,

Bana bu çalışmam süresince yardımcı olan aileme ve arkadaşlarıma en içten teşekkürlerimi sunarım.

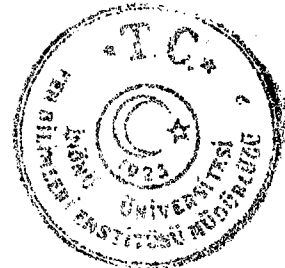


<b>İÇİNDEKİLER DİZİNİ</b>	<b>Sayfa</b>
<b>1. GİRİŞ</b>	1
<b>2. GENEL BİLGİLER</b>	2
2.1. Süperiletkenlik	2
2.2. Süperiletkenliğin Tarihi Gelişimi	2
2.3. Süperiletkenliğin Klasik Gösterimleri	6
2.4. Sıfır Direnç Özelliği	6
2.5. Meissner Etkisi	7
2.6. Süperiletkenliğin Teoriksel Yaklaşımları	9
2.7. London Teorisi	10
2.8. Ginzburg-Landau Teorisi	11
2.9. BCS Teorisi	13
2.10. I. ve II. Tip Süperiletkenler	15
2.11. Kritik Akım Yoğunluğu	17
<b>3. YÜKSEK SICAKLIK SÜPERİLETKENLERİN ÖZELLİKLERİ</b>	19
3.1. $La_{2-x}M_xCuO_{4-y}$ Sistemlerinin Kristal yapıları	19
3.2. $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ bileşiğinin Kristal Yapısı	20
3.3. $NdBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ Bileşiğinin Kristal Yapısı	22
3.4. Bi-Sr-Ca-Cu-O Sistemlerinin Kristal Yapıları	24
3.5. Tl-Ba-Ca-Cu-O Sistemlerinin Kristal Yapıları	25
3.6. Hg-Ba-Ca-Cu-O Sistemlerinin Kristal Yapıları	27
<b>4. YÜKSEK SICAKLIK SÜPERİLETKEN HAZIRLAMA YÖNTEMLERİ</b>	29
4.1. Katıhal Reaksiyon Yöntemi	29
4.2. Cam-Seramik Yöntemi	30



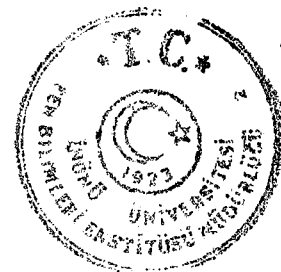


4.3. Sol-Jel Yöntemi	30
<b>5. DENEYSEL YÖNTEMLER</b>	<b>31</b>
5.1. Örneklerin Hazırlanması ve Isıl İşlemler	31
5.2. Diferansiyel Termal Analiz (DTA) Ölçümleri	33
5.3. Direnç Ölçümleri	34
5.4. İnfrared (IR) Soğurma Ölçümleri	36
5.5. X- Işınları Kırınım Desenlerinin Belirlenmesi	37
<b>6. DENEYSEL SONUÇLAR VE SONUÇLARIN TARTIŞILMASI</b>	<b>38</b>
6.1. DTA(Diferansiyel Termal Analiz) Ölçüm Sonuçları	38
6.2. X- Işınları Kırınım Sonuçları	42
6.3. İnfrared (IR) Ölçüm Sonuçları	45
6.4. Direnç Ölçüm Sonuçları	48
<b>7. SONUÇ</b>	<b>55</b>
<b>8. KAYNAKLAR</b>	<b>57</b>

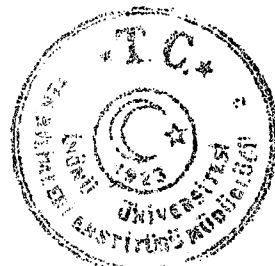


## ŞEKİLLER DİZİNİ

	Sayfa
Şekil 2.1. Civanın direnç-sıcaklık eğrisi.	3
Şekil 2.2. Süperiletkenliğin tarihsel gelişimi.	5
Şekil 2.3. Bir süperiletkenin direnç-sıcaklık eğrisi, $T_{ka}$ , sıfır direncin elde edildiği sıcaklık, $\Delta T$ , geçiş sıcaklık aralığı, $T_{kb}$ , direncin düşmeye başladığı sıcaklık.	7
Şekil 2.4. Magnetik alan $B_c$ 'nin altına düştüğü zaman uzun süperiletken silindirde akımın dışlanması.	8
Şekil 2.5. İki sızan akımın oluşturduğu basit devre düzeneği.	11
Şekil 2.6. Elektron-Elektron etkileşmesi sonucu $q$ dalga vektörlü bir fononun yayılması.	14
Şekil 2.7. a ) I. Tip süperiletkenlerin manyetik alan eğrisi b ) II. Tip süperiletkenlerin manyetik alan eğrisi	16
Şekil 2.8. İdeal olmayan bir örneğin magnetik davranışı.	18
Şekil 3.1. $La_{2-x}M_xCuO_{4-y}$ bileşiğinin kristal yapısı.	20
Şekil 3.2. $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 'in, a) Ortorombik. b) Tetragonal yapısı.	21
Şekil 3.3. $NdBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ bileşiğinde kritik sıcaklığın $\delta$ ile değişimi.	23
Şekil 3.4. $NdBa_2Cu_3O_7$ 'nin kristal yapısı.	24
Şekil 3.5. Bi-Sr-Ca-Cu-O sistemlerinin kristal yapısı.	25
Şekil 3.6. $TlBa_2CaCu_2O_{7-\delta}$ sistemlerin kristal yapısı.	27
Şekil 3.7. $HgBa_2Ca_2Cu_3O_{8+\delta}$ bileşiğinin kristal yapısı.	28
Şekil 5.1. Numunelerin ısı işleme tabi tutuldukları fırının kesiti.	32
Şekil 5.2. Numunelerin tavlama sıcaklık grafiği.	32
Şekil 5.3. DTA cihazının kesit görünümü.	33
Şekil 5.4. KTÜ' deki direnç ölçüm sisteminin şematik gösterimi.	35
Şekil 5.5. Laboratuvarımızdaki direnç ölçüm sisteminin şematik gösterimi.	36
Şekil 6.1. $Y_{0.9}Nd_{0.1}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ 'nın DTA eğrisi.	39
Şekil 6.2. $Y_{0.7}Nd_{0.3}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ 'nın DTA eğrisi.	39
Şekil 6.3. $Y_{0.5}Nd_{0.5}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ 'nın DTA eğrisi.	40
Şekil 6.4. $Y_{0.3}Nd_{0.7}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ 'nın DTA eğrisi.	40
Şekil 6.5. $Y_{0.1}Nd_{0.9}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ 'nın DTA eğrisi.	41

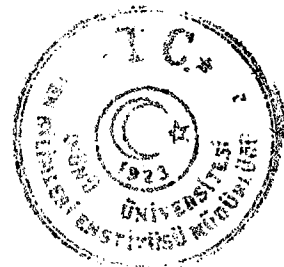


<b>Şekil 6.6.</b> $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 'nın DTA eğrisi.	41
<b>Şekil 6.7.</b> $\text{Y}_{1-x}\text{Nd}_x\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ( $0 \leq x \leq 1$ ) örneklerin x-ışınları kırınım desenleri.	43
<b>Şekil 6.8.</b> $\text{YBa}_{2-x}\text{Nd}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$ ' ün x-ışınları kırınım desenleri.	45
<b>Şekil 6.9.</b> $\text{Y}_{1-x}\text{Nd}_x\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ ( $0 \leq x \leq 1$ ) örneklerin infrared soğurma spektrumları.	47
<b>Şekil 6.10.</b> $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}$ bileşiğinin farklı oksijen miktarları için infrared soğurma spektrumları.	48
<b>Şekil 6.11.</b> $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ bileşiğinin direnç-sıcaklık eğrisi.	49
<b>Şekil 6.12.</b> $\text{Y}_{0,9}\text{Nd}_{0,1}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ 'in direnç-sıcaklık eğrisi.	50
<b>Şekil 6.13.</b> $\text{Y}_{0,8}\text{Nd}_{0,2}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ 'in direnç-sıcaklık eğrisi.	50
<b>Şekil 6.14.</b> $\text{Y}_{0,7}\text{Nd}_{0,3}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ 'in direnç-sıcaklık eğrisi.	51
<b>Şekil 6.15.</b> $\text{Y}_{0,6}\text{Nd}_{0,4}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ 'in direnç-sıcaklık eğrisi.	51
<b>Şekil 6.16.</b> $\text{Y}_{0,5}\text{Nd}_{0,5}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ 'in direnç-sıcaklık eğrisi.	52
<b>Şekil 6.17.</b> $\text{Y}_{0,4}\text{Nd}_{0,6}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ 'in direnç-sıcaklık eğrisi.	52
<b>Şekil 6.18.</b> $\text{Y}_{0,3}\text{Nd}_{0,7}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ 'in direnç-sıcaklık eğrisi.	53
<b>Şekil 6.19.</b> $\text{Y}_{0,2}\text{Nd}_{0,8}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ 'in direnç-sıcaklık eğrisi.	53
<b>Şekil 6.20.</b> $\text{Y}_{0,1}\text{Nd}_{0,9}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ 'in direnç-sıcaklık eğrisi.	54
<b>Şekil 6.21.</b> $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ 'in direnç-sıcaklık eğrisi.	54



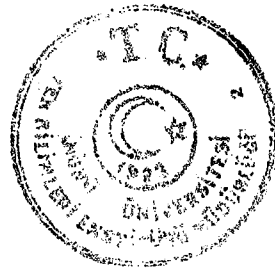
**Çizelge 6.1. X-ışınları toz kırınım desenlerinde elde edilen a,b,c örgü parametreleri**

**48**



## SİMGELER VE KISALTMALAR

- $T_c$  : Süperiletkenliğin geçiş sıcaklığı  
 $B_c$  : Kritik magnetik alan  
YBCO : Yttrium bazlı süperiletkenler  
BSSCO : Bimut bazlı süperiletkenler  
 $J_c$  : Kritik akım yoğunluğu  
 $H_c$  : Kritik magnetik alan  
 $\Delta T_c$  : Geçiş sıcaklık bölge genişliği  
IR : İnfrared  
XRD : X- Işınları kırınım desenleri  
DTA : Termal Diferansiyel Analiz



## 1.GİRİŞ

Bednorz ve Müller' in LaBaCuO sisteminde süperiletkenliğin keşfinden [1] günümüze kadar süperiletkenlik üzerine çok sayıda çalışma yapılmıştır. Bu çalışmaların birçoğu süperiletken bileşikteki bir element yerine başka bir elementin katkılanması şeklinde olmuştur.

Oluşturulan sonuç bileşiğin yapısal ve elektriksel özellikleri incelenerek süperiletkenliği oluşturan mekanizmanın anlaşılması ve süperiletken özelliklerinin geliştirilmesi için çalışılmıştır. Buna bir örnek  $YBa_2Cu_3O_{7.5}$  bileşiğinin elde edilmesi verilebilir.  $La_{2-x}Sr_xCuO$  sistemi normal şartlar altında 40K kritik sıcaklığa sahiptir. Yüksek basınç altında kritik sıcaklık 52 K' e yükselmektedir[2]. Bu bileşiğe basınç uygulama yerine iç basınç oluşturma yoluna gidilmiş ve Lantan yerine daha küçük iyonik yarıçapa sahip Yttrium konulmuştur. Sonuçta 90 K kritik sıcaklığa sahip  $YBa_2Cu_3O_{7.5}$  süperiletken bileşiği elde edilmiştir.

İyi bilinen bir süperiletken bileşiği olan  $YBa_2Cu_3O_{7.5}$  bileşiğinin yapısal ve elektriksel özellikleri üzerine de element katkılanmasının etkisi yoğun bir şekilde incelenmiştir[3-8]. Bu çalışmalarda  $NdBa_2Cu_3O_{7.5}$  bileşiğinin  $YBa_2Cu_3O_{7.5}$  bileşiğinden daha yüksek bir kritik sıcaklığa sahip olduğu ve daha yüksek tersinmez alanlar gösterdiği bilinmektedir[9-10].

Yüksek sıcaklık süperiletkenliğin oluşum mekanizması henüz tam olarak açıklanamamıştır. Bununla birlikte, elektron-fonon etkileşmesinin süperiletkenliğe neden olduğu düşünülmektedir[11-12]. Ayrıca, elektron-fonon etkileşimlerinin süperiletkenliğin oluşumunda önemli bir rol oynadığı üzerine çok sayıda kanıt da vardır. İnfrared soğurma incelemeleri, süperiletkenlerin fononları üzerine büyük ölçüde bilgi sağlamaktadır.  $NdBa_2Cu_3O_{7.5}$  bileşiğinin yapısal ve elektronik özelliklerinin modifiye edilebilmesinin mümkün olması, fonon özelliklerinin incelenmesini ilginç kılmaktadır. Benzer bileşiklerin titreşim spektrumları üzerine bazı sonuçlar olmasına rağmen  $Y_{1-x}Nd_xBa_2Cu_3O_{7.5}$  serileri üzerine tam bir data yoktur. Bu çalışmada,  $Y_{1-x}Nd_xBa_2Cu_3O_{7.5}$  ( $0 \leq x \leq 1$ ) bileşikleri hazırlanarak yapısal ve elektriksel özellikleri incelenmiştir.



## 2. GENEL BİLGİLER

### 2.1. Süperiletkenlik

Katıların elektriksel olarak gösterdikleri ilginç özelliklerden biri süperiletkenliktir. Süperiletkenlik, maddeden maddeye değişen bir kritik sıcaklıkta direncin sıfıra düşmesi olayı olarak adlandırılır.

Madde, oda sıcaklığından kritik sıcaklığa kadar soğutulduğunda direnç aniden sıfıra yaklaşır ve madde normal fazdan, süperiletken faza geçiş yapar. Bu faz geçişi tersinir özelliğe sahiptir. Kritik sıcaklığa süperiletkenlik geçiş sıcaklığı da denilmektedir.

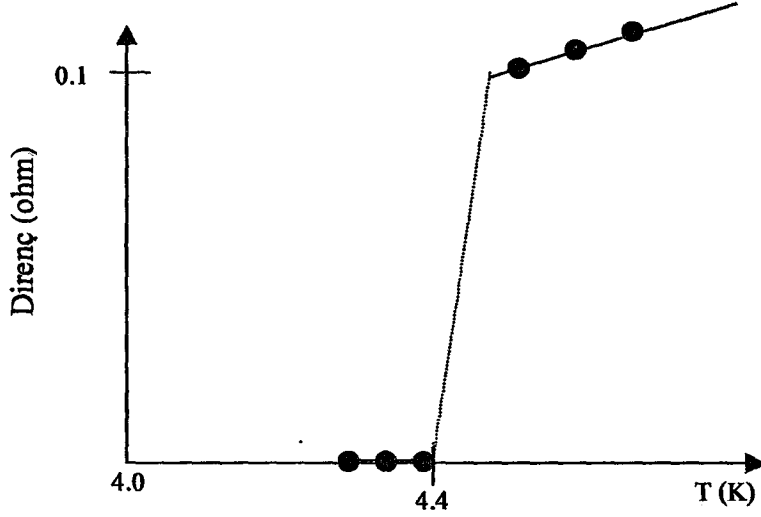
Süperiletkenlerin magnetik özellikleri, en az elektriksel özellikleri kadar ilginçtir. Bunlardan en önemlisi Meissner ve Ochsenfeld tarafından bulunan Meissner olayıdır[13]. Kritik sıcaklığın altında süperiletken maddeye magnetik alan uygulandığında magnetik alan çizgileri madde içerisinden geçmekte, kritik sıcaklığın altında ise magnetik alanın bu değerine kadar (kritik magnetik alan) süperiletken madde magnetik alanı dışlamaktadır. Kritik magnetik alanın üzerindeki magnetik alanda ise süperiletkenlik ortadan kalkmakta ve magnetik alan çizgileri madde içerisinden geçmektedir. Bu olay Meissner olayı olarak adlandırılmaktadır.

### 2.2. Süperiletkenliğin Tarihi Gelişimi

Süperiletkenlik alanındaki ilk çalışmalar, 1911 yılında H. Kamerling Onnes' in düşük sıcaklıklarda metallerin elektriksel iletkenlikleri ile ilgili deneyleri sırasında 4.15 K' de civada süperiletkenliği gözlemesi ile başlamıştır [14].

O dönemde çok saf metallerin direncinin  $T=0$  K' de sıfıra gidebileceği hakkında söylentilerin olması ve damıtma ile oldukça iyi saflaştırılabilmesi nedeniyle, çalışmaları için civa'yı seçmiştir. Bu çalışması sırasında  $T = 0$  K'de direncin sıfıra gitmesini beklerken 4.15 K 'de keskin bir şekilde sıfıra düştüğünü ve bu sıcaklığın altında direnç değerinin her zaman yaklaşık sıfır değerini gösterdiğini gözlemiştir.





Şekil 2.1. Cıvanın Direnç-sıcaklık eğrisi[14].

Onnes bu durumu, süperiletkenlik olarak tanımlamıştır. Kritik sıcaklığın yüksek saflıkla temel bir bağlantısının olmadığı, önemli miktarda safsızlığın ilavesinin normal durum direncini oldukça arttırmasına rağmen süper iletkenlik geçişlerde çoğu zaman çok küçük bir etkiye sahip olduğu Onnes tarafından gözlenmiştir.

Bu araştırmalar sırasında birçok metal ve alaşımın süperiletken duruma geldiği görülmüştür. Bu çalışmalar sırasında 29 element süperiletken özellik göstermiş ve en yüksek geçiş sıcaklığına, ( $T_c = 9.2 \text{ K}$ ) sahip Niobium (Nb) elementi olmuştur. Daha yüksek geçiş sıcaklığına sahip malzemelerin araştırılması, alaşım ve bileşiklerin incelenmesini gerektirmiştir. Bunlar içerisinde, 1972'de  $\text{Nb}_3\text{Ge}$ 'un 23.2 K ile en yüksek kritik sıcaklığa sahip olduğu bulunmuştur. Daha sonra çalışmalar oksitler üzerine yoğunlaşmış ve en yüksek kritik sıcaklıklar  $\text{Li}_{1+x}\text{Ti}_{2-x}\text{O}$  bileşiğinde 13.7 K [15],  $\text{BaPb}_{1-x}\text{BiO}_3$  bileşiğinde ise 13 K olarak gözlenmiştir. Oksit süperiletkenler üzerine çalışmalar J.G. Bednorz ve K.A. Müllerin 1986 yılında La-Ba-Cu-O sisteminde 30 K' de süperiletkenliğin bulunuşundan sonra hız kazanmıştır.

Konu üzerindeki yoğun araştırmalar sonucu, 1987 yılında 90 K' de YBaCuO sisteminde[2], 1988 yılında 110 K' de Bi-Sr-Ca-Cu-O sisteminde [16] ve 125 K' de

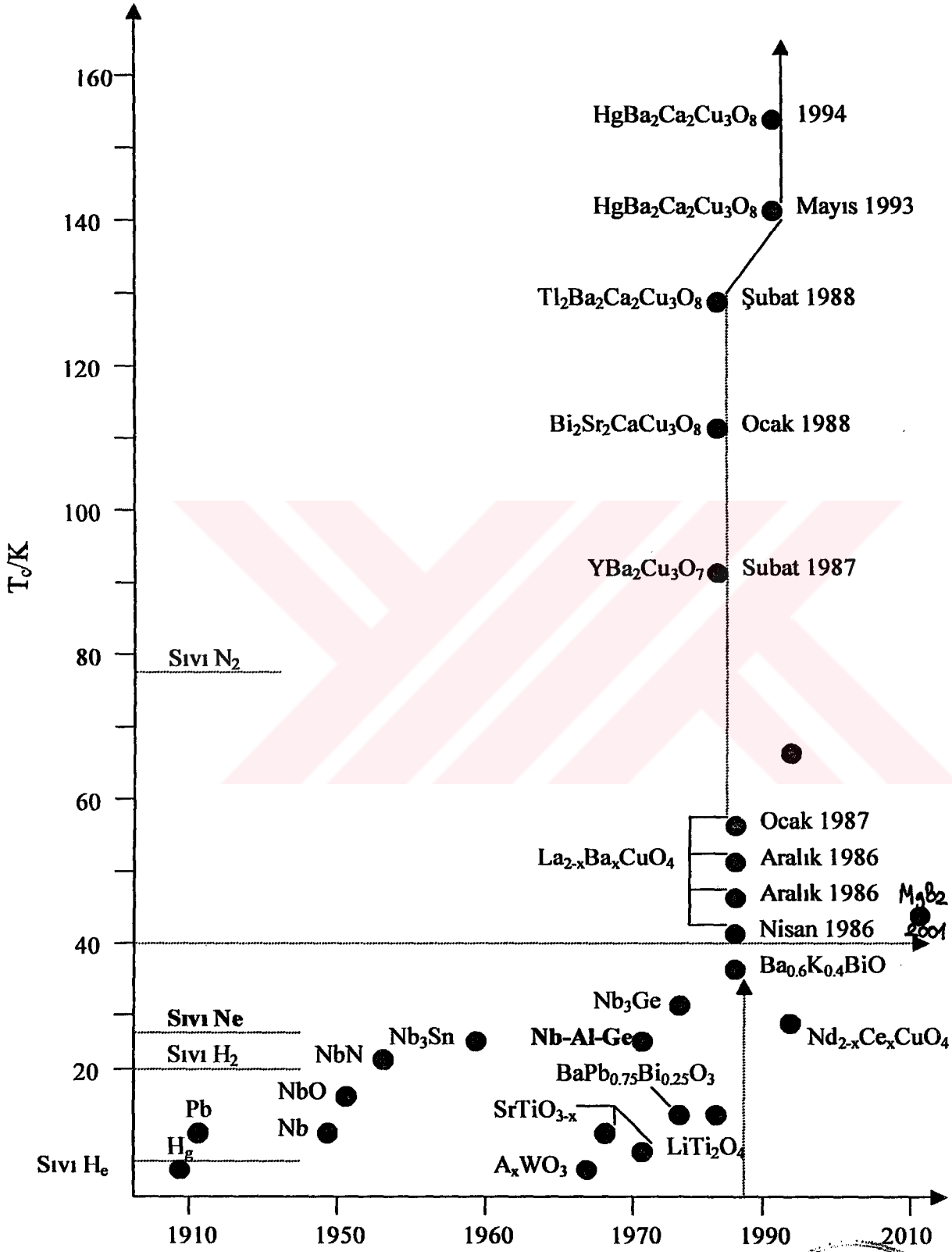




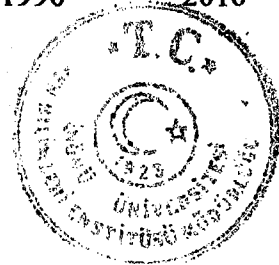
Tl-Ba-Ca-Cu-O sisteminde süperiletkenlik elde edilmiştir[17]. 1993 yılında ise Hg-Ba-Ca-Cu-O sisteminde 164 K'de süperiletkenlik elde edilmiştir[18]. Süperiletkenlik üzerine çalışmalar devam etmiş ve 2001 yılında A. Brinkman ve arkadaşları tarafından metalik  $MgB_2$ 'de 40 K de süper iletkenlik elde edilmiştir[19-20].

Günümüzde süperiletkenlik üzerine çalışmalar, süperiletkenlerin eldesi ve uygulaması üzerinde yoğun biçimde devam etmektedir.





Şekil 2.2 Süperiletkenliğin tarihsel gelişimi.



