

KIRIKKALE ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

FİZİK ANABİLİM DALI
YÜKSEK LİSANS TEZİ

SEZYUM KATKILI YİTRİYUM 1 BARYUM 2 BAKIR 3 OKSİJEN 7
SÜPERİLETKENLERİNİN BAZI FİZİKSEL VE YAPISAL
ÖZELLİKLERİNİN İNCELENMESİ

ÖZNUR BAĞ

TEMMUZ 2006

ÖZET

SEZYUM KATKILI YİTRİYUM 1 BARYUM 2 BAKIR 3 OKSİJEN 7
SÜPERİLETKENLERİNİN BAZI FİZİKSEL VE YAPISAL
ÖZELLİKLERİNİN İNCELENMESİ

BAĞ, Öznur

Kırıkkale Üniversitesi

Fen Bilimleri Enstitüsü

Fizik Anabilim Dalı, Yüksek Lisans Tezi

Danışman: Doç. Dr. Saffet NEZİR

Temmuz 2006, 45 sayfa

Bu çalışmada, $YBa_{2-x}Cs_xCu_3O_{7-\delta}$ ($x=0,05; 0,1; 0,2; 0,3$) numuneleri nitrathlı bileşikler kullanılarak hazırlandı. Hazırlanan bu bileşiklerin bazı elektriksel, manyetik ve yapısal özellikleri; taramalı elektron mikroskobu, x-ışını toz kırınımı, elektriksel özdirenç, kritik akım yoğunluğu ve AC manyetik alınganlık ölçümleri ile incelendi.

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

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

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

Aynı numuneler üzerinde yapılan kritik akım yoğunluğu ölçümlerinde, katkı miktarının artmasıyla J_c değerlerinin önemli miktarda arttığı gözlemlendi.

AC manyetik alınganlık ölçümleri, $YBa_{2-x}Cs_xCu_3O_{7-\delta}$ numunelerinde katkı miktarının artmasıyla süperiletken duruma daha keskin bir geçişin olduğunu gösterdi.

Anahtar Kelimeler: Süperiletken, YBCO, Cs, Kritik Geçiş Sıcaklığı, XRD, Kritik Akım Yoğunluğu, Elektriksel Özdirenç, SEM, AC Manyetik Alınganlık.

ABSTRACT

INVESTIGATION OF PHYSICAL AND STRUCTURAL PROPERTIES OF CESIUM DOPED YTTRIUM 1 BARIUM 2 COPPER 3 OXYGEN 7 SUPERCONDUCTORS

BAĞ, Öznur

Kırıkkale University

Graduate School Of Natural and Applied Sciences

Department of Physics, M. Sc. Thesis

Supervisor: Assoc. Prof. Dr. Saffet NEZİR

July 2006, 45 pages

In this study, $\text{YBa}_{2-x}\text{Cs}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ($x = 0,05; 0,1; 0,2; 0,3$) samples were prepared by using nitrate compounds. Some electrical, magnetic and structural properties of these compounds were examined by using scanning microscope (SEM), x-ray powder diffraction (XRD), electrical resistance, critical current density and AC susceptibility measurements.

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

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

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

Critical current density measurements on the same samples showed that as the amount of doping element increases values of J_c decreases.

AC susceptibility measurements revealed that by increasing of $YBa_{2-x}Cs_xCu_3O_{7-\delta}$ quantity in composite sample, superconductivity state occurs.

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

Sevgili Aileme...

TEŐEKKÜR

Yüksek-Lisans Tezimin hazırlanması esnasında, karşılaştığım her türlü problemin çözümünde değerli bilgi, öneri ve eleştirileriyle çalışmalarına yön veren, her konuda destek olan, büyük ilgi ve yardımlarını gördüğüm tez danışmanı hocam Sayın Doç. Dr. Saffet NEZİR' e sonsuz teşekkürlerimi sunarım.