### 2.3. Süperiletkenliğin Klasik Gösterimleri

Bir maddenin süperiletken özellik gösterip göstermediğini belirleme yöntemlerinden biri sıfır direnç özelliğinin, diğeri ise diamanyetizm özelliğinin belirlenmesidir.

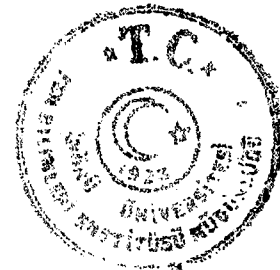
Sıfır direnç özelliği direnç ölçümleri ile, diamanyetizm özelliği ise Meissner etkisinin ölçülmesi ile belirlenebilmektedir. Her iki ölçüm homojen bir süperiletken için farklı geçiş sıcaklığı gösterebilmektedir.

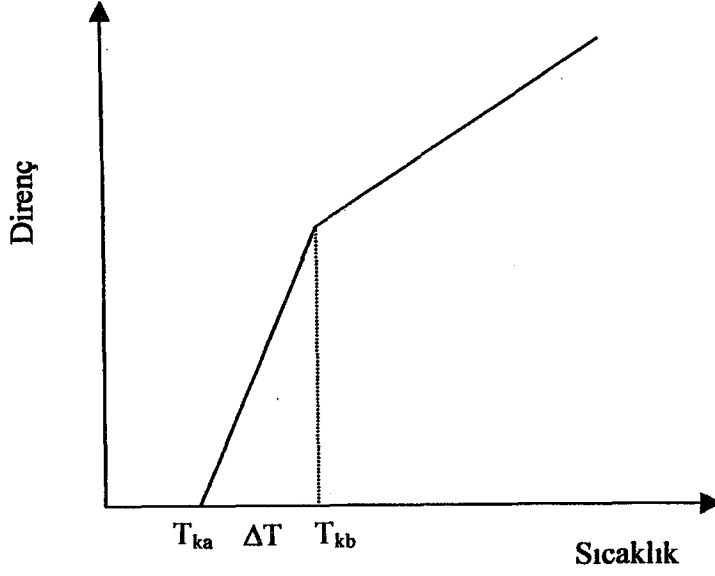
### 2.4.Sıfır Direnç Özelliği

Süperiletkenlerin sıfır direnç özelliği, sıcaklığa karşı direnç, ya da öz direnç ölçümü ile belirlenmektedir(Şekil 2.3). Direnç kritik sıcaklık üzerinde metalik özellik göstermekte ve küçük ve sonlu bir değere sahip olmaktadır. Kritik sıcaklığın altında ise metallerde  $10^{-8}$  ohm, alaşım ve bileşiklerde ise  $\sim 10^{-5}$  ohm değere sahip olmaktadır.

Yüksek sıcaklık seramik süperiletkenlerde ölçülen direnç değerleri, kristal yapının anizotropik özellik göstermesinden dolayı [21] kristalografik doğrultuya bağlıdır. c örgü parametresine paralel yöndeki direnç değeri c örgü parametresine dik yöndeki direnç değerinden oldukça büyüktür.

Süperiletkenliğe geçiş sıcaklığı, metalik süperiletkenler hariç, bir geçiş aralığı göstermekte ve artan safsızlık miktarı ile bu geçiş bölgesi genişlemektedir. Süperiletkenlerin direnç değerlerini etkileyen diğer faktörlerden biri de tanecikler arasında oluşabilecek zayıf kontaklardır.





**Şekil 2.3.** Bir süperiletkenin direnç-sıcaklık eğrisi,  $T_{kb}$ , sıfır direncin elde edildiği sıcaklık,  $\Delta T$ , geçiş sıcaklık aralığı,  $T_{kb}$ , direncin düşmeye başladığı sıcaklık.

## 2.5. Meissner Etkisi

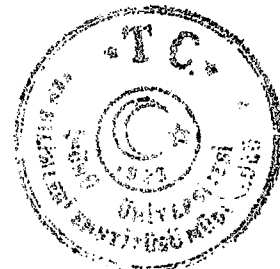
Magnetik akının süperiletkenden dışlanması Meissner olayı olarak bilinir. Magnetik akının süperiletken içerisinden dışlanması, süperiletken yüzeyinde belirli bir kalınlıkta akan ve süperiletken içerisinde uygulanan magnetik alana eşit ve zıt yönde magnetizasyon oluşturan perdeleme akımı ile olmaktadır.

Uzun silindir içindeki bir örnek için, kritik sıcaklığın ve kritik magnetik alanın altında magnetik alan çizgilerinin örnek içerisinden dışlanması Şekil 2.4 de görülmektedir.

Süperiletkenlere, perdeleme akımlarının yerine magnetizasyonun yerleştiği magnetik malzeme olarak bakmak suretiyle birçok amaçlar için Meissner olayı matematiksel olarak (2.2)' deki gibi ifade edilebilir.

$$B = \mu_0 (H + M) = 0 \quad (2.1)$$

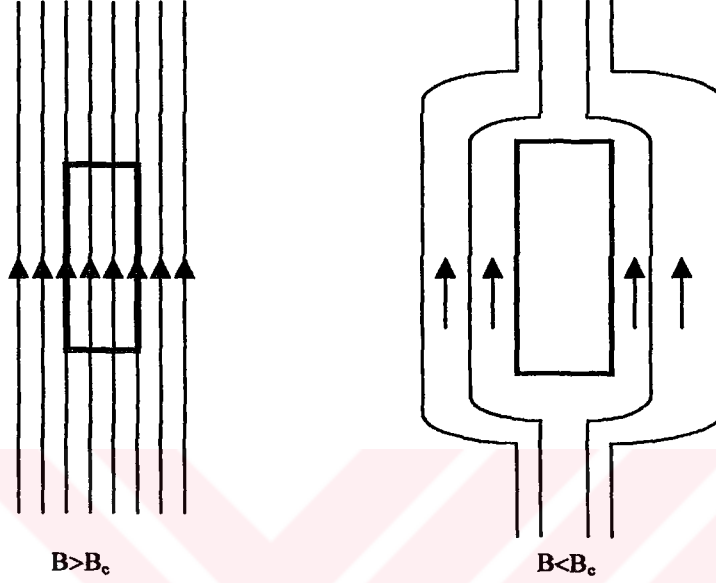
olmasını istediğimiz için;



$$M = -H$$

(2.2)

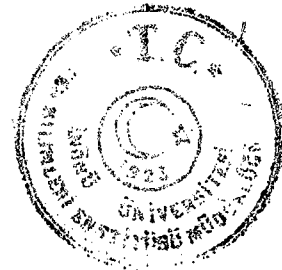
olmalıdır.



Şekil 2.4. Manyetik alan  $B_c$ 'nin altına düştüğü zaman uzun süperiletken silindirde akımın dışlanması.

Meissner etkisi, manyetik duygunluk ölçümleri ile belirlenmektedir. Manyetik duygunluk ve direnç ölçümlerinin birbirlerine karşı üstün oldukları durumlar bulunmaktadır.

Direnç ölçümleri daha kolay olduğu için manyetik duygunluk ölçümlerine karşı daha çok tercih edilmektedir. Flamentary yapılarda manyetik alan tanecikler arasındaki zayıf bağlantıları koparabildiğinden çoğunlukla direnç ölçümleri daha yüksek kritik sıcaklıklar ve daha keskin geçişler oluşturmaktadır. Buna karşılık, duygunluk ölçümleri süperiletken maddenin manyetik hareketini ifade ettiği gibi, manyetizasyonun termodinamik bir durum değişkeni olması nedeni ile, süperiletken durumun termodinamik hareketi hakkında da bilgi verebilmektedir. Manyetik duygunluk ölçümleri, aynı zamanda madde içerisindeki süperiletken fazın oranı hakkında da bilgi verebilmektedir.



## 2.6.Süperiletkenliğin Teoriksel Yaklaşımları

Süperiletkenliği sıfır direnç, sonsuz iletim ve mükemmel diamanyetizm olarak özetleyebiliriz.

W. Meissner ve Reiden Oshsenfeld 1933 yılında süperiletken maddelerin mükemmel iletken olmalarının yanında, aynı zamanda mükemmel diamanyetik özellikleri olduğunu göstermişlerdir.

Daha sonra 1935 yılında Fritz London ve kardeşleri, süperiletkenliğin ilk teorik yaklaşımını ortaya attılar[22]. Bu teoride süperiletkenliğin diamanyetik karakterinin elektron çiftlenmesinden kaynaklandığını ileri sürmüşlerdir.

Kritik sıcaklığın ( $T_c$ ) altında bulunan elektronların büyük mesafeler boyunca çiftler halindeki hareketini, tek bir elektronun hareketi gibi düşünmüş ve sızma derinliği ile Meissner etkisini açıklamışlardır. Elektronların sürtünme ile karşılaşmadan katı içerisindeki hareketini, elektron çiftlerinin bir akışkan gibi davranmasına bağlamışlardır.

Süperiletkenliğin kuantum mekaniksel yaklaşımı ise, Landau ve Ginzburg tarafından ortaya atılmıştır[23-24]. Landau ve Ginzburg bir düzen parametresi yardımıyla süperiletkenliği tanımlayıp, London denklemlerini türeterek geliştirmişlerdir.

Oksitsiz olan konvansiyonel süperiletkenlerin iletim elektronlarının örgü titreşim etkisi altında meydana geldiğini 1957 yılında Bardeen, Cooper ve Schrieffer ortaya atmışlardır[25]. Bu çekim etkileşmesi momentum uzayında Cooper çiftleri olarak isimlendirilen iki elektronun tek bağ oluşturmaya neden olur. Bardeen, Cooper ve Schrieffer teorisi, süperiletkenliğin mikroskobik tabiatının anlaşılmasına olanak sağlamıştır.

Yapılan birçok çalışmalara rağmen hala bakır-oksit süperiletkenlerin mekanizmasını açıklayan tam bir teorik model geliştirilmemiştir. Çünkü bakır-oksitler, değişik şartlar altında metal, ametal,yarı metal, manyetik olarak düzenli ve düzensiz, ideal ve ideal olmayan, ağır fermiyonlu, lokalize momentli, yük korelasyonlu kristal, iyonik ve kovalent bağlı sistemlere uyabilirler. Bu karışık



yapıdan dolayı yapılan çalışmalara rağmen deneylerle uyumlu süperiletkenlik mekanizmasının tabiatını tamamıyla açıklayan teorik bir model geliştirilememiştir.

## 2.7. London Teorisi

1934 'te süperiletkenliğin ilk olaysal teorisi F. ve H. London tarafından önerilen Meissner etkisi London teorisi olarak bilinmektedir. Bu teorinin matematiksel ifadeleri aşağıdaki gibidir[23]. Kısaca ifade edilecek olursa, Londonlar gözlenmiş olan mükemmel diamanyetizm ve sıfır direnç özelliğinin dikkate alındığı London denklemlerini türetmişlerdir.

$$J_B = n_B e V_B \quad (2.3)$$

$$\frac{dJ_B}{dt} = \frac{n_B e^2}{m} E \Rightarrow \frac{dV_B}{dt} = \frac{eE}{m} \Rightarrow \text{saçılma yok} \quad (2.4)$$

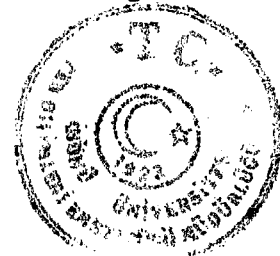
$$\nabla \times J_B = \frac{-n_B e^2}{m} B \Rightarrow \nabla \times V_B = \frac{-eB}{m} \text{ rasyonel olmayan akı ( } B = 0 \text{ )} \quad (2.5)$$

$\Rightarrow R = 0$  ve  $B = 0$  ise;

$$\lambda = \frac{m}{\mu_0 n_B e^2} \quad (2.6)$$

Denklemlerin çözümleri, meissner etkisi ile sonuçlanmış ve süperiletkenin manyetik sızma derinliği için bir ifade de vermiştir (2.6).

Londonların yaptığı bu çalışma süperiletkenliğin teorik gelişiminin ilk incelemesidir. Gerçekte London teorisi, iki ayrı akı görüşüne ayrılmıştır. Bu iki sızan akıların oluşturduğu süperiletken düşünce London denklemlerine izin veren süperiletken akı ve direnç gösteren normal akıdır. Bu düşünce Şekil 2.5' de basit olarak gösterilmektedir. İki akı görüşü mükemmel bir indüktör gibi davranan



süperelektron ve normal direnç gibi davranan normal elektronlu paralel bir devre ile temsil edilebilir.

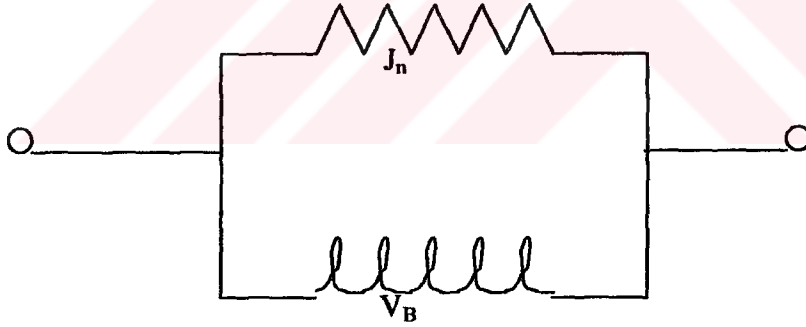
Bu indüktans süperiletken elektronların kinetik enerjisi ile birleşmektedir ve süperiletkenin kinetik indüktansı olarak bilinmektedir. Son zamanlarda süperiletkenliğe olan bu yaklaşım süperiletkenliğin mühendislik uygulamalarında oldukça yararlıdır.

İki-akı görüşü;

$$J = J_B + J_n \quad (2.7)$$

$$\sigma = \sigma_B + \sigma_n = \frac{n_B e^2}{JWm} + \sigma_n \quad (2.8)$$

şeklinde ifade edilebilir.



Şekil 2.5 . İki sızan akının oluşturduğu basit devre düzeneği[23].

## 2.8. Ginzburg-Landau Teorisi

London teorisinin bulunduğu yıllarda makroskobik kuantum durumunda olan süperiletken elektronların gerçeğinden yola çıkarak F.London daha geniş düşünceler öne sürmüştür. Bunun yanısıra güncel teoride ifade edilmiş olan bu düşüncenin





süperiletkenliğin olaysal teorisini Ginzburg ve Landau dikkate alana kadar bu konuda herhangi bir çalışma yapılmamıştır.

Ginzburg ve Landau süperiletken elektronların davranışını belirlemek için makroskobik dalga fonksiyonunun varlığını kabul etmişlerdir[24]. Bu teori London teorisi üzerine kurulmaktadır. Bu nedenle Ginzburg ve Landau teorisi, Meissner etkisini ve sıfır direnç durumunu dikkate almaktadır.

Ginzburg-Landau serbest enerjisi ve serbest enerjinin bir varyasyonel analizinden elde edilen denklemler aşağıdaki gibi verilmektedir[23].

$$\Psi = |\Psi|e^{i\phi} \rightarrow \text{Makroskobik kuantum dalga fonksiyonu} \quad (2.9)$$

$$n_B^a = |\Psi|^2 V_B = \frac{1}{m^a} (h\nabla\phi - e^a A) \quad (2.10)$$

$$F_{GL} = \int dV \left\{ a|\Psi|^2 + \frac{\zeta}{2}|\Psi|^4 + \frac{1}{2m^a} \left[ \left( \frac{h\nabla}{i} - e^a A \right) \Psi \right]^2 + \frac{B^2}{2\mu_0} \right\} \quad (2.11)$$

$$a\Psi + \zeta|\Psi|^2\Psi + \frac{1}{2m^a} \left( \frac{h\nabla}{i} - e^a A \right)^2 \Psi = 0 \quad (2.12)$$

$$J_B = \frac{e^a h}{2m^a i} (\Psi^a \nabla \Psi - \Psi \nabla \Psi^a) - \frac{e^{a2}}{m^a} |\Psi|^2 A \quad (2.13)$$

London teorisinde süperiletken elektronların dalga fonksiyonu  $\psi$  değişmez kabul edilmiştir. Ginzburg-Landau teorisinde ise,  $\psi$  dalga fonksiyonunu uzaysal değişim gösterdiği kabul edilmiştir. Ayrıca serbest enerji denkleminde görüleceği gibi Ginzburg-Landau teorisinde süperiletken içinden dışlanma akı yoğunluğu  $B-B_{iç}$  olarak kabul edilmektedir.

London teorisinde ise manyetik alanın örnek içerisinde tamamen dışlandığı kabul edilmektedir. Ginzburg-Landau teorisinde  $H_{c1}$  ile  $H_{c2}$  arasında:



$$H_{c2} = \kappa (2)^{1/2} H_{c1} \quad (2.14)$$

bağıntısı bulunmaktadır. Burada  $\kappa$ , karakteristik uzunluktur.  $\xi$ , koherens uzunluk olmak üzere,

$$\kappa = \lambda(T) / \xi(T) \quad (2.15)$$

şeklinde tanımlanmaktadır.  $\kappa \ll 1$  ve  $\lambda \ll \xi$  için I. Tip süperiletkenlik,  $\kappa \gg 1$  ve  $\lambda \gg \xi$  için II. Tip süper iletkenlik elde edilmektedir.

## 2.9. BCS Teorisi

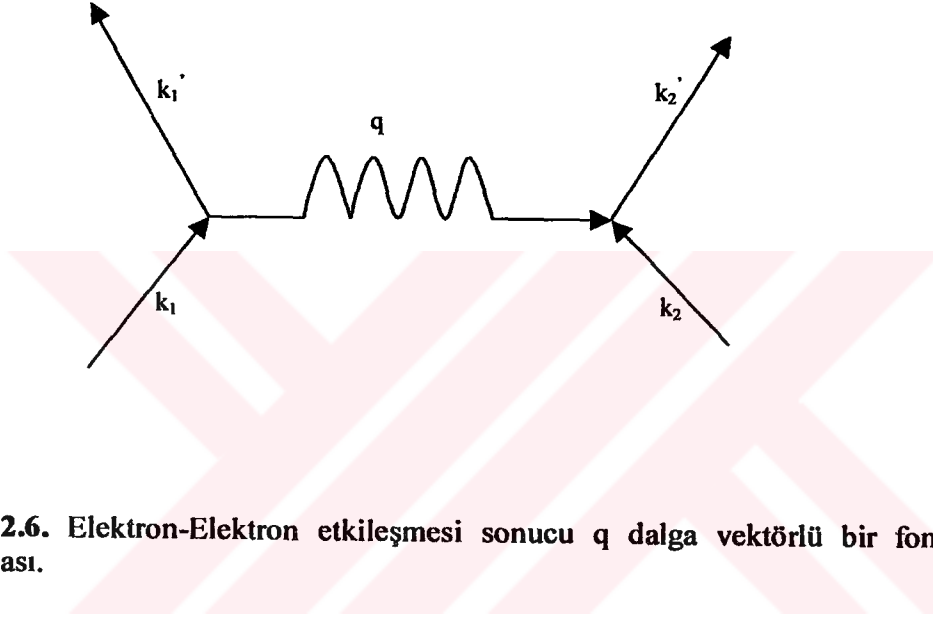
Süperiletkenliğin ilk mikroskobik teorisi Bardeen, Cooper ve Scieffer tarafından 1957 yılında ortaya atılan BCS teorisidir[23-25]. Hala süper iletkenlik için geliştirilen enerji teorisi olarak kabul edilmektedir.

Süperiletken maddeler üzerinde yapılan deneylerin bir enerji aralığının ve izotop etkisinin varlığını göstermesi, örgü titreşimlerinin süperiletkenlikte etkin bir rol oynadığını ve elektron-fonon etkileşmesinin süperiletkenliğe neden olabileceği fikrini düşündürmüştür.

BCS teorisinin özü elektronlar arasındaki çekim etkileşmesidir. Bu çekim etkileşmesinin elektron-fonon etkileşmesi ile oluştuğu düşünülmektedir. Bir elektronun çevresindeki pozitif iyon yoğunluğu artarken diğer elektronlar pozitif yüklerin fazlalığı nedeniyle bu bölgeye doğru sürüklenecektir. İyonların hareketlerinden dolayı elektronlar birbirlerini çekecektir.



Dalga vektörü  $\vec{k}_1$  olan bir elektron  $q$  dalga vektörlü bir fononu yayar ve  $\vec{k}_1 = \vec{k}_1 - q$  dalga vektörlü bir duruma geçer. (Şekil 2.6) Yayılan bu fonon ikinci bir elektron tarafından soğrulur. Böylece ikinci elektronun dalga vektörü  $\vec{k}_2$  'den  $\vec{k}_2$  'ne dönüşür. Bu iki elektron Cooper çiftini oluşturur.



**Şekil 2.6.** Elektron-Elektron etkileşmesi sonucu  $q$  dalga vektörlü bir fononun yayılması.

**BCS teorisinin ana hatları şunlardır:**

- 1- Elektronlar arasındaki çekici bir etkileşme, taban ve uyarılmış durumlar arasında bir enerji aralığının ortaya çıkmasına yol açar.
- 2- Elektronun örgü etkileşmesi gözlenen büyüklükte bir enerji aralığını ortaya koyabilir. Teoriye göre elektron örgü etkileşmesi artarken yasak enerji aralığı ve kritik sıcaklık artmaktadır. Bu teoriye göre kritik sıcaklık;

$$\Delta_0 \cong 3.52k_c T_c$$

(2.16)



olarak verilmektedir.

3- Sızma derinliği ve koherens uzunluklar teorisinin sonuçları olarak ortaya çıkar.

## 2.10. I. ve II. Tip Süperiletkenler

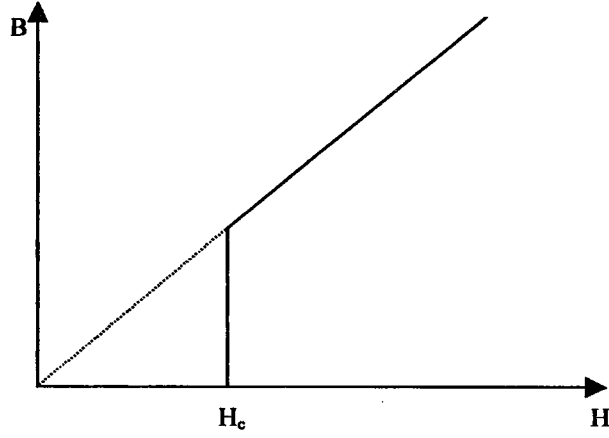
Süperiletkenler manyetik alandaki davranışlarına göre I. ve II. tip süperiletkenler olmak üzere iki gruba ayrılırlar.

I. Tip süperiletkenler saf metallerin oluşturduğu, II. tip süperiletkenler ise geçiş metalleri ve alaşımların oluşturduğu gruptur. I. tip süperiletkenler kritik sıcaklığın ( $T_c$ ) altında (süperiletken fazda) bir kritik manyetik alan ( $H_c$ ) değerine kadar manyetik alanı dışlar(Şekil 2.7.a). Kritik manyetik alanın üzerinde ise manyetik alan örnek içerisine tamamen girer. II. tip süperiletkenlerde ise (Şekil 2.7.b) de görüleceği gibi, iki kritik manyetik alan değeri vardır. Birinci kritik manyetik alan değeri olan  $H_{c1}$  değerine kadar manyetik alan süperiletken içerisinde tamamen dışlanır.  $H_{c1}$  ile ikinci kritik manyetik alan değeri olan  $H_{c2}$  arasında ise manyetik alan kısmen örnek içerisine girer. Ancak madde hala süperiletken özellik gösterir.  $H_{c2}$ 'nin üzerinde ise manyetik akı madde içerisine tamamen girer ve madde süperiletken özelliğini kaybeder.

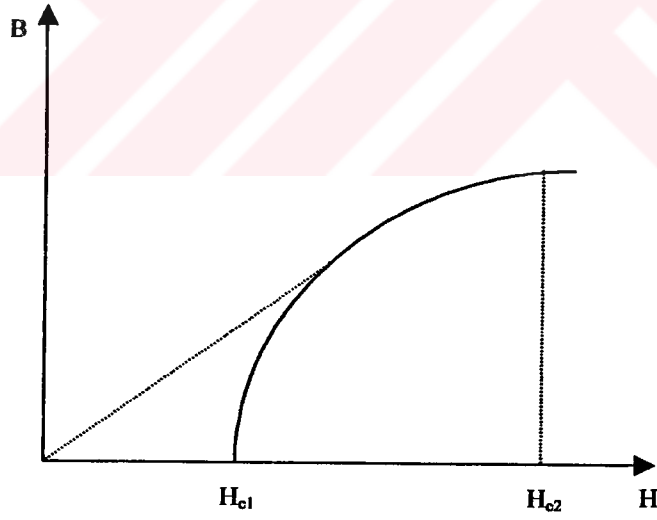
Bir süperiletkenin hangi gruba girdiği, koherens uzunluk ile sızma derinliklerinin karşılaştırılması ile bulunabilir. Buna göre koherens uzunluk sızma derinliğinden uzunsa ( $\xi > \lambda$ ) I. tip süperiletken, tersi durumunda ise ( $\lambda > \xi$ ) II. tip süperiletkenlik elde edilir.

Ayrıca normal ve süperiletken bölgeler arasındaki geçiş yüzeyinin (ara yüzey) yüzey enerjisi artı ya da eksi olabilir ve uygulanan manyetik alan büyüdükçe yüzey enerjisi azalır. Artan manyetik alanla yüzey enerjisi daima artı kalıyorsa I. tip, eksi oluyorsa II. tip süperiletkenlik elde edilir.



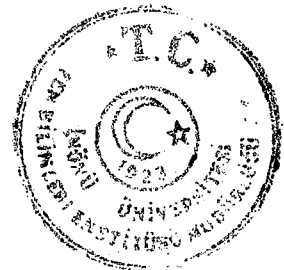


(a)



(b)

**Şekil 2.7. a ) I. Tip süperiletkenlerin magnetik alan eğrisi, b ) II. Tip süperiletkenlerin magnetik alan eğrisi.**



## 2.11. Kritik Akım Yoğunluğu

Süperiletkenliğin ilk zamanlarında, bu maddelerden yapılan çok ince tellerden akımın hiç kayıp olmadan geçip geçmeyeceği tartışılıyordu. Ama bunun bu şekilde olmadığı, çok ince bir telden aşırı derecede akım yoğunluğu geçirmenin mümkün olmadığı daha sonraki çalışmalarda görüldü[26].

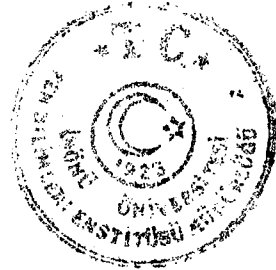
Eğer bir süperiletken içinden geçen akım şiddeti belirli değeri aşar ise süperiletkenlik ortadan kaybolur. İşte bu durum kritik akım yoğunluğu  $J_c$  olarak isimlendirilir. Kritik akım yoğunluğunun hacimsel maddelerde düşük bir değerde olması iki etkene bağlıdır. İlki, bu maddeler tabakalı yapıya sahiptirler ve akım CuO düzlemleri boyunca akmaktadır.

Diğer etken ise; tane sınırlarında toplanan safsızlık değerleridir. Bu safsızlıklar iletim elektronlarını yok eder ve bir çeşit koruyucu tabakanın oluşması sonucu akım yoğunluğu azalmış olur.

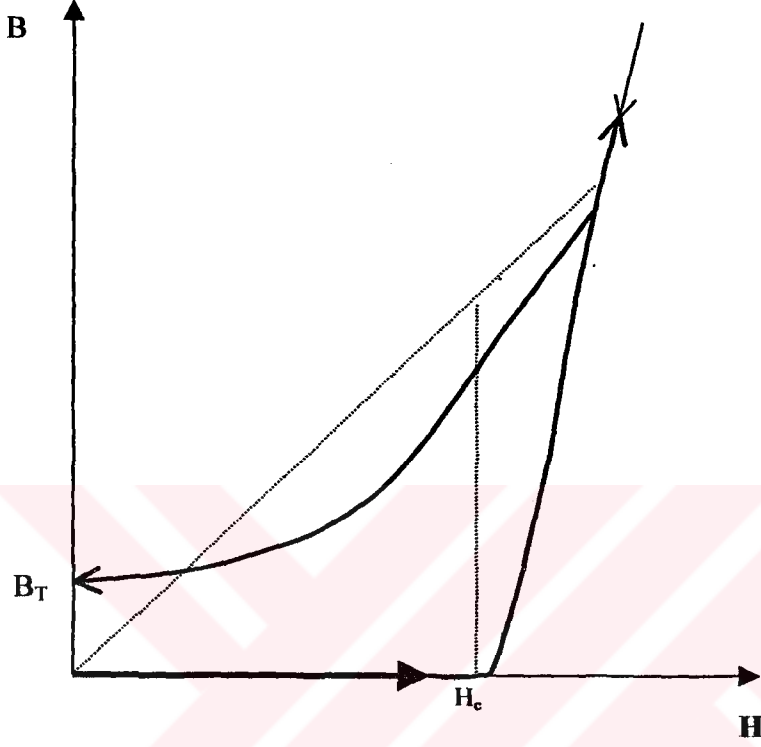
Bir güç kaynağına bağlı olan bir süperiletken tel ele alınırsa, bu telden güç kaynağı tarafından oluşturulmuş olan bir akım akar ki bu akım geçiş akımı olarak isimlendirilir. Eğer tel uygulanan dış manyetik alan içine konulursa metalin içinde akıyı yok etmek için süperiletkenin yüzeyinde bir perdeleme akımı akmaya başlar. Böylece herhangi bir noktadaki akım yoğunluğu  $J$ ;  $J_i$  geçiş akımı ve  $J_H$  perdeleme akımının toplamı şeklindedir.

$$J = J_i + J_H \quad (2.17)$$

Histerisiz eğrilerinden faydalanarak kritik akım yoğunluğu hesaplanmaya çalışılır. İdeal bir örnek, keskin bir şekilde belirli bir kritik alan değerine sahiptir ve aynı zamanda magnetizasyon eğrisi ise tamamen tersinirdir. (Şekil 2.8), ideal olmayan bir örneğin magnetik davranışını göstermektedir. Buradan da anlaşılacağı gibi keskin bir magnetik alan yoktur ve magnetizasyon tersinir değildir.



Uygulanan magnetik alan sıfır değerine düşse bile örnek içinde  $B_T$  ile ifade edilen kalıcı bir magnetik akı yoğunluğu oluşacaktır.



Şekil 2.8. İdeal olmayan bir örneğin magnetik davranışı.



### 3. YÜKSEK SICAKLIK SÜPERİLETKENLERİN KRİSTAL YAPILARI

Süperiletken maddelerin kristal yapılarının belirlenmesi süperiletken özelliklerinin ve süperiletkenlik mekanizmasının anlaşılmasına ve geliştirilmesine katkıda bulunacaktır.

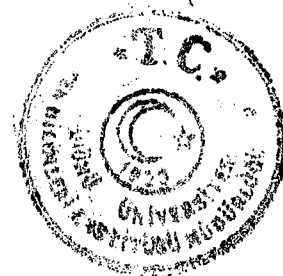
Yüksek sıcaklık seramik süperiletkenler benzer kristal yapı özellikler gösterdiği gibi, farklı özellikler de gösterebilmektedir.

#### 3.1. $La_{2-x}M_xCuO_{4-y}$ Sistemlerinin Kristal Yapıları

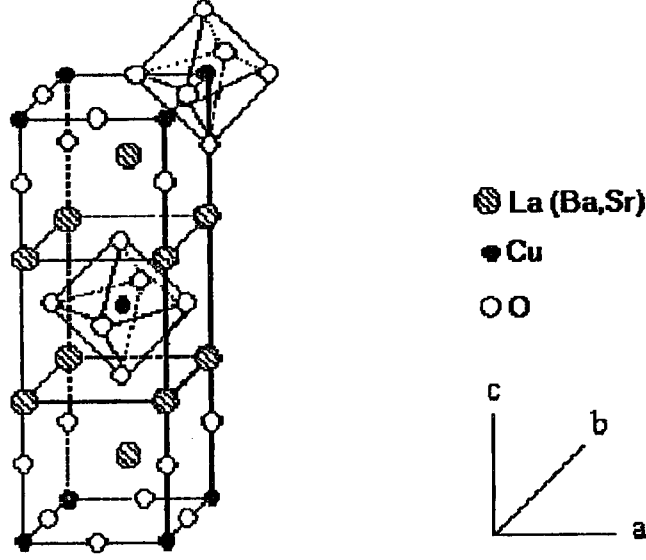
Keşfedilen ilk yüksek sıcaklık süperiletken olan La-Ba-Cu-O sistemlerinde süperiletkenliğin 30K 'de bulunuşundan[1] sonra  $La_{2-x}M_xCuO_{4-y}$  (M = Ba, Sr, Ca) sisteminin geçiş sıcaklığının 20-40K olduğu doğrulanmıştır[27-28-29]. Daha sonra  $La_{2-x}M_xCuO_{4-y}$  sisteminin yüksek basınç altında 52K 'de kritik sıcaklık gösterdiği bulunmuştur[2].

$La_{2-x}M_xCuO_{4-y}$  sistemleri  $La_2CuO_4$  sistemi üzerinde yapılan çalışmalar sırasında elde edilmiştir.  $La_2CuO_4$  sistemleri süperiletken özellik göstermemektedir[30]. Fakat Bednorz ve Müller ilk yüksek sıcaklık seramik süperiletkenlerini La ile Ba atomlarını kısmen yer değiştirerek elde etmişlerdir. Bu bileşiklerin formülü  $La_{2-x}M_xCuO_{4-y}$  olarak bilinmektedir

$La_{2-x}M_xCuO_{4-y}$  sisteminde bakır, 6 oksijen ile lantan ise 9 oksijen ile komşuluğa sahiptir. Atomik yarıçapı lantanın atomik yarıçapına yakın olan baryum da lantan gibi 9 oksijen ile komşuluğa sahiptir. Bu yüzden, baryum kristal yapıda lantan yerine geçmektedir.  $La_{2-x}M_xCuO_{4-y}$  sisteminde baryum yerine stronsiyum konulduğunda baryumun sağladığı özellikleri stronsiyum da sağlamakta ve 40K' de süperiletkenlik geçiş sıcaklığı göstermektedir.







**Şekil 3.1.**  $La_{2-x}M_xCuO_{4-y}$  bileşiğinin kristal yapısı [31]

$La_{2-x}M_xCuO_{4-y}$  süperiletken sisteminde yük dengesi, ancak bakır atomlarının değerliğinin +2 'den +3 değerine çıkması ile sağlanabilmektedir[32]. Fazla elektron bakır atomları tarafından sağlanmakta ve bakır atomlarının kritik değeri +2.2 değerine yükseldiği zaman antiferromanyetizm ortadan kalkmakta ve süperiletken özelliği görülmektedir.

Yüksek sıcaklıkta,  $La_{2-x}M_xCuO_{4-y}$  ( $M = Ba, Sr, Ca$ ) sistemleri, hacim merkezli tetragonal  $K_2NiF_4$  yapıda olup  $I4/mmm$  simetrisine sahiptirler[32]. Düşük sıcaklıklarda (500K sıcaklığın altına inildiğinde) ise, bu bileşikler tetragonal fazdan ortorombik faza geçmektedirler. Bu ortorombik faz,  $Abma$  ve  $Cmca$  uzay grubu simetrilerine sahip olabilmektedirler[32].

### 3.2. $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ bileşiğinin Kristal Yapısı

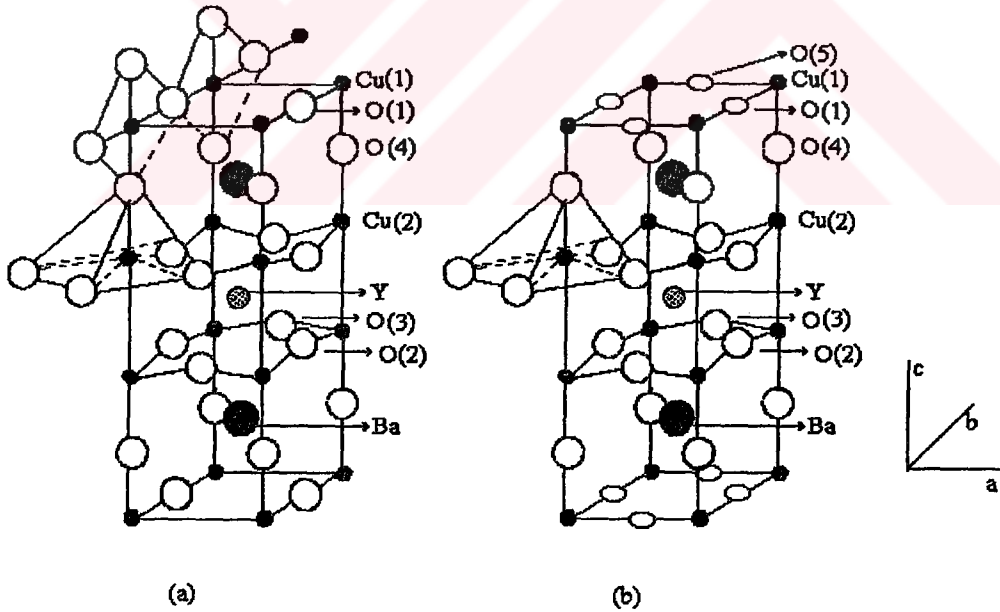
$YBa_2Cu_3O_{7-x}$  süperiletken bileşiği ilk olarak Wu ve arkadaşları tarafından bulunmuştur[33].  $YBa_2Cu_3O_{7-x}$  bileşiği 90K 'de süperiletken geçiş göstermektedir. Bu sıcaklık sıvı azot sıcaklığının üzerinde olduğundan bu bileşiğin keşfi süperiletkenlikte dönüm noktası olarak adlandırılmaktadır.



X-ışınları ve nötron kırınım çalışmaları,  $YBa_2Cu_3O_{7-x}$  süperiletken bileşiğinin oksijen stokiyometresine göre ortorombik veya tetragonal olmak üzere iki farklı kristal simetrisine sahip olduğunu göstermiştir, (Şekil 3.2.), [34-35].

$YBa_2Cu_3O_{7-x}$  bileşiğinde oksijen miktarı 6 ila 7 arasında değişmektedir[34,36]. Oksijen atmosferinde hazırlanan örneklerde oksijen miktarı 7 'ye yaklaşmakta ve kristal yapı ortorombik simetriye sahip olmaktadır. Oksijen miktarı 6.5 değerinin altına indiğinde ise yapı tetragonal faza geçmektedir. Tetragonal faz süperiletken özellik göstermemekte, ortorombik fazda ise 90 K 'de süper iletkenlik geçişi gözlenmektedir. Oksijen miktarı 6.5 olduğunda ise 60 K 'de süper iletkenlik geçişi gözlenmektedir.

Ortorombik birim hücre ile tetragonal birim hücre farkının, oksijen konumlarında olduğu gözlenmektedir. Buna göre ortorombik yapıda Şekil 3.2.a' da görülen O(5) konumunun tamamen boş olduğu ve O(1) konumunun ise tamamen veya kısmen dolu olduğu, tetragonal yapıda ise bu oksijen konumlarının eşit doldurma olasılığına sahip olduğu belirtilmiştir[37-40].



Şekil 3.2.  $YBa_2Cu_3O_{7-x}$  'in, a) Ortorombik b) Tetragonal yapısı [36].

Şekil 3.2.b' de görüleceği gibi bakır atomları Cu(1) ve Cu(2) olmak üzere iki farklı konuma sahiptir. Cu(1); O(4) ve O(1) konumlarındaki oksijen atomları ile kare düzlemsel yapının köşelerinde yerleşmiştir. Cu(1) ve O(1) ortorombik yapıda



görülen b- örgü parametresi boyunca zincir yapıyı oluşturmaktadır[41-42]. Ortorombik ve tetragonal fazlar arasındaki farkı oluşturan bu zincir yapı tetragonal fazda gözlenmemektedir[41-42].

Cu(2) ise ikisi O(2), diğer ikisi de O(3) olmak üzere 4 oksijen atomu ile kare düzlemsel yapıdadır. Yttrium, Cu-O düzlemlerinin arasında (1/2, 1/2, 1/2) konumunda bulunmaktadır. İki baryum atomu ise 4 oksijen atomu ile kare düzlemsel bir yapı göstermektedir. Baryum, Yttriuma göre daha büyük iyonik yarıçapa sahip olduğundan CuO düzlemlerini Yttriuma doğru itmektedir. Bu nedenle CuO düzlemleri a-b düzlemine göre bir açı yapmaktadır.

Oksijen miktarı 6.5 olduğunda b- eksenini boyunca Cu-O zincirleri oluşmaya başlamakta ve  $YBa_2Cu_3O_{7-x}$  bileşiği yalıtkan olan tetragonal  $YBa_2Cu_3O_6$  bileşiğinden farklı olarak 60 K 'de süperiletkenlik göstermektedir. Fakat oksijen miktarı 6.5 olduğunda tam bir zincir yapı oluşmamaktadır. Kısa erişimli oksijen boşluk düzeni oluşmaktadır. Yalıtkan fazdan süperiletken faza geçişi bir boyutlu karaktere sahip Cu-O zincirlerinin oluşturduğu bilinmektedir. Cu-O düzlemlerinde Cu değerliği +2 değerliğini alırken, Cu-O zincirlerinde ise +3 ve +1 değerliklerini de alabildiğinden ortorombik,  $YBa_2Cu_3O_{7-x}$  bileşiği için ortalama bakır değerliği +2.3 olmakta, tetragonal fazda ise ( $x = 1$  'de) +1.67 değerine düşmektedir[43]. Termopower ve Hall olayı ölçümleri  $YBa_2Cu_3O_{7-x}$  süperiletken bileşiğinin p tipi iletkenlik gösterdiğini ortaya koymaktadır[39-44].

### 3.3. $NdBa_2Cu_3O_{7.8}$ Bileşiğinin Kristal Yapısı

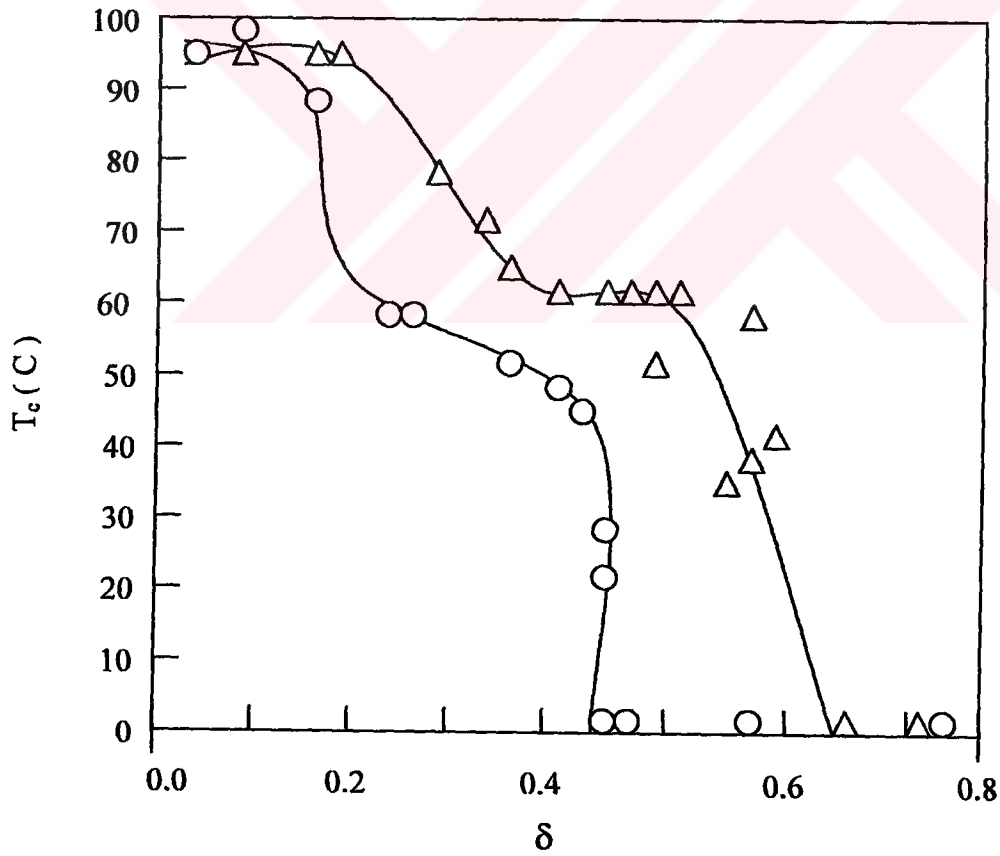
$NdBa_2Cu_3O_{7.8}$  (Nd123) süperiletken bileşiği,  $REBa_2Cu_3O_{7.8}$  toprak alkali süperiletken oksitler içinde en yüksek kritik sıcaklığa sahip (94 K) bileşiktir[45]. Ayrıca yüksek manyetik alanlarda Nd123 'ün  $J_c$  değeri Y123' den daha yüksektir[45-46]. Bu özellikleri Nd123 'ü diğer  $REBa_2Cu_3O_{7.8}$  süperiletken bileşiklerinden daha ilginç kılmaktadır. Fakat bu bileşiğin hazırlanmasında bazı zorluklarla karşılaşmaktadır. Nd ile  $Y^{+3}$  ün yer değiştirilmesine rağmen  $Nd^{+3}$ ,  $Y^{+3}$  yerine  $Ba^{+2}$  konumlarına yerleşmektedir[47]. Bu durumu önlemek için Nd123 hazırlanırken uzun süre yüksek basınçta oksijen atmosferinde tavlmalıdır. Nd123 'de Y123 gibi



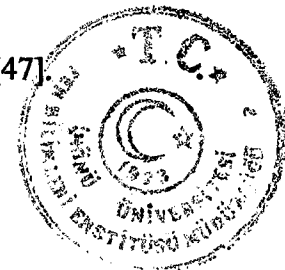
ortorombik Pmmm uzay grubu simetrisine sahiptir. Tetragonal ortorombik geçişi ise  $\delta = 0.6$  olduđunda gerekleşmektedir[47-48] (Şekil 3.3).