Tez çalışmalarımın deney aşamasında bana üniversitelerinin imkanlarını sunan Ankara Üniversitesi öğretim üyesi Sayın Prof. Dr. Ali GENCER'e, Sayın Arş. Gör. Ahmet KILIÇ'a ve Abant İzzet Baysal Üniversitesi öğretim üyesi Sayın Yrd. Doç. Dr. Cabir TERZİOĞLU'na, Sayın Arş. Gör. Özgür ÖZTÜRK'e teşekkürü bir borç bilirim. Tez çalışmam süresince yardımlarını esirgemeyen Sayın Arş. Gör. Dr. Mustafa YILMAZLAR'a teşekkür ederim. Yardımlarını esirgemeyen Orta Doğu Teknik Üniversitesi Yüksek-Lisans öğrencisi Nadir GHAZANFARİ'ye teşekkür ederim.

Her türlü destekle her zaman yanımda olan başta annem ve babam olmak üzere sevgili aileme sonsuz teşekkür ederim.

İÇİNDEKİLER

ÖZET	i
ABSTRACT	iii
TEŞEKKÜR.....	vi
İÇİNDEKİLER	vii
ÇİZELGELER DİZİNİ.....	ix
ŞEKİLLER DİZİNİ	x
1. GİRİŞ	1
1.1. Sıfır Direnç	1
1.2. Yüksek Sıcaklık Süperiletkenleri	7
1.3. I. ve II. Tip Süperiletkenler	9
1.4. AC Manyetik Alınganlık	10
1.5. YBa ₂ Cu ₃ O ₇ Süperiletkeninin Yapısal Özellikleri	13
1.6. Çalışmanın Amacı.....	18
2. MATERYAL VE YÖNTEM	19
2.1. Giriş	19
2.2. Deneysel Çalışmalar.....	20
2.2.1. YBa _{2-x} Cs _x Cu ₃ O _{7-δ} (x=0,05; 0,1; 0,2; 0,3) Bileşiğinin Hazırlanması...20	
2.2.2. SEM Ölçümleri.....	22
2.2.3. X-Işını Toz Kırınımı Ölçümleri.....	23
2.2.4. Elektriksel Özdirenç Ölçümleri.....	24
2.2.5. Kritik Akım Yoğunluğu Ölçümleri.....	26
2.2.6. Magnetik Alınganlık Ölçümleri	26

3. ARAŞTIRMA BULGULARI VE TARTIŞMA.....	28
3.1. Giriş.....	28
3.2. SEM Analizleri.....	28
3.3. X-Işını Kırınım Desenleri Analizi.....	31
3.4 Elektriksel Özdirenç Ölçümleri.....	34
3.5. Kritik Akım Yoğunluğu Ölçümleri.....	38
3.6. Manyetik alınganlık Ölçümleri.....	40
4. SONUÇ.....	41
KAYNAKLAR.....	44

ÇİZELGELER DİZİNİ

ÇİZELGE

2.1. $\text{YBa}_{2-x}\text{Cs}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ bileşimini hazırlamak için kullanılan bileşiklerin saflık dereceleri ve molekül ağırlıkları.....	20
-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------	----