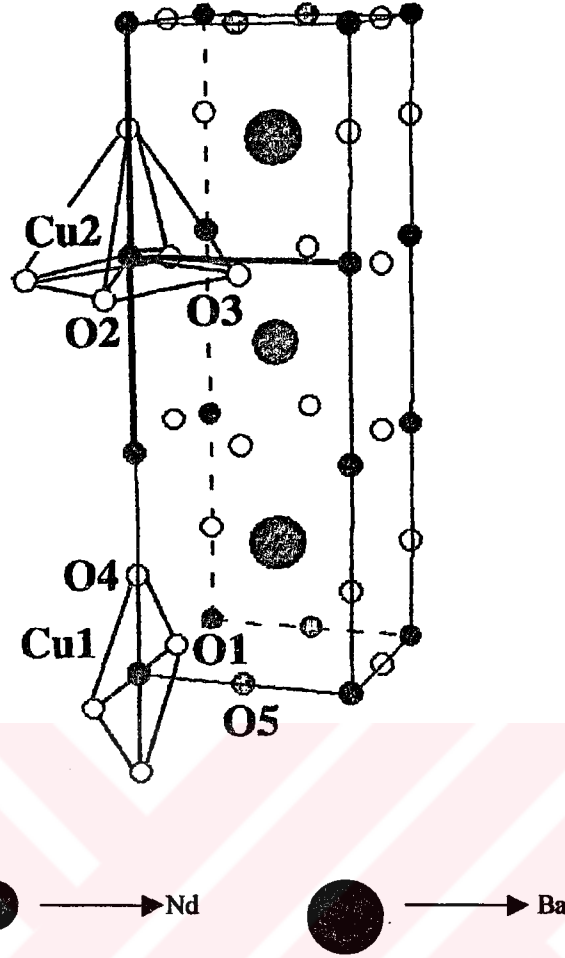
Şekil.3.4 den görüleceđi gibi  $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  bileşiđinin kristal yapısı  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  bileşiđinin kristal yapısı ile özdeştir.

Nd123 'ün XRD sonuçları birim hücre parametrelerinin,  $a = 3.897 \text{ \AA} - 3.899 \text{ \AA}$ ,  $b = 3.902 \text{ \AA} - 3.908 \text{ \AA}$  ve  $c = 11.707 \text{ \AA} - 11.719 \text{ \AA}$  aralıklarında olduđunu göstermektedir[49]. Düşük oksijen konsantrasyonlarında ( $\delta < 0.5$ ) örneđin  $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.25}$  bileşiđi süperiletken özellik göstermemekte ve kristal yapı P4/mmm tetragonal simetriye sahip olmaktadır[49]. Benzer şekilde  $\text{Nd}^{+3}$ ,  $\text{Y}^{+3}$  yerine  $\text{Ba}^{+2}$  konumlarına yerleştildiğinde süper iletkenlik kaybolmakta ve P4/mmm tetragonal simetri gözlenmektedir[49]. Kısmi  $\text{Nd}^{+3}$ ,  $\text{Ba}^{+2}$  yerdeđişiminde ise süperiletkenliđin (kritik sıcaklıđın) düştüđü gözlenmektedir.



Şekil 3.3.  $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  bileşiđinde kritik sıcaklıđın  $\delta$  ile deđişimi[47].





Şekil 3.4.  $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ ' nin kristal yapısı[49].

### 3.4. Bi-Sr-Ca-Cu-O Sistemlerinin Kristal Yapıları

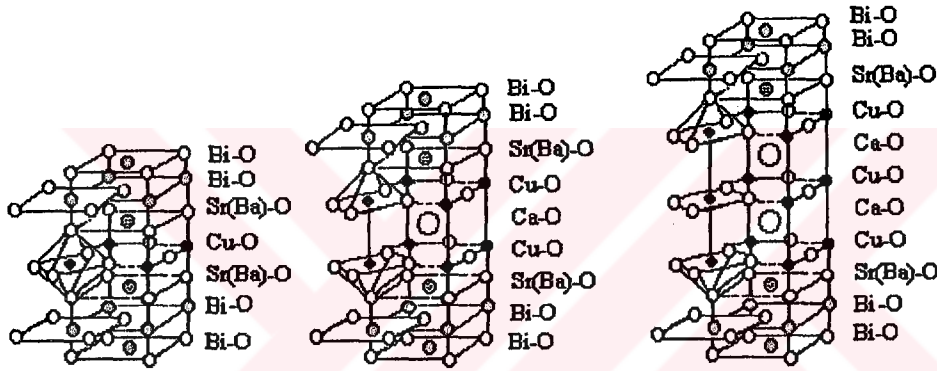
Bi-Sr-Ca-Cu-O sisteminde süperiletkenlik ilk kez Maeda ve arkadaşları[50] tarafından keşfedilmiştir(Şekil 3.5). Bi-Sr-Ca-Cu-O sisteminde üç süperiletken faz bulunmaktadır. Bunlar  $n = 1$  için 20K kritik sıcaklığa sahip  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CuO}_6$ ,  $n = 2$  için 80K kritik sıcaklığa sahip  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  ve  $n = 3$  için elde edilen 110K kritik sıcaklığa sahip  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10}$  fazlarıdır[51]. Bu fazlardan  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  fazı  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CuO}_6$  fazına göre daha kararlıdır.  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10}$  fazı ise oldukça kararsız bir fazdır.

$\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{n-1}\text{Cu}_n\text{O}_{2n+4+y}$  genel formülü ile elde edilebilen 3 fazın birim hücreleri iki çift BiO tabakaları arasında yerleşmiş Sr-O, Cu-O ve CaO tabakalarından ibarettir.  $n = 1$  fazının,  $a \cong b = 5.4 \text{ \AA}$  ve  $c = 24.4 \text{ \AA}$  birim hücre boyutlarına sahip



hacim merkezli tetragonal ya da  $a \cong b = 3.9 \text{ \AA}$  ve  $c = 24.4 \text{ \AA}$  birim hücre boyutlarına sahip bozunmuş ortorombik,  $n = 2$  fazının  $a \cong b = 5.37 \text{ \AA}$  ve  $c = 3.09 \text{ \AA}$  birim hücre boyutlarına sahip ortorombik yada psuedo tetragonal olduğu ileri sürülmektedir.  $n = 3$  fazı, ise  $a = b = 5.4 \text{ \AA}$  ve  $c = 37.1 \text{ \AA}$  boyutlarındadır ve kristal simetri ortorombikten düşük değildir[37-51].

BSCCO sistemlerinde artan Cu-O tabakaları kritik sıcaklığı arttırmaktadır. Şekil 3.5' de görülebileceği gibi  $n = 1$  fazında 1 CuO düzlemi,  $n = 2$  fazında 2 CuO düzlemi ve  $n = 3$  fazında ise 3 CuO düzlemi bulunmaktadır. BSCCO sistemlerinde bizmut ile kurşunun kısmi yer değiştirilmesinin  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10}$  fazının oranını arttırdığı görülmüştür.

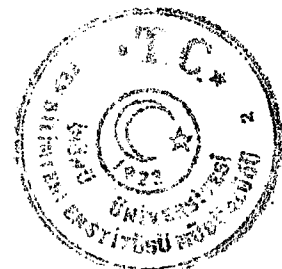


Şekil 3.5. Bi-Sr-Ca-Cu-O sistemlerinin kristal yapısı[51].

### 3.5. Tl-Ba-Ca-Cu-O Sistemlerinin Kristal Yapıları

Tl-Ba-Ca-Cu-O süperiletken sistemi ilk olarak Shang ve Hermann tarafından bulunmuştur[52]. Tl-Ba-Ca-Cu-O sisteminde en yüksek süperiletkenlik geçiş sıcaklığı 125 K olarak gözlenmiştir[53].

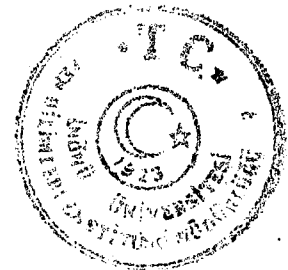
$\text{Tl}_m\text{Ba}_2\text{Ca}_{n-1}\text{Cu}_n\text{O}_{2n+4+y}$  genel formülüne sahip Tl-Ba-Ca-Cu-O sistemi  $m = 1$  ( $\text{TlBa}_2\text{Ca}_{n-1}\text{Cu}_n\text{O}_{2n+3+y}$ ) ve  $m = 2$  ( $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{Ca}_{n-1}\text{Cu}_n\text{O}_{2n+4+y}$ ) olmak üzere iki ana grupta toplanmaktadır. Bunlardan  $m = 1$  için  $n = 1,2,3,4,5$  fazları,  $m = 2$  için  $n = 1,2,3$  fazları oluşturulabilmiştir[53-54-55].

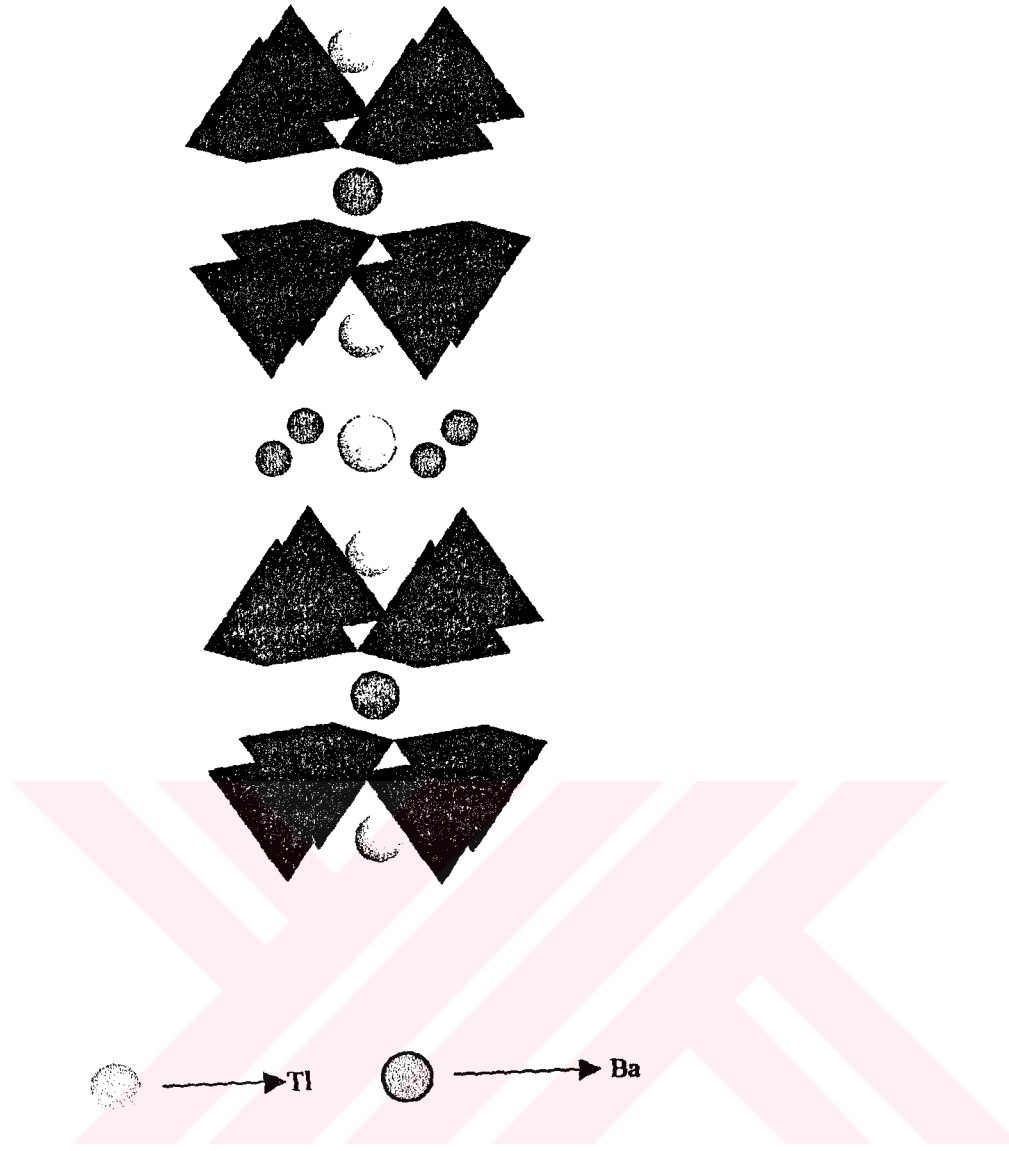


$TlBa_2Ca_{n-1}Cu_nO_{2n+3+y}$  sisteminin fazları,  $a = b = 3.8 \text{ \AA}$  ve  $c = (5.4 + 3.4 n) \text{ \AA}$  birim hücre boyutlarına sahip tetragonal yapıda kristallenmektedir. Bu fazların kritik sıcaklıkları  $n = 2$  için 90 K,  $n = 3$  için 110 K,  $n = 4$  için 112 K ve  $n = 5$  için 115 K olarak gözlenmiştir.  $n = 1$  fazı ise süperiletken özellik göstermemiştir[56].

$Tl_2Ba_2Ca_{n-1}Cu_nO_{2n+4+y}$  sisteminde ise birim hücre boyutları  $n = 1$  için,  $a = b = 3.9 \text{ \AA}$   $c = 23.2 \text{ \AA}$ ,  $n = 2$  için  $a = b = 3.9 \text{ \AA}$   $c = 29.4 \text{ \AA}$ ,  $n = 3$  için ise  $a = b = 3.9 \text{ \AA}$  ve  $c = 36 \text{ \AA}$  olarak bulunmuştur[64].

Bu fazlar tabakalı bir yapıya sahip olup TlO, BaO, CaO, CuO şeklinde bir düzenleme göstermekte ve  $I4/mmm$  uzay grubu simetrisinde kristallenmektedirler(Şekil 3.6). Geçiş sıcaklıklar ise  $n = 1$  için 10 K,  $n = 2$  için 80 K ve  $n = 3$  için 125 K 'dir.





Şekil 3.6.  $TlBa_2CaCu_2O_{7-\delta}$  sistemlerin kristal yapısı[58].

### 3.6. Hg-Ba-Ca-Cu-O Sistemlerinin Kristal Yapıları

Civalı süperiletkenler bugüne kadar en yüksek kritik sıcaklığa sahip süperiletkenlerdir. Civa bazlı süperiletkenler ilk olarak Tl-Ba-Ca-Cu-O süperiletken sisteminden esinlenerek S.N. Putilin ve arkadaşlarının 94 K kritik sıcaklığa sahip  $HgBa_2CuO_{4+\delta}$  (1201) bileşiğini keşfetmeleriyle ortaya çıkmıştır[59]. Daha sonra 1993 yılında A. Schilling ve arkadaşları Hg-Ba-Cu-O sistemine Ca ekleyerek  $HgBa_2Ca_{n-1}Cu_nO_{2n+2+\delta}$  genel formülüne sahip bileşiklerini





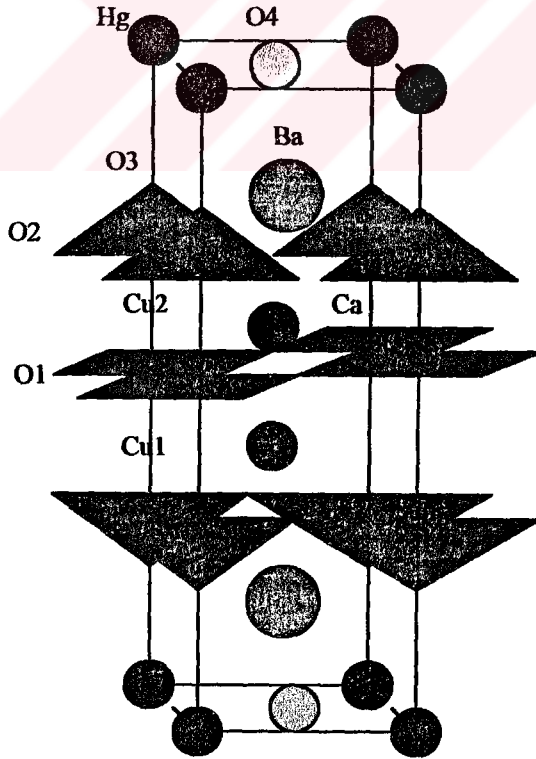
hazırlamışlar ve  $n = 1$ ,  $n = 2$  ve  $n = 3$  olmak üzere 3 ayrı fazın olduğunu göstermişlerdir[18].

Bu fazlardan  $n = 1$  için kritik sıcaklık 64 K,  $n = 2$  için kritik sıcaklık 128 K,  $n = 3$  için kritik sıcaklık ise 135 K olarak gözlenmiştir.  $n = 3$  fazı yüksek quazi hidrostatik basınç altında hazırlanmış ve kritik sıcaklık 164 K olarak bulunmuştur [60].

Bu fazlardan  $n = 1$ ,  $a = b = 3.8797 \text{ \AA}$ ,  $c = 9.309 \text{ \AA}$ ,  $n = 2$ ,  $a = b = 3.93 \text{ \AA}$ ,  $c = 12.7 \text{ \AA}$ ,  $n = 3$  fazı ise,  $a = b = 3.93 \text{ \AA}$ ,  $c = 16.1 \text{ \AA}$  birim hücre boyutlarına sahiptir[18]. Bu fazların tümü tetragonal simetride kristallenmektedir( Şekil.3.7 ).

Hg-Ba-Ca-Cu-O süperiletken sistemlerinin birim hücreleri, HgO, BaO, CaO ve CuO tabakalarının üst üste binmesiyle oluşmuştur.  $n = 1$  fazında 1,  $n = 2$  fazında 2 ve  $n = 3$  fazında ise 3 CuO düzlemi bulunmaktadır.

Sonuç olarak Bi ve Tl 'lu süperiletken sistemlerde olduğu gibi, Hg 'li sistemlerde de artan Cu-O düzlemi ile süperiletkenlik geçiş sıcaklığı artmaktadır.



Şekil 3.7.  $\text{HgBa}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{8+\delta}$  bileşiğinin kristal yapısı[61].



## 4. YÜKSEK SICAKLIK SÜPERİLETKENLERİN ÖRNEK HAZIRLAMA YÖNTEMLERİ

Yüksek sıcaklık seramik süperiletkenler yığın olarak kullanım amacına göre genellikle katıhal reaksiyon yöntemi, cam seramik yöntemi ve sol-jel yöntemi kullanılarak hazırlanmaktadır. Bu yöntemlerin herbirinin diğerine göre birtakım üstün oldukları yönler mevcuttur.

### 4.1. Katıhal Reaksiyon Yöntemi

Bu yöntem kolaylığı ve düşük maliyet gerektirmesi nedeniyle süperiletkenlik çalışanları tarafından en çok kullanılan yöntemdir.

Katıhal reaksiyon yönteminde başlangıç maddeleri olarak yüksek saflıktaki oksitli, karbonatlı ve nitratlı bileşikler kullanılmaktadır. Bu yöntemde örnek hazırlama aşağıdaki gibi olmaktadır.

Başlangıç maddeleri hazırlanacak örneğe göre uygun oranlarda hassas bir şekilde tartılır ve karıştırılır. Karıştırılan bu tozlar küçük parçacık boyutuna ulaşabilmek için öğütülür. Öğütülmüş karışım, hazırlanmak istenen süperiletken sistemine bağlı olarak 750-900 °C arasında uygun bir kroze içerisinde kalsine edilir.

Kalsine işleminden sonra örnek tekrar öğütülür ve tablet haline getirilir. Tablet haline getirilmiş örnek süperiletken sisteminin gerektirdiği bir sıcaklıkta (800-950 °C) tavllanır. Bu öğütme, tablet haline getirme işlemi homojen ve istenilen yoğunlukta örnek elde edilinceye kadar devam eder. Son olarak örnek öğütülür, tablet haline getirilir ve uygun sıcaklıkta tavllanır. Son tavlama işleminde düşük soğurma hızı kullanılır.

Bu yöntemle başlangıç maddelerinin saf olması ve kalsinasyon veya tavlamada kullanılan krozenin yüksek sıcaklıkta örnekle reaksiyona girmemesi önemlidir.

T.C. YÜKSEK ÖĞRETİM KURULU  
DOKÜMANTASYON MERKEZİ



## 4.2. Cam-Seramik Yöntemi

Bu yöntemde erime işlemi gerçekleştiği için katıhal reaksiyon yöntemine göre daha homojen ve daha düşük gözeneğe sahip örnekler hazırlanabilmektedir. Bu yöntemde örnek hazırlanırken oksitli, karbonatlı ve nitrathı başlangıç maddeleri kullanılmaktadır.

Yüksek saflıktaki başlangıç maddeleri uygun oranlarda karıştırılıp öğütüldükten sonra süperiletken sistemine göre 1050-1250 °C arasında bu sıcaklıklara dayanıklı, örnekle reaksiyona girmeyen bir kroze ( genellikle platin kroze ) içerisinde eritilir.

Elde edilen eriyik camsı yapının elde edilebilmesi için örnekle reaksiyona girmeyecek iki plaka arasına dökülerek soğuma sağlanır. Elde edilen camsı yapı süperiletken sistemine uygun sıcaklıkta tavlansarak süperiletken yapı elde edilir.

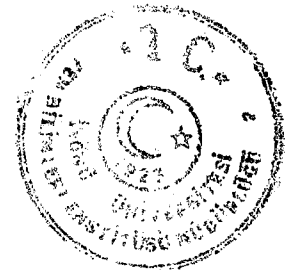
## 4.3. Sol-Jel Yöntemi

Bu yöntemle çok küçük parçacık boyutlarına sahip (  $\approx 0.01 \mu\text{m}$  ) tozlar elde edilebildiği için daha homojen örnekler elde edilebilmektedir. Bu nedenle, bu yöntemle örneğin mikroyapısını ve saflığını kontrol etmek mümkün olmaktadır [62].

Bu yöntemde başlangıç maddeleri olarak nitrathı ve asetathı bileşikler kullanılmaktadır. Uygun oranlarda tartılan başlangıç maddeleri 2 – 10 saat arasında karıştırılır ve 60 – 120 °C arasında ısıtılarak viskos çözelti elde edilir.

Daha sonra bu çözelti 90 – 150 °C arasında ısıtılır ve oda sıcaklığına kadar soğutularak ıslak bir jel elde edilir. Bu jel yapı başlangıç maddelerine bağlı olarak uygun bir süre 250-500 °C sıcaklıkta ısıtılarak su, amonyak ve nitrat grupları yapıdan uzaklaştırılır.

Elde edilen küçük parçacık boyutuna sahip tozlar tablet haline getirilir uygun bir sıcaklıkta tavlansarak süperiletken örnek elde edilir.



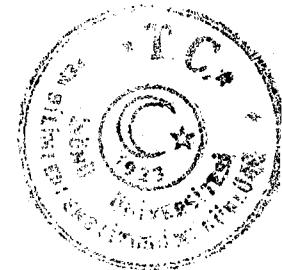
## 5. DENEYSEL METODLAR

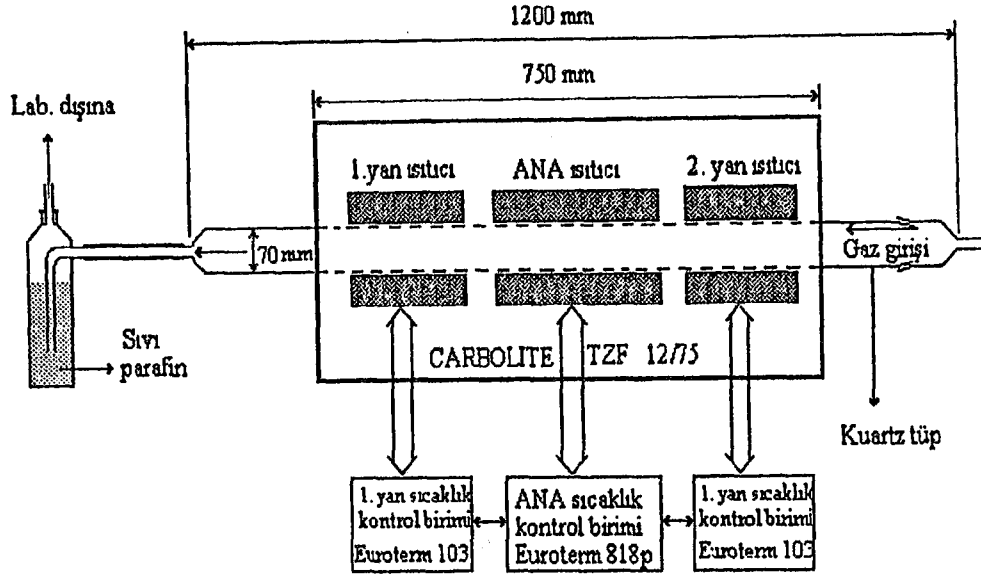
### 5.1. Örneklerin Hazırlanması ve Isıl İşlemler

Bu çalışmada numuneler katıhal reaksiyon yöntemi ile hazırlanmıştır. Çıkış maddeleri olarak %99.99 saflığında  $Y_2O_3$ , %99 saflığında  $BaCO_3$ , %99.9 saflığında  $CuO$  ve %99.9 saflığında  $Nd_2O_3$  tozları kullanılmıştır.

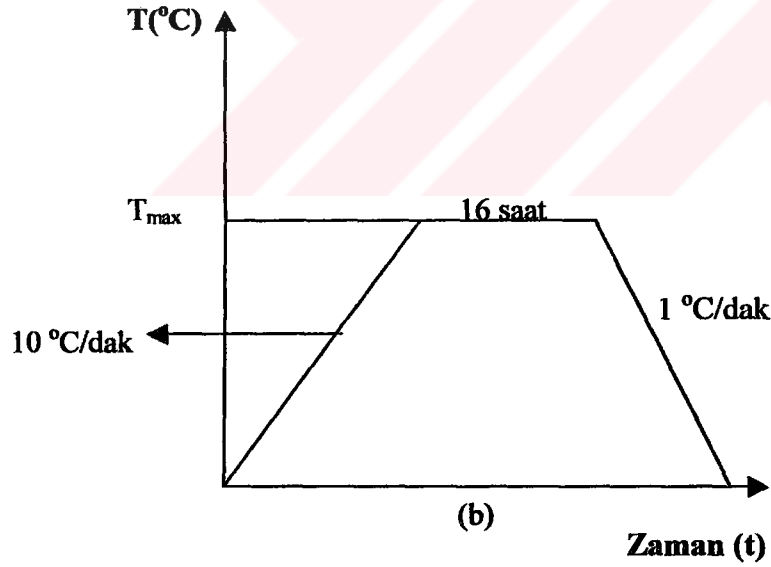
$Y_{1-x}Nd_xBa_2Cu_3O_{7.8}$  ( $0 \leq x \leq 1$ ) örnekleri hazırlanırken her bir stokiyometri için uygun oranlarda tartılan (0.1 mg hassasiyetine sahip terazi ile) örnekler homojen bir karışımın elde edilebilmesi için isoproponal ile agod havan içerisinde karıştırılmış ve öğütülmüştür. Küçük parçacık boyutlarına sahip numuneler 900 °C' de Şekil5.1' de kesit görünümü verilen 0.1 °C sıcaklık hatasına sahip PID kontrollü Carbolit TZF 12/75 tüp model fırınında oksijen atmosferinde 10 saat kalsine edilmiştir.

Kalsine edilmiş numuneler agod havanda isoproponal içerisinde öğütülerek ~ 10 ton basınç altında ~ 1-2 mm kalınlığında tablet yapılarak Şekil.5.2' de verilen tavlama profiline göre tavlansmıştır. Öğütme, tablet yapma ve tavlama işlemi 4 kez tekrarlanmış ve böylece numuneler hazırlanmıştır. Tavlama işlemlerinin tamamı oksijen atmosferinde gerçekleştirilmiştir. Tüm numunelerin hazırlanmasında aynı ısıl işlem adımları kullanılmıştır.

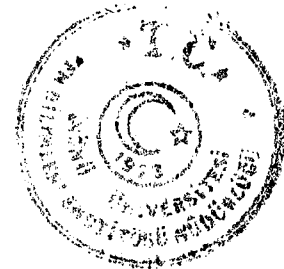




Şekil 5.1. Numunelerin ısıtılma tabi tutuldukları fırının kesit görünümü.



Şekil 5.2. Örneklerin tavlama sıcaklık grafiği.



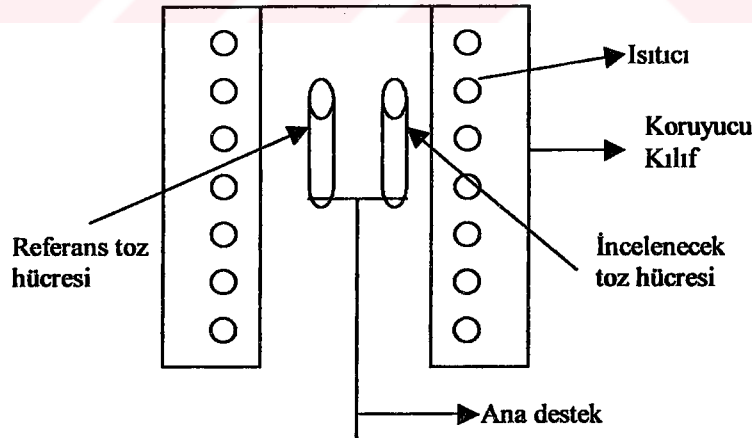
## 5.2. Diferansiyel Termal Analiz ( DTA ) Ölçümleri

Termal analiz maddeye ait bir fiziksel özelliğin sıcaklığın bir fonksiyonu olarak belirlendiği yöntemdir. Diferansiyel Termal Analizde (DTA), örnek ile termal olarak inert olan bir referans maddesi arasındaki sıcaklık farkı, her iki maddeye de aynı sıcaklık programı uygulanarak ölçülür.

Termal eğri, sıcaklık farkının iki maddeden birisinin sıcaklığının fonksiyonu olarak çizilmesi ile elde edilir. Örnek ile referans maddesi arasındaki sıcaklık farkı örnekte bir faz geçişi ve yapısal değişim olduğu zaman gözlenecektir. Örneğin erime endotermik bir etki verecektir. Kristal faz geçişleri ise ekzotermik veya endotermik etki verebilmektedir.

DTA ölçümleri minimum 1 °C/dak ısıtma hızına sahip ve RS 232 ara bağlantısı ile bilgisayara bağlanabilen ve maksimum 1600 °C sıcaklığa çıkabilen ve Şekil.5.3' de kesit görünümü verilen Shimadzu system 50 model DTA ile yapılmıştır.

İnce tozlar halinde öğütülmüş örnekler platin kroze içerisine konulmuş (~ 20 mg) ikinci bir kroze içerisine de referans maddesi olarak inert Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> bileşiği konulmuştur. Örnek ve referans maddesine aynı ısı işlem uygulanmış ve aralarındaki sıcaklık farkı referans maddesinin sıcaklığına karşı bilgisayarda çizilmiştir.



Şekil 5.3. DTA cihazının kesit görünümü.



### 5.3. Direnç Ölçümleri

Örneklerin direnç ölçümleri iki farklı sistemde gerçekleştirilmiştir.  $Y_{1-x}Nd_xBa_2Cu_3O_{7.8}$  ( $0 \leq x \leq 1$ ) örneklerinden  $x = 0.1, 0.2, 0.3, 0.5, 0.7$  ve  $1$  örnekleri laboratuvarımızdaki sistemin arızası nedeniyle Karadeniz Teknik Üniversitesi Fizik Bölümündeki süperiletkenlik araştırma laboratuvarında,  $x = 0.4, 0.6, 0.8$  ve  $0.9$  örneklerinin direnç ölçümleri ise kendi laboratuvarımızda gerçekleştirilmiştir.

Her iki sistemde de dört kontak yöntemi kullanılmıştır. Karadeniz Teknik Üniversitesinde ki ölçüm sistemi Şekil 5.4' deki gibidir. Sistemde ölçüm şu şekilde alınmıştır. Örnekler tablet haline getirildikten sonra kontaklar gümüş boya ile yapılmış ve örnekler kryostada yerleştirilmiştir. Ölçümler  $10^{-5}$ - $10^{-6}$  Torr vakum altında gerçekleştirilmiştir.

Sıcaklık ölçümlerinde bakır-konstantan termoçifti kullanılmıştır.  $0^\circ C$  referans noktası buz-su karışımı ile elde edilmiştir. Termoçiftten alınan gerilim değerleri bilgisayar kontrollü bir model dijital multimetre yardımıyla sıcaklığa dönüştürülmüştür.

Örneklerden dış kontaklardan (zıt yönde olmak üzere)  $10$  mA değerinde akım geçirilmiş ve gerilim değerleri (iç kontaklardan) bilgisayar kontrollü (Keithley 182) model nanovoltmetre yardımıyla okunmuştur. Elde edilen veriler IEEE ara bağlantısı ile bilgisayara aktarılarak, bir program yardımıyla örneklerin direnç-sıcaklık eğrileri elde edilmiştir.

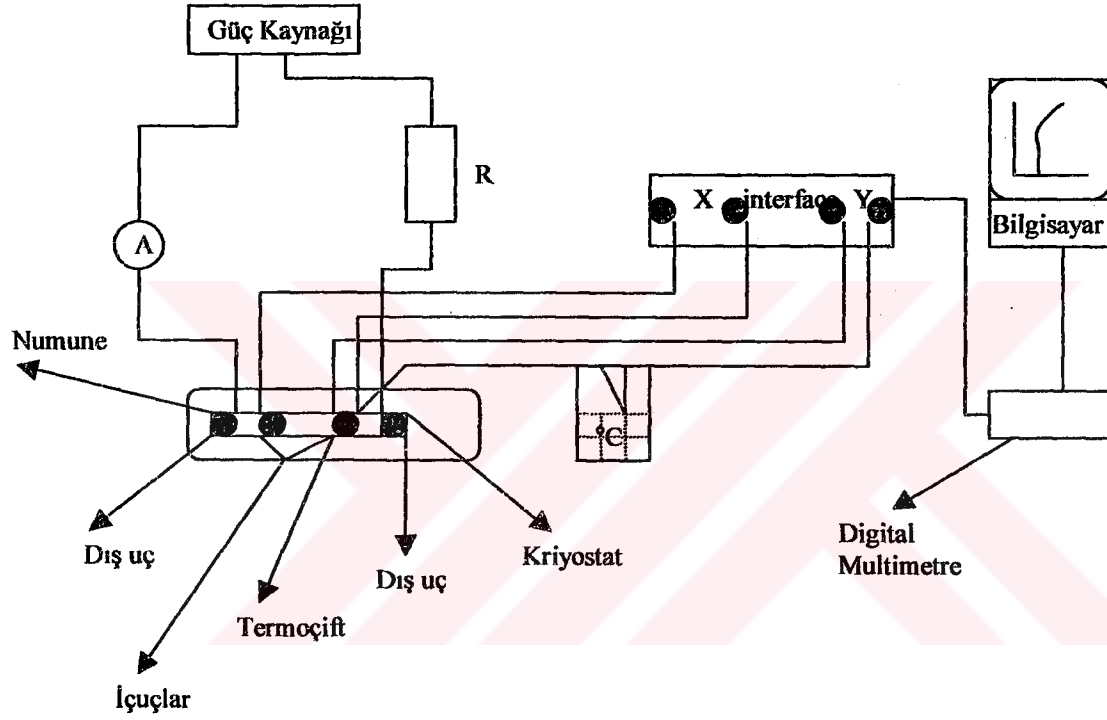
Laboratuvarımızdaki direnç ölçüm sistemi ise Şekil 5.5' deki gibidir. Tablet haline getirilmiş örnekler gümüş boya ile kontak yapılmış ve Leybold model kapalı devre kryostat içerisine yerleştirilmiştir. Örneğin konulduğu odacık  $10^{-5}$ - $10^{-6}$  Torr aralığında vakumlanmıştır. Şekil 5.5' de görüleceği gibi direnç ölçüm sisteminin elektronik kısmı, IEEE-488 ara bağlantısı ile bilgisayara bağlanmış olan programlanabilir nanovoltmetre (Keithley 182), programlanabilir sabit akım kaynağı (Keithley 224) ve programlanabilir sıcaklık kontrol birimi (Lake-Shore 330)' den oluşmaktadır. Bilgisayar ile IEEE-488 ara bağlantısı arasındaki veri aktarımı MGPIB bilgisayar program ile gerçekleştirilmiştir.

Direnç ölçümlerinde örnek üzerindeki dış kontaklardan sabit akım kaynağından  $10$  mA akım uygulanmıştır. İç kısımdaki kontaklardan ise gerilimler okunmuştur. Nanovoltmetrede okunan pozitif ve negatif yöndeki akımların oluşturacağı gerilimlerin mutlak değerleri toplanmış ve ortalamaları alınmıştır. Bu

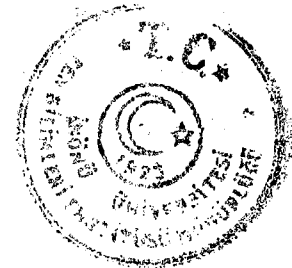


işlem 10 kez tekrar edilmiş ve direnç değeri  $R = \frac{1}{10} \sum_{i=1}^{10} \frac{V_i}{I_i}$  ifadesi ile belirlenmiştir.

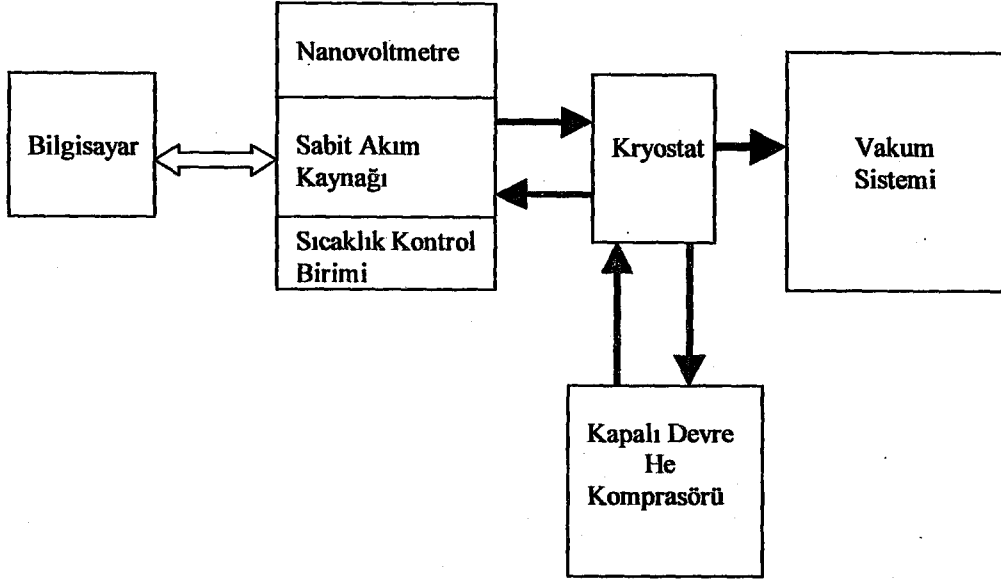
Örnek sıcaklığı sıcaklık kontrol birimine bağlı kalibre edilmiş silisyum diyot ile  $\pm 0.25$  K hassasiyetinde ölçülmüştür. Sıcaklık kontrol birimi ile her bir direnç değerine karşılık gelen sıcaklık okunarak direnç değeri ile birlikte IEEE bağlantısı aracılığıyla bilgisayara aktarılmış ve R-T eğrisi elde edilmiştir.



Şekil 5.4. KTÜ' deki direnç ölçüm sisteminin şematik gösterimi.







Şekil 5.5. Laboratuvarımızdaki direnç ölçüm sisteminin şematik gösterimi.

#### 5.4. İnfrared (IR) Soğurma Ölçümleri

Örneklerin IR soğurma ölçümleri,  $1 \text{ cm}^{-1}$  ayırma gücünde  $350\text{-}6000 \text{ cm}^{-1}$  dalga sayısında ölçüm yapabilen bilgisayar kontrollü BOMEM MB 100 model Fourier Transform infrared spektrometresinde oda sıcaklığında  $2 \text{ cm}^{-1}$  ayırma gücünde yapılmıştır. Referans maddesi olarak küçük parçacık boyutuna sahip KBr tozu kullanılmıştır.

IR soğurma ölçümleri, örneklerin hazırlanması ve ölçümlerin alınması olmak üzere iki adımdan oluşmaktadır. Birinci adım olan örneklerin hazırlanmasında, çok küçük parçacık boyutlarına sahip olana kadar örnekler öğütülmüş ve referans maddesi ile birlikte etüv de  $\sim 100 \text{ }^\circ\text{C}$ ' de kurutulmuştur.  $0.396 \text{ mg}$  KBr ve  $4 \text{ mg}$  örnek alınarak iyice karıştırılmış ve  $200 \text{ mg}$ ' lik tablet yapılmıştır. Tablet yapılırken 5 dakika 5 ton, 10 dakika 10 ton basınç uygulanmıştır. Böylece örnek hazırlanması tamamlanmıştır.

İkinci adımda hazırlanmış olan örnekler hava ortamında bekletilmeksizin içerisinde nem tutucu bulunan ölçüm odacığında bir program yardımıyla



alınmıştır. Her bir ölçümde 10 ayrı tarama yapılmış ve spekturum bu taramaların ortalaması olarak alınmıştır.

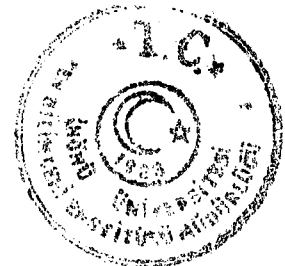
Tüm örneklerin IR soğurma ölçümleri bir defada alındığında örneklerin hazırlanmasından kaynaklanabilecek hatalar minimize edilmiştir.

### **5.5. X- Işınları Kırınım Desenlerinin Belirlenmesi**

Örneklerin kırınım desenleri  $2\theta = 1-170^\circ$  arasında  $0.001^\circ$  adımlarla sürekli ya da kesikli ölçüm yapabilen bilgisayar kontrollü Rikagu Rad B model toz difraktometresi ile alınmıştır. Ayrıca difraktometrede elde edilen sonuçlar bir program yardımıyla bilgisayarda işlenebilmektedir.

Kırınım desenleri,  $1.50456^\circ \text{A}$  dalga boyulu  $\text{CuK}\alpha$  ışınımı kullanılarak  $2\theta = 3-60^\circ$  aralığında  $6^\circ$  lik tarama hızında  $0.1$  ölçüm aralığında gerçekleştirilmiştir.

Örneklerin kristal yapısı ve birim hücre parametreleri 2 teta program yardımıyla [63] belirlenmiştir.



## 6. DENEYSEL SONUÇLAR VE SONUÇLARIN TARTIŞILMASI

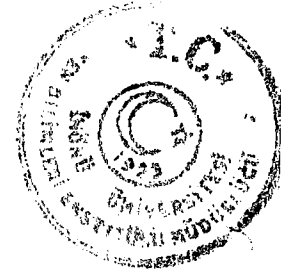
Yüksek sıcaklıkta süperiletkenlerin yüksek yoğunluklu faz olarak elde edilebilmesi ve özellikleri örnek hazırlama şartları (tavlama sıcaklığı ve süresi, ısıtma ve soğutma hızı, oksijen basıncı gibi) ile doğrudan ilişkilidir.

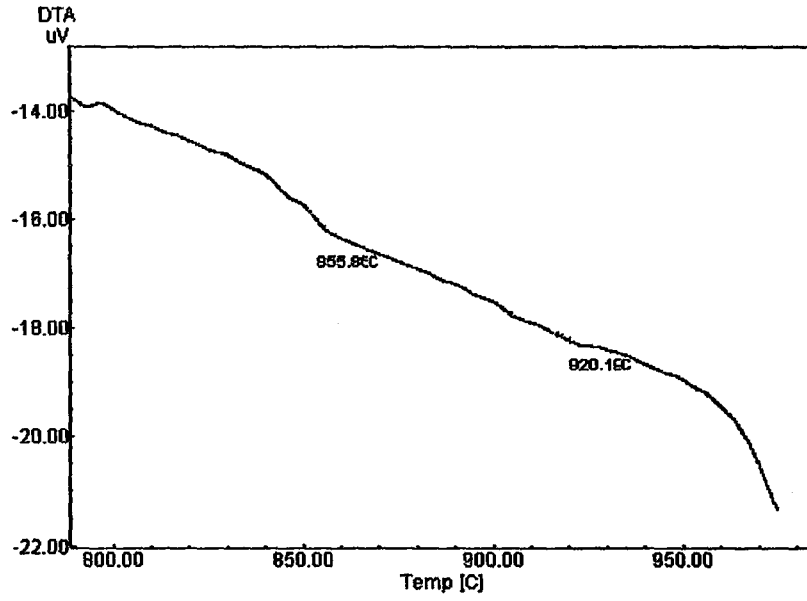
Bu çalışmada  $Y_{1-x}Nd_xBa_2Cu_3O_{7-x}$  'in ( $0 \leq x \leq 1$ ) aralığında hazırlanan örneklerin DTA (Diferansiyel Termal Analiz) ve direnç ölçümleri yapılmış ve daha sonra x-ışınları toz kırınım desenleri ile infrared soğurma spektrumları alınmıştır.

### 6.1. DTA(Diferansiyel Termal Analiz) Ölçüm Sonuçları

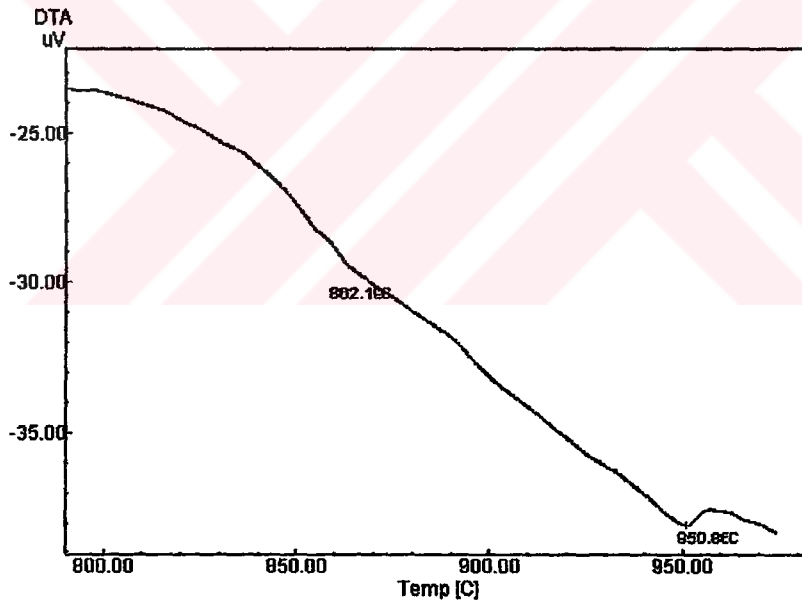
Örneklerde oluşacak yapısal değişikliklerin ve kristalleşme sıcaklıklarının belirlenebilmesi için, özellikle de örneklerin tavlama sıcaklıklarının belirlenebilmesi için DTA ( Diferansiyel Termal Analiz ) tekniği kullanılmıştır.