ŞEKİLLER DİZİNİ

ŞEKİL

1.1. Süperiletken için direnç-sıcaklık grafiği.....	4
1.2. Süperiletken tarafından dış manyetik alanın dışarılanması.....	5
1.3. İki elektron arasında örgü bozulmasından ortaya çıkan çekici etkileşmenin şematik gösterimi.....	6
1.4. (a) I. tip süperiletkenlerin manyetik davranışı, (b) II. Tip süperiletkenlerin manyetik davranışı.....	9
1.5. Ortorombik yapıdaki $YBa_2Cu_3O_7$ 'nin birim hücresi.....	16
1.6. $YBa_2Cu_3O_x$ bileşiğinde, oksijen miktarı x 'in fonksiyonu olarak süperiletkenlik kritik sıcaklığının değişimi.....	17
2.1. Tabletlerin tavlama için uygulanan sıcaklık işlemi.....	21
2.2. 2416 Euroterm kontrollü Carbolite marka fırın.....	22
2.3. Jeol JSM 5600, Elektron mikroskobu	23
2.4. XRD cihazı, Rikagu difraktometre	24
2.5. Standart dört nokta yöntemi ile öz direnç ölçüm düzeneği	25
2.6. Kriyostat sisteminin fotoğrafı	25
2.7. 7130 Lake Shore AC, Manyetik Alınganlık Ölçüm Sistemi.....	27
3.1. (a) 0,05 Cs katkılı $YBa_{2-x}Cs_xCu_3O_{7-\delta}$ numunesinin SEM fotoğrafı. (b) 0,1 Cs katkılı $YBa_{2-x}Cs_xCu_3O_{7-\delta}$ numunesinin SEM fotoğrafı	29
3.2. (a) 0,2 Cs katkılı $YBa_{2-x}Cs_xCu_3O_{7-\delta}$ numunesinin SEM fotoğrafı. (b) 0,3 Cs katkılı $YBa_{2-x}Cs_xCu_3O_{7-\delta}$ numunesinin SEM fotoğrafı	30
3.3. Cs katkılı ($x= 0,05; 0,1; 0,2; 0,3$ $YBa_{2-x}Cs_xCu_3O_{7-\delta}$) numunesinin x-ışını kırınım	

desenleri.....	32
3.4. Cs katkılı ($x= 0,05; 0,1; 0,2; 0,3$) $YBa_{2-x}Cs_xCu_3O_{7-\delta}$ numunelerinin örgü parametreleri.....	33
3.5. $YBa_{2-x}Cs_xCu_3O_{7-\delta}$ ($x=0,05; 0,1$) numunelerinin özdirenç-sıcaklık eğrileri.....	35
3.6. $YBa_{2-x}Cs_xCu_3O_{7-\delta}$ ($x=0,2; 0,3$) numunelerinin özdirenç-sıcaklık eğrileri	36
3.7. Üretilen $YBa_{2-x}Cs_xCu_3O_{7-\delta}$ ($x=0,05; 0,1; 0,2; 0,3$) numunelerinin özdirençlerinin sıcaklıkla değişim grafiği	37
3.8. 0,05 Cs katkılı $YBa_{2-x}Cs_xCu_3O_{7-\delta}$ numunesinin ısıtma-soğutma değişim grafiği	38
3.9. $YBa_{2-x}Cs_xCu_3O_{7-\delta}$ ($x=0,05; 0,1; 0,2; 0,3$) numunelerinin akım yoğunluğu-gerilim eğrileri.....	39
3.10. $YBa_{2-x}Cs_xCu_3O_{7-\delta}$ ($x=0,05; 0,1; 0,2; 0,3$) numunelerinin AC manyetik alınganlıklarının sıcaklığa göre değişimi.....	40

1. GİRİŞ

Süperiletkenlik; düşük sıcaklıklara soğutulduklarında belli metallerde ve bileşiklerde gözlenen bir takım elektrik ve manyetik özelliklere verilen isimdir. Süperiletkenliğin iki önemli özelliği vardır: Maddenin içindeki elektrik akışı maddenin yapısını oluşturan iyon örgüleriyle çarpışması sonucu engellenir. Buna maddenin direnci adı verilir. Böyle bir madde süperiletken duruma geldiğinde direnci sıfıra düşer. Süperiletken durumda maddenin örgüsü, elektron akışına engel olmaz. Bunun yerine, onların hareketine destek olur. Bunun uygulamadaki anlamı, süperiletken bir devrede, ilke olarak, elektrik akımının sürekli akacağıdır.

Süperiletken malzemelerin geçmişi, 19.yüzyılda