$Y_{1-x}Nd_xBa_2Cu_3O_{7-x}$  ( $0 \leq x \leq 1$ ) örneklerinden  $x= 0.1,0.3,0.5,0.7,0.9,1$  örneklerinin DTA ölçümlerinin alınması yeterli bulunmuş ve sonuçlar Şekil.6.1 'de verilmiştir. Bir tek platin krozeze sahip olduğumuzdan Şekil 6.1' de görüleceği gibi DTA ölçümlerinde maksimum  $980 \text{ }^\circ\text{C}$ ' a çıkmıştır. Yani örneklerin erime sıcaklığı gözlenmemiş yalnızca faz geçiş sıcaklıkları incelenmiştir. Şekil 6.1' de görüleceği gibi DTA ölçümleri alınan tüm örneklerde biri  $850 \text{ }^\circ\text{C}$  civarında, diğeri  $950.86 \text{ }^\circ\text{C}$  civarında olmak üzere iki endotermik pik gözlenmiştir. Bu piklerden  $850 \text{ }^\circ\text{C}$  de oluşan pik tetragonal-ortorombik faz geçişine karşılık gelen pik,  $950.86 \text{ }^\circ\text{C}$  civarında gözlenen pik ise kristal fazın oluşum pikidir[64-65].



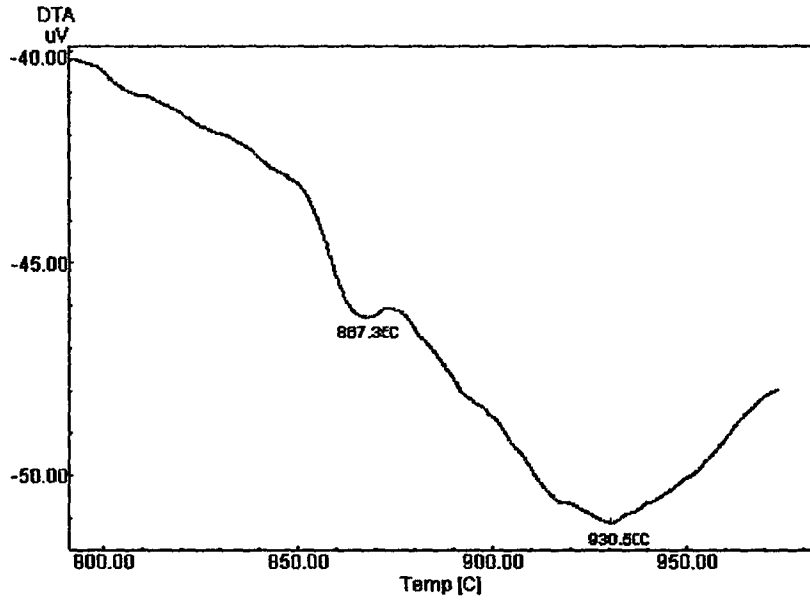


Şekil 6.1.  $Y_{0.9}Nd_{0.1}Ba_2Cu_3O_{7.8}$  'nın DTA eğrisi.

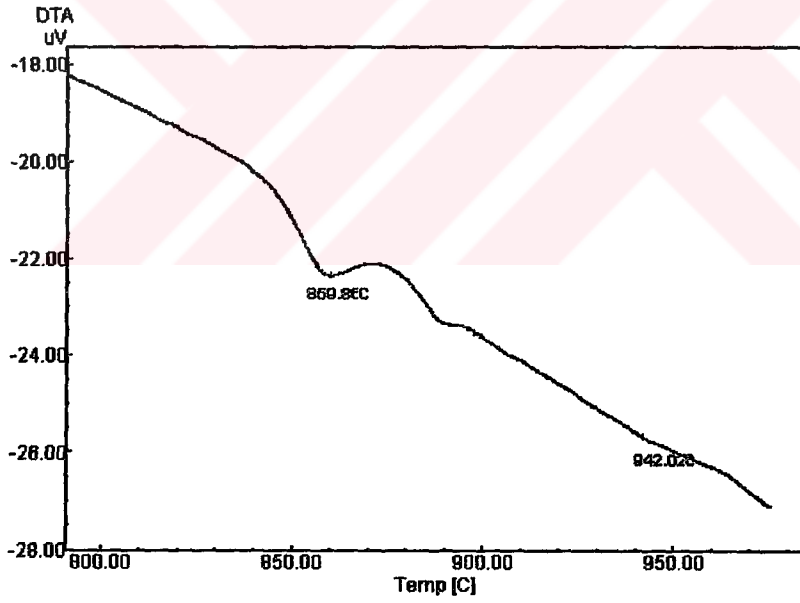


Şekil 6.2.  $Y_{0.7}Nd_{0.3}Ba_2Cu_3O_{7.8}$  'nın DTA eğrisi.

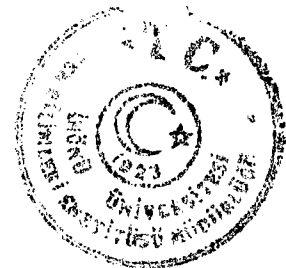


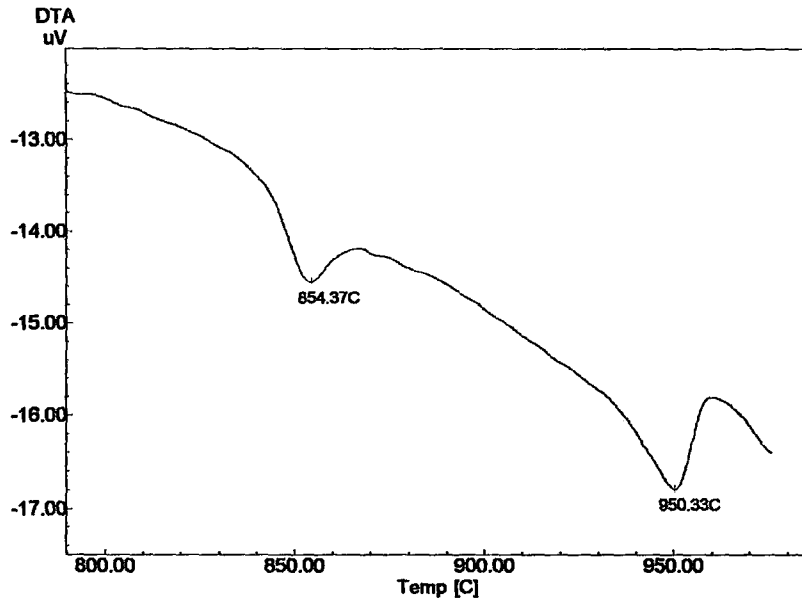


Şekil 6.3.  $Y_{0.5}Nd_{0.5}Ba_2Cu_3O_{7.8}$  'nın DTA eğrisi.

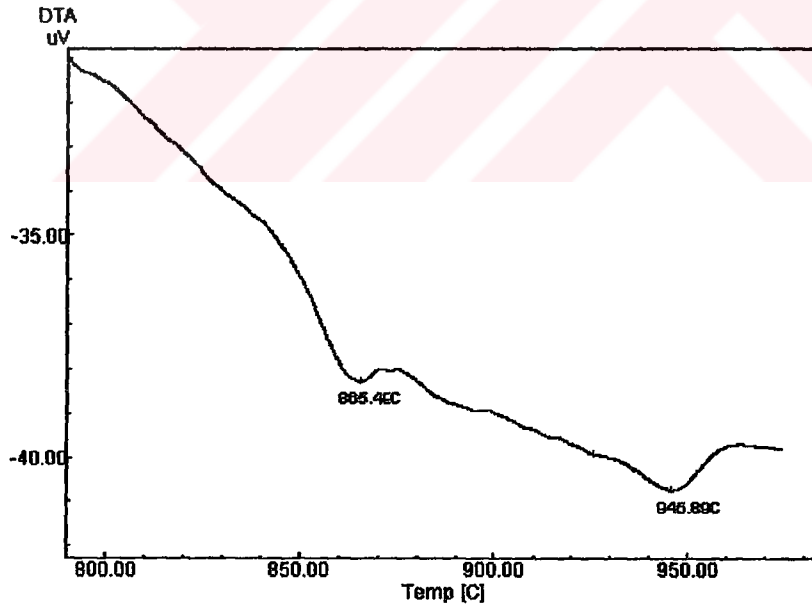


Şekil 6.4.  $Y_{0.3}Nd_{0.7}Ba_2Cu_3O_{7.8}$  'nın DTA eğrisi.





Şekil 6.5.  $Y_{0.1}Nd_{0.9}Ba_2Cu_3O_{7.8}$  'nın DTA eğrisi.



Şekil 6.6.  $NdBa_2Cu_3O_{7.8}$  'nın DTA eğrisi.

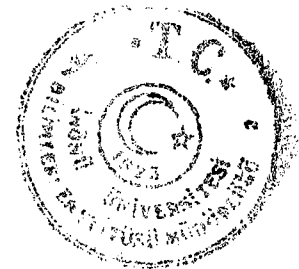


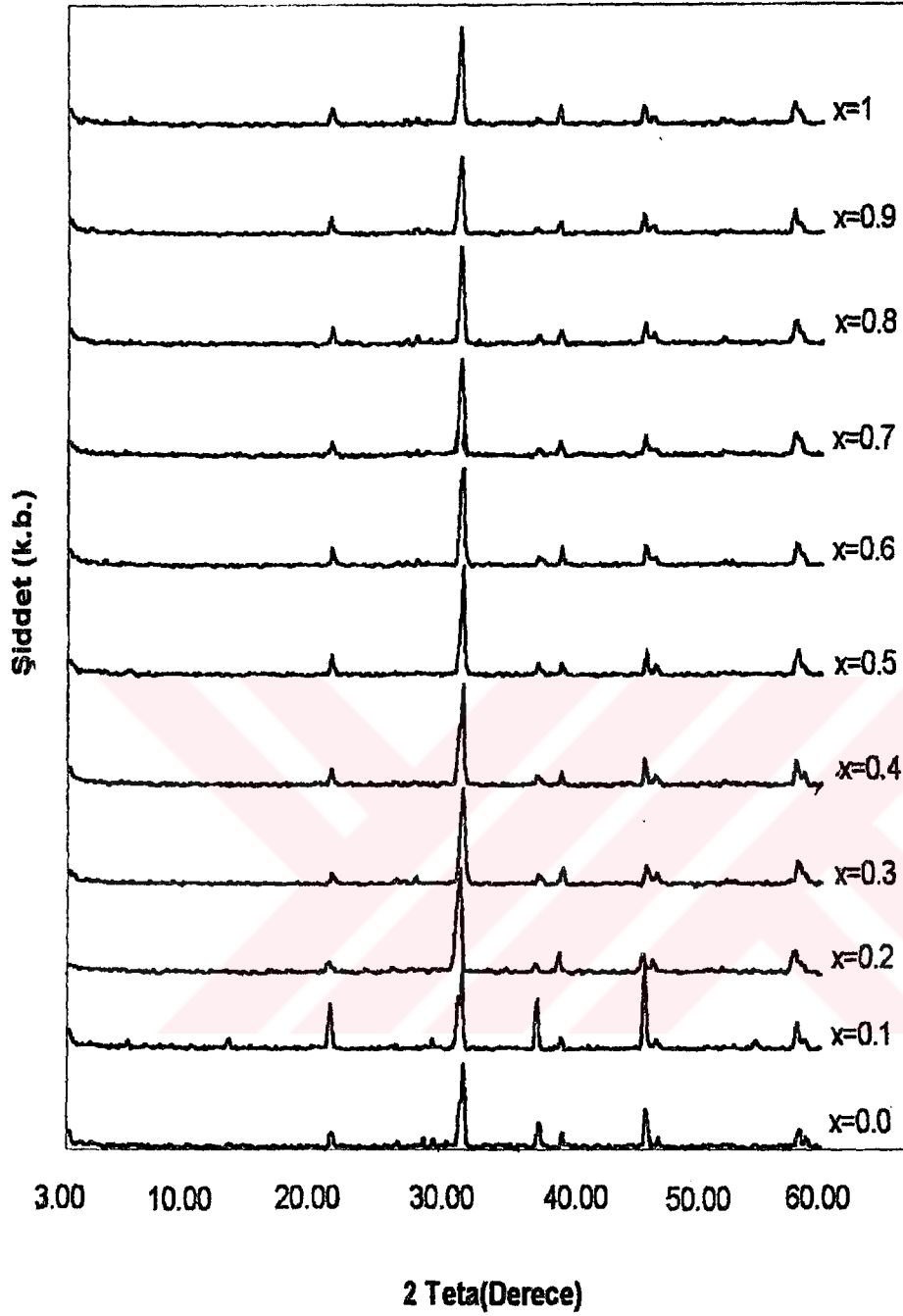
## 6.2. X- Işınları Kırınım Sonuçları

Şekil 6.7  $Y_{1-x}Nd_xBa_2Cu_3O_{7-x}$  örnekleri için x-ışınları toz kırınım desenlerini göstermektedir. Şekil 6.7' de  $x = 0.0$  için,  $YBa_2Cu_3O_{7-x}$  bileşiğinin x-ışınları kırınım desenleri gösterilmiştir. Şekil 6.7' den görüleceği gibi pik konumlarında artan Nd miktarı ile küçük açılara doğru çok küçük bir kayma görülmektedir. Bu beklenen bir durumdur. Çünkü  $Y^{+3}$  ile  $Nd^{+3}$  atomları yer değiştirilmektedir.  $Nd^{+3}$  ün iyonik yarıçapı  $1.09 \text{ \AA}$ ,  $Y^{+3}$  ün iyonik yarıçapı ise  $1.03 \text{ \AA}$  dır.  $Nd^{+3}$  ün iyonik yarıçapının büyük olması kristal yapının birim hücre parametrelerini büyütecektir. Bu nedenle  $YBa_2Cu_3O_{7-x}$  bileşiğinde gözlenen pikler artan Nd oranıyla küçük açılara doğru kaymaktadır. Artan Nd oranıyla piklerin küçük açılara kayması ve yeni piklerin gözlenmemesi aynı zamanda  $Y_{1-x}Nd_xBa_2Cu_3O_{7-x}$  sisteminde gözlenen Nd' nin Y yerine Ba yerine yerleşmediğini de göstermektedir.

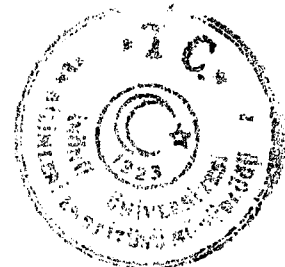
Bu durum Şekil 6.8' de verilen  $YBa_{2-x}Nd_xCu_3O_y$  sisteminin x-ışınları kırınım sonuçları ile karşılaştırmada görülebilmektedir. Şekil 6.7 de verilen kırınım desenlerinden faydalanarak  $Y_{1-x}Nd_xBa_2Cu_3O_{7-x}$  ( $0 \leq x \leq 1$ ) örneklerinin a,b,c örgü parametreleri 2 teta programı kullanılarak hesaplanmış ve Çizelge 6.1' de verilmiştir.  $NdBa_2Cu_3O_{7-x}$ ' in hesaplanan a,b,c örgü parametreleri literatürde verilen değerler ile uyum içindedir[52].

Beklenildiği gibi  $Nd^{+3}$  ün iyonik yarıçapının ( $1.09 \text{ \AA}$ )  $Y^{+3}$  ün iyonik yarıçapından büyük olmasından dolayı Y ile Nd' nin yer değiştirilmesi sonucu a,b,c birim hücre parametreleri büyümüştür. Bu durum, Şekil 6.7' de verilen x-ışınları kırınım desenleri tamamen uyum içerisindedir.





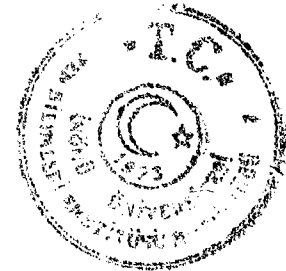
Şekil 6.7.  $Y_{1-x}Nd_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  ( $0 \leq x \leq 1$ ) Örneklerin x-ışınları kırınım desenleri.

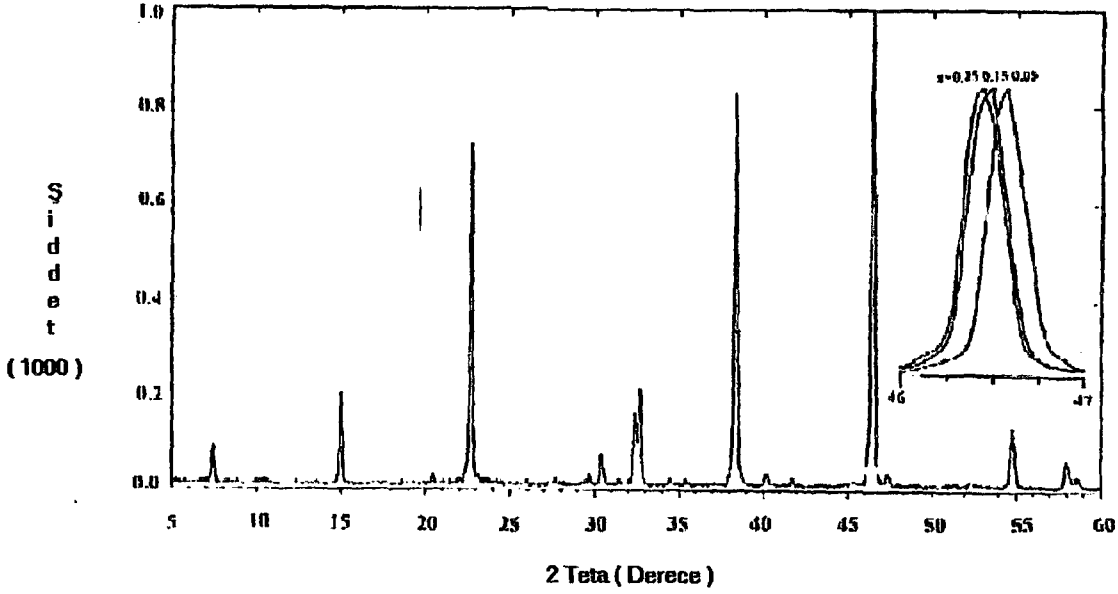




**Çizelge 6.1.** x-ışınları toz kırınım desenlerinden elde edilen a,b,c örgü parametreleri.

Düzenleniş	a(A°)	b(A°)	c(A°)
$Y_{0,9}Nd_{0,1}Ba_2Cu_3O_{7,8}$	3.826	3.8897	11.675
$Y_{0,8}Nd_{0,2}Ba_2Cu_3O_{7,8}$	3.828	3.8915	11.6789
$Y_{0,7}Nd_{0,3}Ba_2Cu_3O_{7,8}$	3.842	3.8931	11.6802
$Y_{0,6}Nd_{0,4}Ba_2Cu_3O_{7,8}$	3.8498	3.8948	11.6852
$Y_{0,5}Nd_{0,5}Ba_2Cu_3O_{7,8}$	3.858	3.8967	11.696
$Y_{0,4}Nd_{0,6}Ba_2Cu_3O_{7,8}$	3.866	3.8979	11.6942
$Y_{0,3}Nd_{0,7}Ba_2Cu_3O_{7,8}$	3.874	3.8999	11.6998
$Y_{0,2}Nd_{0,8}Ba_2Cu_3O_{7,8}$	3.883	3.9016	11.7034
$Y_{0,1}Nd_{0,9}Ba_2Cu_3O_{7,8}$	3.889	3.9038	11.7088
$Nd_{1,0}Ba_2Cu_3O_{7,8}$	3.898	3.905	11.717





Şekil 6.8.  $YBa_{2-x}Nd_xCu_3O_y$  'ün x-ışınları kırınım desenleri[66].

### 6.3. Infrared (IR) Ölçüm Sonuçları

$0 \leq x \leq 1$  aralıklarındaki  $Y_{1-x}Nd_xBa_2Cu_3O_{7-x}$  örneklerinin  $400-800 \text{ cm}^{-1}$  aralığındaki infrared (IR) soğurma spektrumları Şekil.6.9' de verilmiştir. Şekil.6.9 den görülebileceği gibi örneklerin soğurma spektrumları iki asıl IR fonon bandı göstermiştir. Bu fonon bandlarının geniş oluşunun örneklerde oluşabilecek atomik dağılımdaki düzensizliklerden kaynaklanabileceği düşünülmektedir.

$450 \text{ cm}^{-1}$  frekansının üzerindeki titreşim bandları Cu-O titreşimleri ile ilgilidir ve bu frekanslar, Cu-O formal değerlik durumları ve bağ uzunlukları ile belirlenebilmektedir.

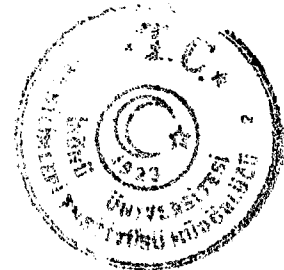
Karşılaştırma amacıyla Pmmm simetri grubuna sahip ortorombik  $YBa_2Cu_3O_{7.8}$  bileşiğinin farklı oksijen stokiyometrilere için IR titreşim spektrumları Şekil.6.10' de verilmiştir[67].  $YBa_2Cu_3O_{7.8}$  süperiletken bileşiğinin yüksek oksijen konsantrasyonu için ( $y=0.05$ ) IR spektrumu  $573 \text{ cm}^{-1}$  ve  $621 \text{ cm}^{-1}$  frekanslarında iki IR soğurma bandı göstermektedir. Bu soğurma bandları Şekil 6.9' dan da görüleceği gibi  $x=0.1$  ve  $x=0.2$  örneklerinde de görülmektedir.

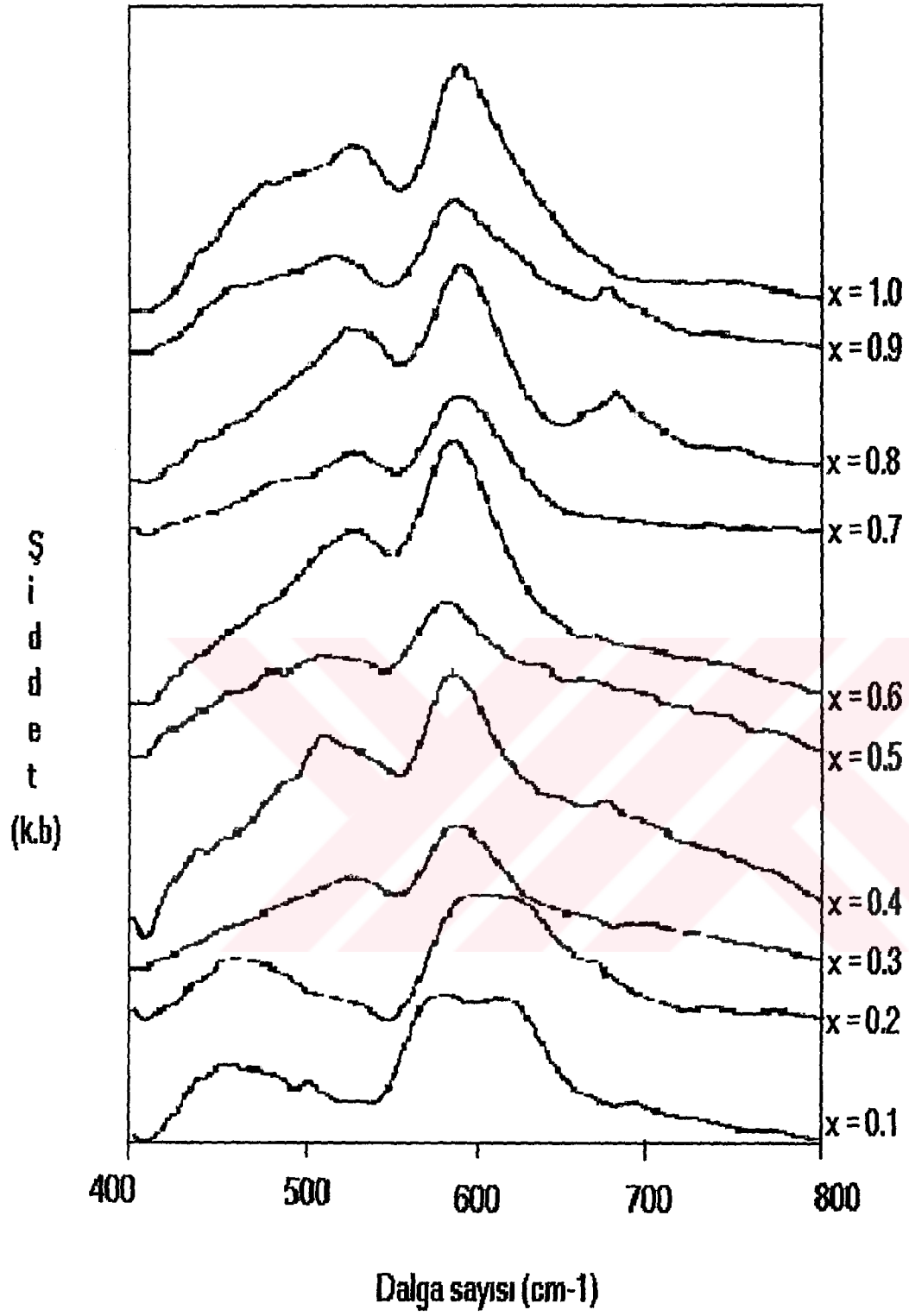
Bununla birlikte bu bandlar diğer örneklerin IR spektrumlarında kaybolmakta, fakat 533 ve 588  $\text{cm}^{-1}$  frekanslarında yeni soğurma bandları ortaya çıkmaktadır.

$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7.5}$  ' de gözlenen 573  $\text{cm}^{-1}$ ' deki infrared fonon bandı kuvvetli elektron-fonon çiftlenimini göstermekte ve eksensel antisimetrik gerilme modunu (Cu (1)-O(1) titreşimlerini) işaret etmektedir. 621  $\text{cm}^{-1}$ ' deki fonon bandı ise eksensel antisimetrik gerilme modunu (Cu(1)-O(4) titreşimlerini) göstermektedir [67-68].

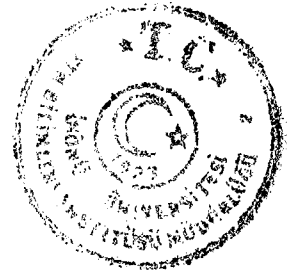
Şekil 6.9 da görüleceği gibi bu infrared bandları  $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7.5}$  ( $x = 1$ ) bileşiğinde sırası ile 533  $\text{cm}^{-1}$  ve 588  $\text{cm}^{-1}$  frekanslarına kaymaktadır. Fonon bandlarında görülen bu kayma, örgü parametrelerinin büyümesi ve Cu-O bağ uzunluklarının artmasından kaynaklanmaktadır.

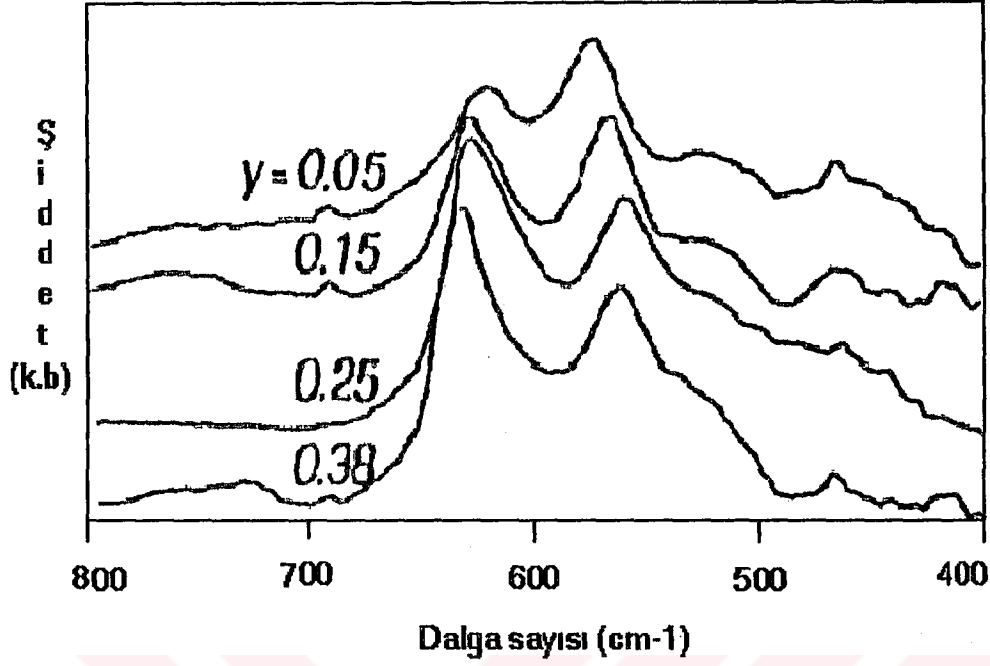
$\text{Nd}^{+3}$ ' ün iyonik yarıçapı  $\text{Y}^{+3}$ ' ün iyonik yarıçapından büyük olmasından dolayı  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7.5}$  bileşiğinde yapıya Y yerine Nd katılanması ile birim hücre büyümekte ve Cu-O düzlemleri Cu-O zincirleri arasındaki örgüler yeni düzenlenmeye gitmektedir. Bunun sonucunda da IR soğurma titreşimleri daha düşük frekanslara kaymaktadır.





Şekil 6.9.  $Y_{1-x}Nd_xBa_2Cu_3O_{7-x}$  ( $0 \leq x \leq 1$ ) Örneklerin infrared soğurma spektrumları.





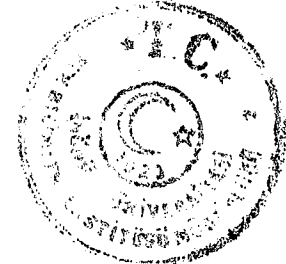
Şekil 6.10.  $YBa_2Cu_3O_{7-y}$  bileşiğinin farklı oksijen miktarları için infrared soğurma spektrumları[67].

#### 6.4. Direnç Ölçüm Sonuçları

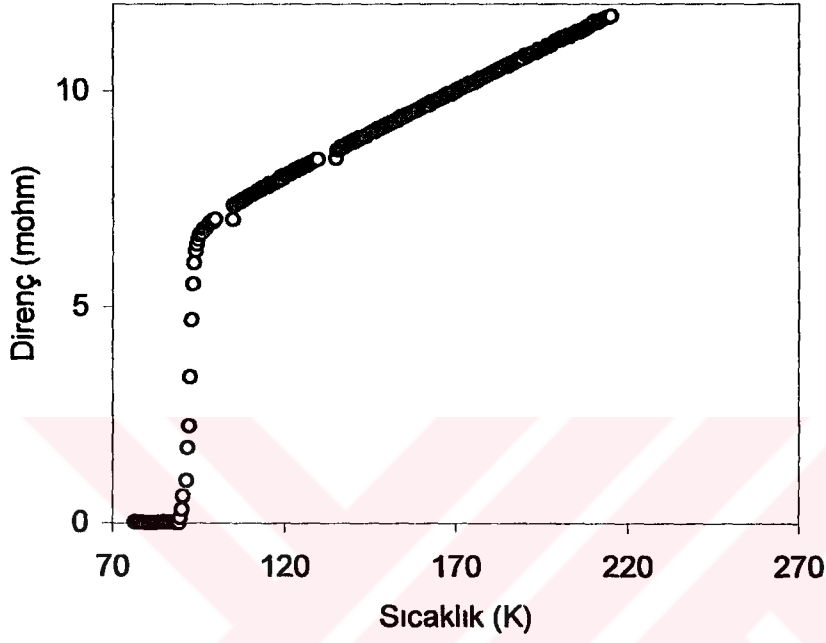
$Y_{1-x}Nd_xBa_2Cu_3O_{7-x}$  ( $0 \leq x \leq 1$ ) örneklerinin direnç-sıcaklık ölçüm sonuçları Şekil 6.11-20'de verilmektedir. Direnç-sıcaklık eğrilerinden de görüleceği gibi tüm örnekler süperiletken özellik göstermekte ve örneklerin geçiş sıcaklıkları 80-100 K aralığında değişmektedir.

$YBa_2Cu_3O_{7-x}$  bileşiği 90 K' de süper iletkenlik geçişi gösterirken Nd katkılı örneklerin çoğu 90 K' in üzerinde geçiş sıcaklıkları göstermektedirler. Bu durum literatür ile uyum içerisindedir. Çünkü literatürde  $ReBa_2Cu_3O_{7-x}$  süperiletken bileşikler içerisinde en yüksek kritik sıcaklık gösteren bileşiğin  $NdBa_2Cu_3O_{7-x}$  bileşiği olduğu ileri sürülmektedir[11-12].

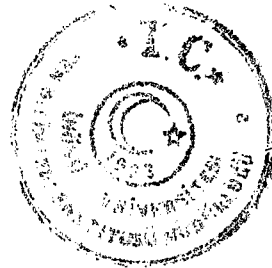
Direnç-sıcaklık eğrilerinden de görüleceği gibi tüm örneklerin normal faz dirençleri metalik özellik göstermiş fakat direnç-sıcaklık eğrilerinin eğiminde herhangi bir değişim görülmemiştir. Aynı şekilde örneklerin normal bölge direnç değerlerinde de artan Nd oranı ile artma veya azalma gibi herhangi bir direnç değişimi gözlenememektedir.

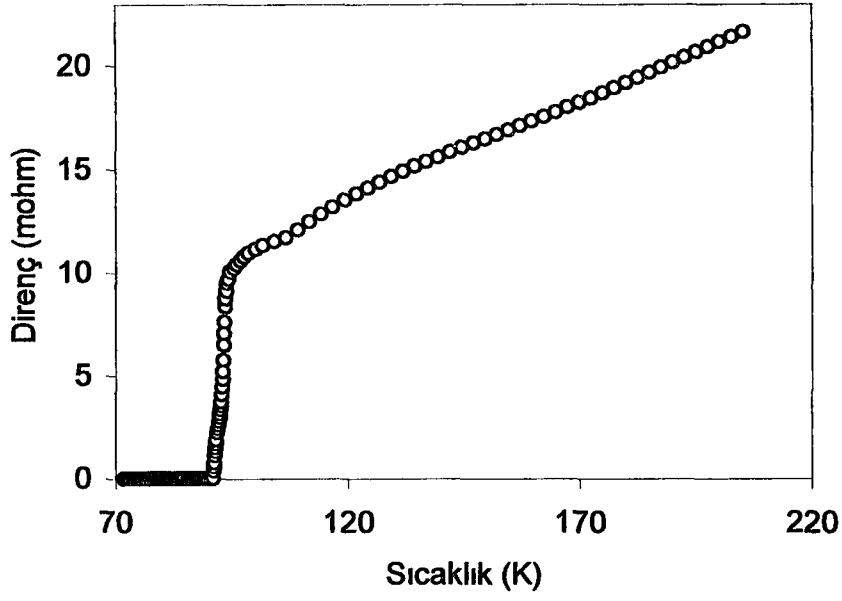


Bununla birlikte tüm örneklerin direnç değerleri (metalik fazda) mΩ mertebesinde düşük değerler göstermiştir. Süperiletkenlik geçiş sıcaklık aralıkları ise keskin denilebilecek dar bir sıcaklık aralığına sahip olmaktadır.

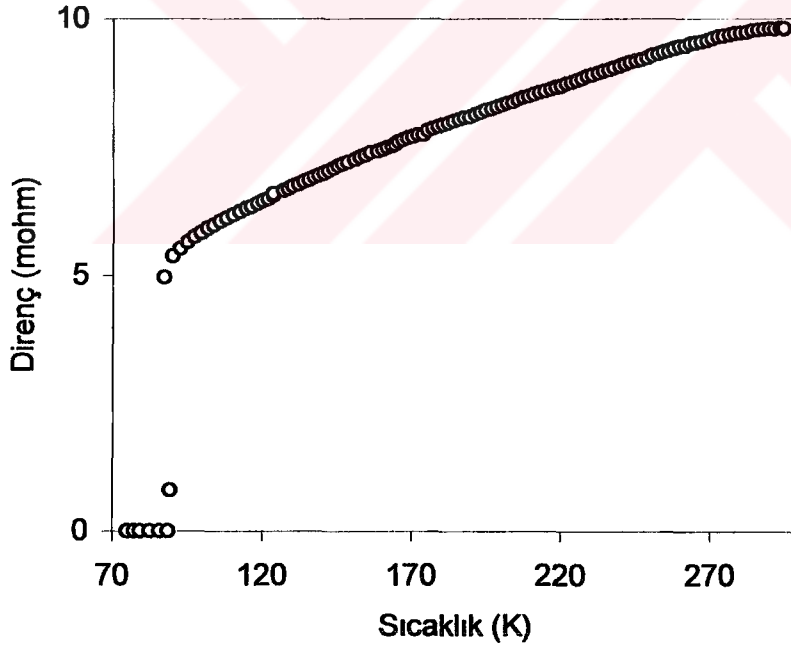


Şekil 6.11.  $YBa_2Cu_3O_{7.8}$  bileşiğinin direnç-sıcaklık eğrisi.

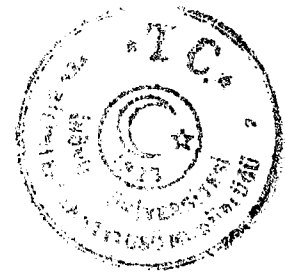


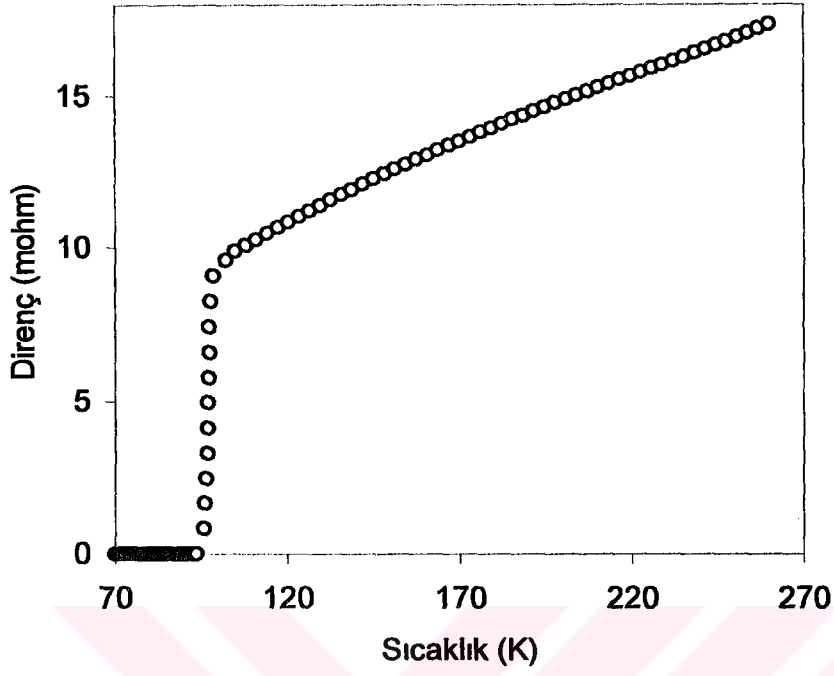


Şekil 6.12.  $Y_{0.9}Nd_{0.1}Ba_2Cu_3O_{7-x}$  'in direnç-sıcaklık eğrisi.

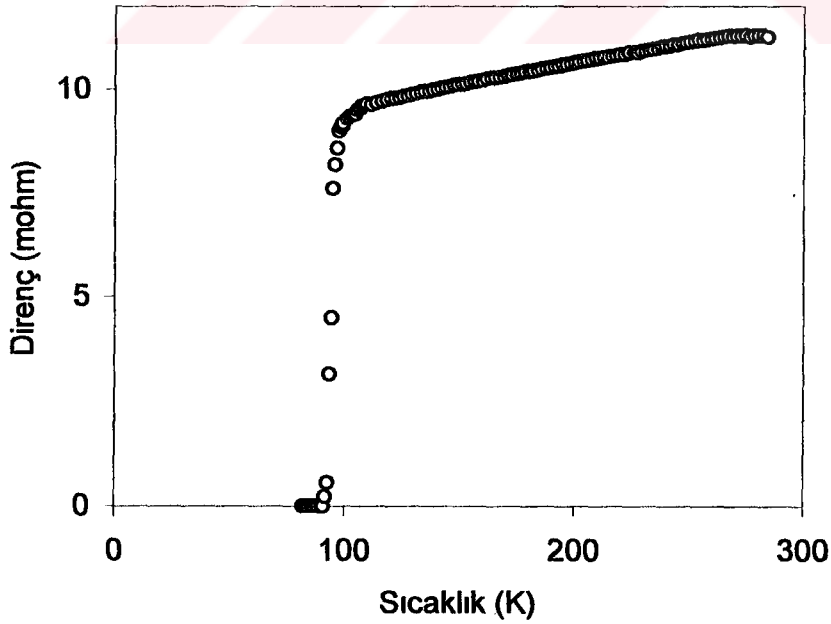


Şekil 6.13.  $Y_{0.8}Nd_{0.2}Ba_2Cu_3O_{7-x}$  'in direnç-sıcaklık eğrisi.





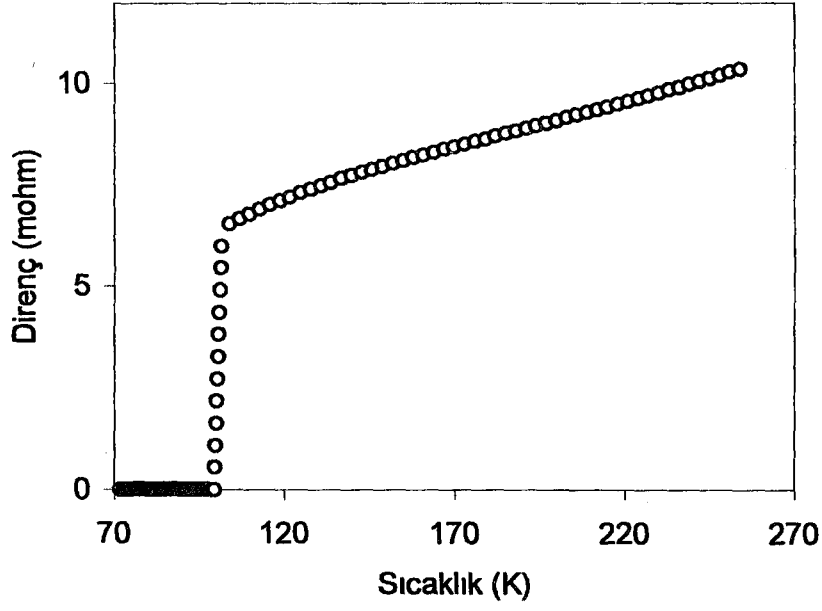
Şekil 6.14.  $Y_{0.7}Nd_{0.3}Ba_2Cu_3O_{7-x}$  'in direnç-sıcaklık eğrisi.



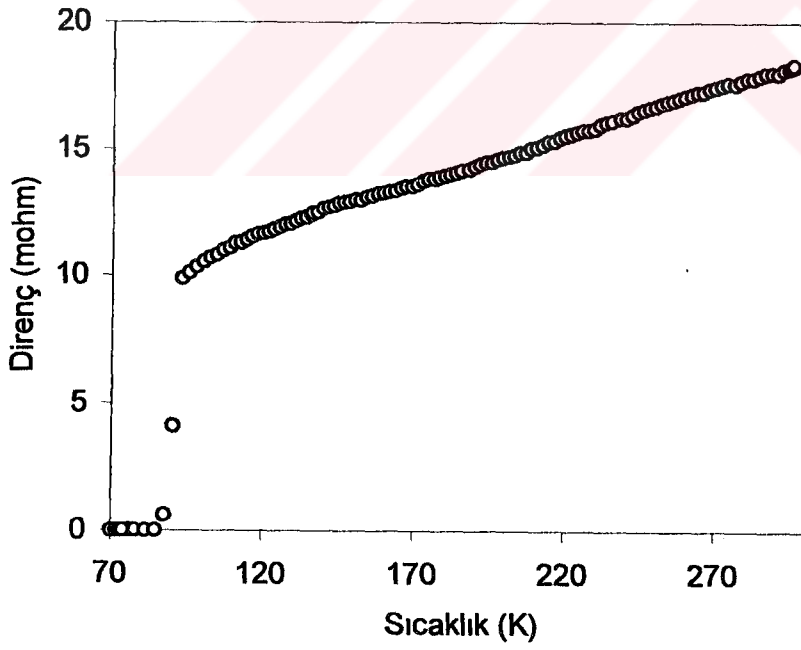
Şekil 6.15.  $Y_{0.6}Nd_{0.4}Ba_2Cu_3O_{7-x}$  'in direnç-sıcaklık eğrisi.



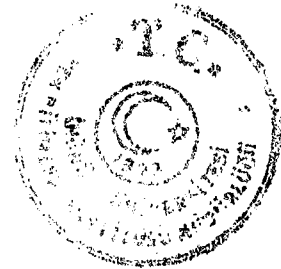


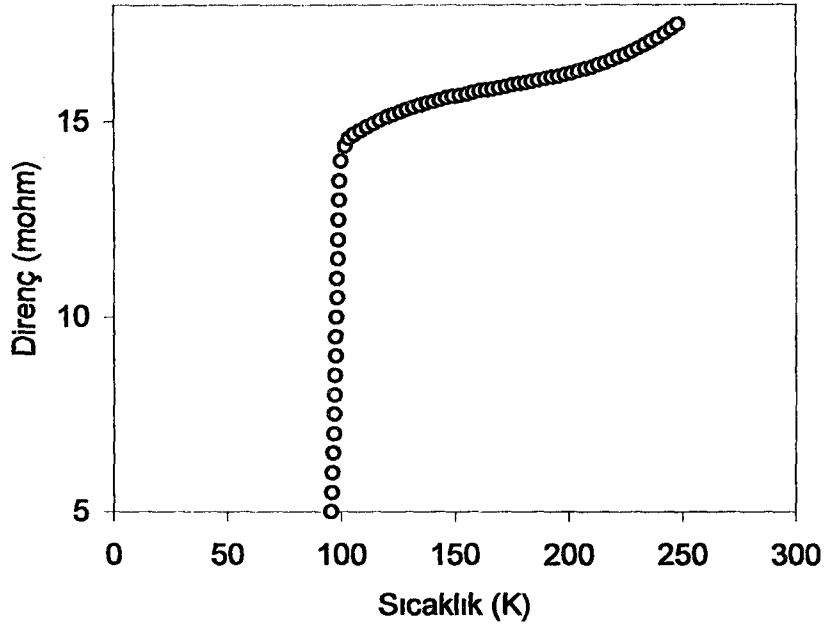


Şekil 6.16.  $Y_{0.5}Nd_{0.5}Ba_2Cu_3O_{7-x}$  'in direnç-sıcaklık eğrisi.

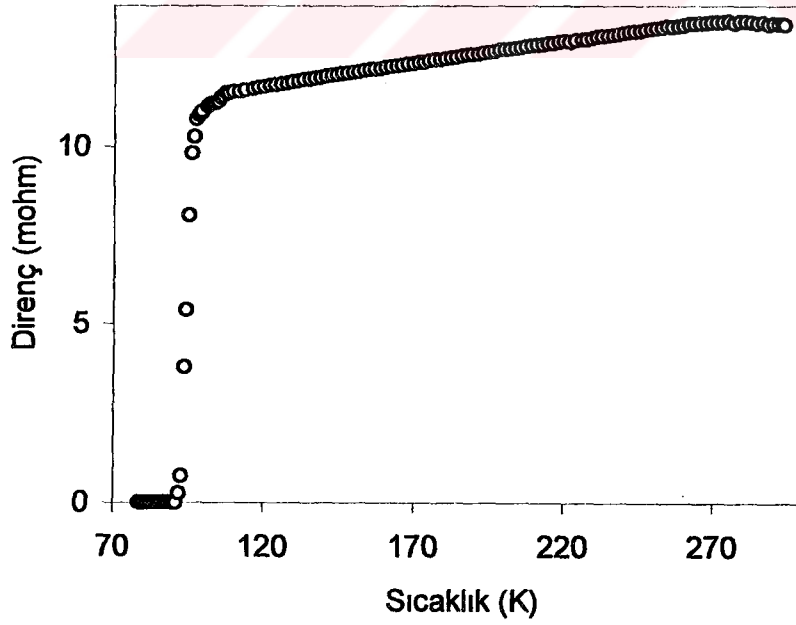


Şekil 6.17.  $Y_{0.4}Nd_{0.6}Ba_2Cu_3O_{7-x}$  'in direnç-sıcaklık eğrisi.



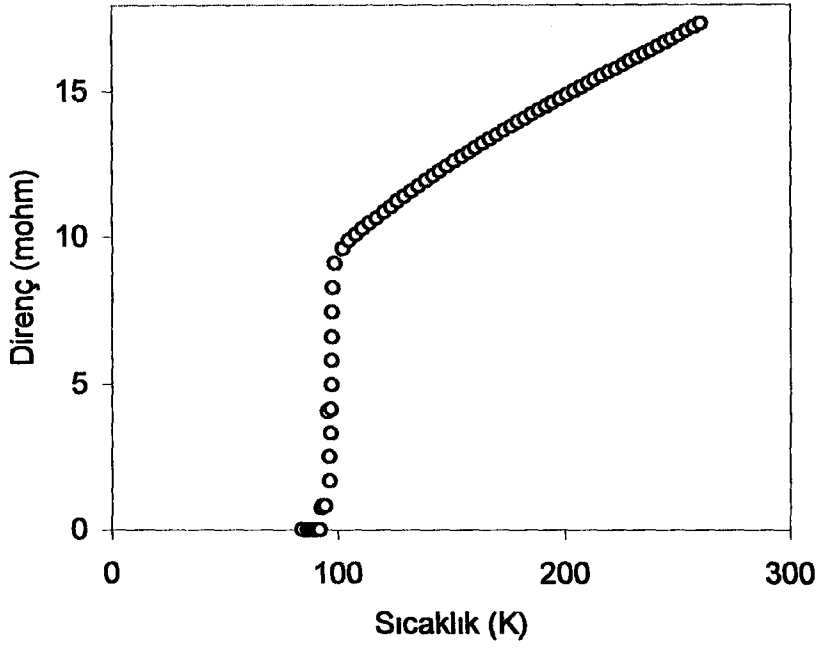


Şekil 6.18.  $Y_{0.3}Nd_{0.7}Ba_2Cu_3O_{7-x}$  'in direnç-sıcaklık eğrisi.

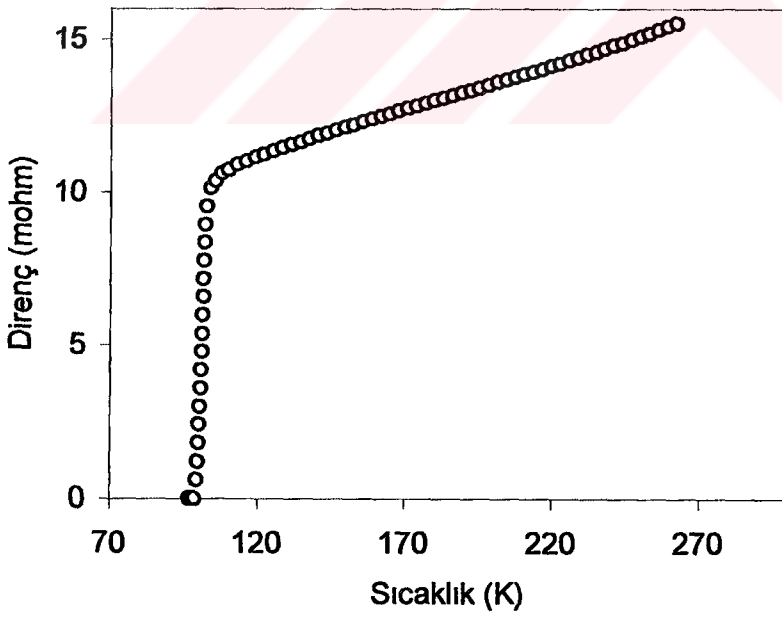


Şekil 6.19.  $Y_{0.2}Nd_{0.8}Ba_2Cu_3O_{7-x}$  'in direnç-sıcaklık eğrisi.





Şekil 6.20.  $Y_{0.1}Nd_{0.9}Ba_2Cu_3O_{7-x}$  'in direnç-sıcaklık eğrisi.



Şekil 6.21.  $NdBa_2Cu_3O_{7-x}$  'in direnç-sıcaklık eğrisi.



## 7. SONUÇ

Bu çalışmada, sıvı azot sıcaklığının (77 K) üzerinde ilk süperiletken olan bu nedenle yüksek sıcaklık süperiletkenler içerisinde keşfi büyük öneme sahip, kararlı bir bileşik olan  $YBa_2Cu_3O_{7-x}$  süperiletken bileşiğine farklı iyonik yarıçapa sahip Nd katkısının süperiletkenlik ve yapısal özellikler üzerine etkisi çalışılmıştır.

Bu amaçla örneklerin öncelikle DTA ölçümleri yapılmıştır. Örneklerin DTA ölçümlerinde iki pik gözlenmiş bunlardan düşük sıcaklık pikinin örneklerin tetragonal-ortorombik faz geçişine karşılık geldiği, yüksek sıcaklık pikinin ise kristal fazın oluşumuna karşılık geldiği belirlenmiştir.

DTA sonuçlarının incelenmesi ile 960 °C civarında örneklerin tavlmasının uygun olduğu belirlenmiş ve tüm örnekler 960 °C' de tavlansmıştır. Örneklerin hazırlanma aşamasında oksijen atmosferinin önemli olduğu,  $YBa_2Cu_3O_{7-x}$  bileşiğinde olduğu gibi tetragonal-ortorombik faz geçişinin oksijen stokiyometrisine bağlı olduğu gözlenmiştir. Bu nedenle tüm ısıl işlemler oksijen atmosferinde gerçekleştirilmiştir.

$Y_{1-x}Nd_xBa_2Cu_3O_{7-x}$  ( $0 \leq x \leq 1$ ) örneklerinin direnç ölçümleri, tüm örneklerin süperiletken özellik gösterdiği ve geçiş sıcaklıklarının 80-100 K aralığında değiştiğini göstermiştir. Aynı zamanda normal faz bölgesi dirençlerinin metalik davranışa sahip olduğu ve bu metalik bölge dirençlerinin  $m\Omega$  civarında oldukları görülmüştür. Süperiletkenlik geçiş sıcaklık aralıklarının ise keskin sayılabilecek ölçüde dar bir sıcaklık aralığına sahip olduğu gözlenmiştir. Örneklerin direnç-sıcaklık eğrilerindeki metalik bölge direncinin düşük oluşu ve süperiletkenlik geçiş sıcaklık aralığının dar oluşu örneklerin düşük oranlarda safsızlıklara sahip olduğunu göstermektedir.

Bir sonraki adım olarak örneklerin yapısal karakterizasyonuna geçilmiş ve bu amaçla x-ışınları kırınım desenleri belirlenmiş ve kırınım desenlerindeki pikler ortorombik Pmmm uzay grubu simetrisinde indislenmiştir. Kırınım desenlerinden hareketle örneklerin birim hücre parametreleri bulunmuştur.  $Y_{1-x}Nd_xBa_2Cu_3O_{7-x}$  ( $0 \leq x \leq 1$ ) örneklerinden  $x = 0$  örneğinin ( $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ ) birim hücre parametreleri



$a = 3.818 \text{ \AA}$ ,  $b = 3.888 \text{ \AA}$  ve  $c = 11.667 \text{ \AA}$  olarak belirlenmiştir.  $x = 0.1-1$  aralığındaki örneklerin örgü parametrelerinin ise artan  $x$  oranı ile büyüdüğü gözlenmiştir. Bu durum  $\text{Nd}^{+3}$ , ün iyonik yarıçapının  $\text{Y}^{+3}$ , ün iyonik yarıçapından büyük olması ile açıklanabilmektedir.

X-ışınları kırınım desenlerinde safsızlık piklerinin hemen hemen hiç gözlenmemesi  $\text{Y}_{1-x}\text{Nd}_x\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  bileşiklerinde Y yerine konulması düşünülen Nd' nin Ba yerine geçmediğinin bir kanıtı olduğunu düşündürmektedir. Bu durum direnç ölçüm sonuçları ile de uyum içerisindedir.

$\text{Y}_{1-x}\text{Nd}_x\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  ( $0 \leq x \leq 1$ ) örneklerinin IR soğurma spektrumlarından Cu-O titreşim bandları belirlenmiştir. Spektrumlar iki asıl band göstermişlerdir.  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  bileşiğinde gözlenen  $573 \text{ cm}^{-1}$  ve  $621 \text{ cm}^{-1}$  frekanslarında gözlenen IR bandları  $\text{Y}_{1-x}\text{Nd}_x\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  ( $0 \leq x \leq 1$ ) örneklerinden  $x = 0.1$  ve  $x = 0.2$  örneklerinde de gözlenmiş diğer örneklerde ise daha düşük frekanslara kaymıştır.

$\text{Nd}_x\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  bileşiğinde ise  $533 \text{ cm}^{-1}$  ve  $588 \text{ cm}^{-1}$  frekanslarında ortaya çıkmaktadır. Bu IR bandları sırasıyla eksensel antisimetrik gerilme modunu (Cu(1)-O(1) titreşimlerini) ve eksensel asimetrik gerilme modunu (Cu(1)-O(4) titreşimlerini) göstermektedir. Cu-O titreşim frekanslarındaki bu kayma  $\text{Nd}^{+3}$ , ün iyonik yarıçapının  $\text{Y}^{+3}$ , ün iyonik yarıçapından büyük olması sonucu birim hücre boyutlarının büyümesi ve dolayısıyla bağ uzunluklarının artmasıyla açıklanabilmektedir.

Sonuç olarak; direnç ölçümleri, x-ışınları toz kırınım ölçümleri ve infrared ölçümlerinin birbiriyle uyumlu olduğu gözlenmiştir. Yapılan ölçümler tüm örneklerin yüksek yoğunlukta süperiletken faz içerdiğini ve beklenildiği gibi  $\text{Nd}^{+3}$ , ün  $\text{Y}^{+3}$  yerine geçtiğini, süperiletken özelliklerde (kritik sıcaklıkta) az da olsa bir iyileşmenin gerçekleştiğini göstermiştir. İyonik yarıçap etkisinin tam olarak anlaşılabilmesi için daha fazla çalışmanın yapılması gerektiği ve  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  bileşiğinde sadece Y yerine değil de bileşikteki diğer elementlerin de değiştirilerek incelenmesi gerektiği düşünülmektedir.



## KAYNAKLAR

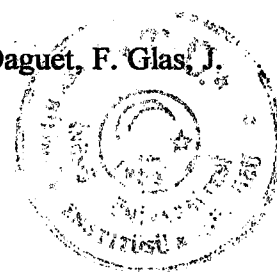
- 1) J.G. Bednorz and K.A. Müller, *Condensed Matter* 64, 189-193 (1986)
- 2) C.W. Chu, P.H. Hor, R.L. Meng, L. Gao and Z.Y. Huang, *Science*, 235,567, (1987)
- 3) A.Poddar, P. Mondal, P. Choudhury, A.N. Das and B. Ghosh, *Solid State Phys.* 21, (1988)
- 4) J.K. Liang, X.T.Xu, S.S. Xie, G.H. Rao, X.Y. Shao and Z.G. Duan, *Condensed Matter* 69, 137-140, (1987)
- 5) C. Infante, M.K. El Mously, R.Dayal, M. Husain, S.A. Siddiqi and P. Ganguly, (1990), 50-90
- 6) Y. Saito, T. Noji, A. Endo, N. Higuchi, K. Fujimoto, T. Oikawa, A. Hattari and K. Furuse, *Physica* 148B, (1987), 336-338
- 7) R. Liang, T. Nakamura, H. Kawaji, M. Hoh and T. Nakamura, *Physica C* 170, (1990), 307-314
- 8) S. Mazumder, H. Rajagopal, A. Segueria, R. Venkatramani, S.D. Gorg, A.K. Rajarajan, L.C. Gupta and R. Vijayaraghavan, *J. Phys. C: Solid State Phys.* 21, (1988), 5967-5976
- 9) R. Semerad, P. Berberich, B. Utz, W. Prusseit, YBaCuO film deposition on diameter of 9 inches, *Proceedings of the International Superconductive Electronics Conference (ISEC' 95) Nagoya*, (1995), p. 521
- 10) S.I. Yoo, N. Sakai, H. Takaichi, T. Higuchi, M. Murakami, *Appl. Phys. Lett.* 65, (1994), 633
- 11) M. Reedky, T. Timusk, J.S. Xue and J.E. Greedon, *Phys. Rev. B.* 49, (1992), 15984
- 12) S.Tajima, T.Ido, S. Ishibashi, T. Itoh, H. Eisaki, Y. Mizou, T. Arima, H. Tagaki and S. Uchida, *Phys. Rev. B.* 43, (1991), 10496
- 13) W. Meissner and R. Ochsenfeld, *Naturwissenschaften* 21, 787, (1933)
- 14) H. Kamerling-Onnes, *Leiden Commun.*, 120,1226,124c, (1911)
- 15) D.C. Jonston, H. Prakash, *Mater. Res. Bull.* 8, 777, (1973)
- 16) C. Michel, M. Herviev, M. Borel, A. Garndin, F. Deslandes, J. Provost and B. Raveau, *Z. Phys. B.* 68, (1987)
- 17) Z.Z. Sheng, A.El Ali and A.M. Hermann, *Phys. Rev. Lett.* 60, 937, (1988)



- 18) A. Schilling et al. (Nature (London) 363,56, (1993); L. Gao et al., Physica C 213,261, (1993)
- 19) A. Brinkman, D. Mijatovic, G. Rijnders, V. Leca, H.J.H. Smilde, I. Oomen, A.A. Golubov, F. Roesthuis, S. Harkema, H. Hilgenkamp, D.H.A. Blank, H. Rogalla, Physica C, 353, (2001), 1-4
- 20) K.H. Müller, G. Fuchs, A. Handstein, K. Nenkov, V.N. Norozhyni, D. Eckert, Journal of Alloys and Compounds, 322, (2001), L10-L13
- 21) T.R. Dinger, T.K. Worthington, W.J. Gallagher and R.L. Sandstrom, Phys. Rev. Lett., 58,25 2687, (1987)
- 22) F. London and H. London, Proc.Roy.Soc., London A149, 71, (1935)
- 23) M.R. Beasley, Department of Applied Physics Stanford University Stanford, CA 94305-4090 USA
- 24) V.L. Ginzburg and L.D. Landau, 24 Eksp. Fiz.20 1064, (1950)
- 25) J. Bardeen, L.N. Cooper and J.R. Schrieffer, Phys. Rev. 108, 1175, (1957)
- 26) J.F. Kwak, E.L. Venturini and D.S. Ginley, Physica 148B, (1987), 426-428
- 27) L.C. Bourne and A.Zettl, K.J. Chang and Marvin L.Kohen, Angelica M. Stacy and W.K. Ham, Physical Review B Volume 35, Number 16
- 28) C. Dong, J.K. Liang, G.C. Che, S.S. Xie, Z.X. Zhao, Q.S. Yang, Y.M. Ni and G.R. Liu, Physical Review B Volume 37, Number 10
- 29) R.J. Cava, Scientific American, 24 August (1990), C. Dong, J.K. Liang, G.C. Che, S.S. Xie, Z.X. Zhao, Q.S. Yang, Y.M. Ni and G.R. Liu, (September 1987)
- 30) T. Kaneko, H. Yoshida, Y. Syono, H.Morita, S.Abe, K. Noto and H. Fujimori, Physica 148B, (1987), 494-496
- 31) T. Oguchi, Jpn.J.Appl.Phys.26. L417, (1987)
- 32) J.D. Jorgensen, H.B. Shünler, D.G. Hinks, D.W. Capone, II. K. Zheng and M.B. Brodsky and D.J. Scalapino, Physical Review Letters Volume 58, Number 10
- 33) M.K. Wu, J.R. Ashbourn, C.J. Torng, L.R. Meng, L. Gao, Z.J. Huang, Y.Q. Wang and C.W. Chu, Phys.Rev.lett. 58,908, (1987)
- 34) J.D. Jorgensen, B.W. Veal, W.K. Kwok, G.W. Grabtree, A. Umezawa, L.J. Nowicki and A.P. Paulikas, Physical Review B Volume 34, Number 10, (1987)
- 35) J.D. Jorgensen, M.A. Beno, D.G. Hinks, L. Soderholm, K.J. Volin, R.L. Hitterman, J.D. Grace, I.K. Schuller, C.U. Segre, K. Zhang And M.S. Kleefisch, Phys.Rev.B36,3608, (1987)



- 36) J.W. Lynn, High Temperature Superconductivity, Springer Verlag, New York, (1990)
- 37) R.P. Gupta, M. Gupta, Physica C 171, 465, (1990)
- 38) M. Matsui, K. Ohmori, T. Shimizu And M. Doyama, Physica 148B, 432, (1987)
- 39) C.N.R. Rao, Solid State Chem., (To be published)
- 40) T.A. Sasaki, Y. Baba, N. Masaki And I. Jakano, Jpn. J. Appl. Phys. 10 L1569, (1987)
- 41) By W.W. Schmahl, E. Salje and W.Y. Liang, Philosophical Magazine Letters, (1988), Vol. 58, No. 4, 173-181
- 42) K. Nakamura H. Aoki, A. Matsushita, S. Kaise, Y. Asada, T. Matsumoto, T. Hoshi and K. Ogawa, Physica 148B, (1987), 318-321
- 43) P. Raju Gupta and M. Gupta, Physical Review B, Volume 47, (1992)
- 44) S. Uchida, H. Takagi, K. Kitazawa And S. Tanaka, Jpn. J. Appl. Phys. 26, L1, (1987)
- 45) W.M. Yang, L. Zhou, Y. Feng, P.X. Zhang, M.Z. Wu, W. Gawalek, P. Gornert Physica C 337, (2000) 115-120
- 46) N. Chikumota, J. Yoshioka, M. Otsuka, S.I. Yoo and M. Murakami, Physica C 282-287 (1997), 2295-2296
- 47) I. Monot, F. Tancret, P. Laffez, G. Van Tendeloo, G. Desgardin, Materials Science and Engineering 365, (1999), 26-34
- 48) G. Flor, G. Chiodelli, G. Spinolo, P. Ghigna, Physica C 316, (1999), 13-20
- 49) V.V. Petrykin, E.A. Goodilin, J. Hester, E.A. Trofimenko, M. Kakihana, N.N. Oleynikov, Yu. D. Tretyakov, Physica C 340, (2000), 16-32
- 50) H. Maeda, Y. Tanaka, M. Fukutomi And T. Asano, Jpn. J. Appl. Phys. Lett. 4, L209, (1988)
- 51) M.J. Tarascon, Y. Le Page, P. Borboux, B.G. Bagley, L.H. Greene, W.R. Mc Kinnon, G.W. Hull, M. Giroud And D.M. Hwang, Phys. Rev. B 37, 9382, (1988)
- 52) Z.Z. Sheng and A.M. Hermann, Nature (London) 332, 138, (1988)
- 53) S.S. Parkin, V.Y. Lee, E.M. Engler, A.I. Nazzal, T.J. Huang, G. Gorman, R. Savoy and R.B. Beyers, Phys. Rev. Lett. 60, 2539, (1988)
- 54) L. Pierre, D. Morin, J. Schneck, J.C. Toledano, J. Primot, C. Daguët, F. Glas, J. Etrillard and H. Sovary, Solid State Commun., 69,499, (1989)





- 55) M.A. Subramanian, C.C. Torard, J. Gopalakrishnan, J.C. Calabrese, K. Morrissey, T.R. Askew and A.W. Sleight, Physica C 153,608, (1988)
- 56) C. Allgeier, J.S. Jchilling and M. Yomonaka, Jpn. J. Appl. Phys. 28,L34, (1989)
- 57) F. Muarakata, K. Shirohara And M. Yomanaka, Jpn. J. Appl. Phys. 28, L34, (1989)
- 58) H. Shaked, P.M. Keone, J.C. Rodriguez, F.F. Owen, R.L. Hitterman, J.D. Jorgensen, Physica C, Crystal Structures of the High-T<sub>c</sub> Superconducting Copper-oxides, (1989)
- 59) S.N. Putilin, E.V. Antipov, O. Chmaissem, M. Marezio, (Letters to Nature)
- 60) L. Gao, Y.Y. Xue, F. Chen, Q.Xiong, R.L. Meng, D. Ramirez and C.W. Chu Physical Review B, (1 August 1994-II)
- 61) A. R. Armstrong and W.I.F. David, Physical Review B, (1 December 1995-I)
- 62) G. Kordas, G.A. Moore, J.D. Jorgensen, R.L. Hitterman, K.J. Volin and J. Faber, J. Mater. Chem., 1 (2), 175, (1991)
- 63) M. Calligaris, Experimental Workshop on High Temperature Superconductors and Related Materials, 12-30 March (1990), ICTP, Trieste, Italy
- 64) Z. Gabelica, E.G. Derouane, J.P. Vigneron, Ph. Lombin, M. Renier, A.A. Lucas, G. Deconninck, F. Bodart and G. Demortier, Solid State Communications, Vol. 64, No. 9, pp. 1221-1224, (1987)
- 65) R.B. Tripathi, R.K. Kotnala, S.M. Khullar, B.S. Khurana, Satbir Singh, K. Jain, B.V. Reddi, R.C. Goel, K.C. Nagpal, S. Singal and B.K. Das., Solid State Communications, Vol. 68, No.3, pp., 319-322, (1988)
- 66) W.H. Tang, J. Gao, Physica C, 298, (1998), 66-72
- 67) G. Ruani, C. Taliani and R. Zamboni, D. Cittone and F.C. Maticotta, Istituto ITM, CNR, I-20092 Cinisello Balsamo, Italy
- 68) F.C. Maticotta, C.U. Segre, C. Infante, J. Ramos Arhuis, B. Ma and P. Ganguly., International Centre For Theoretical Physics, (1990), 90-50

AC. YÜKSEKÖĞRETİM KURULU  
DOKÜMANTASYON MERKEZİ

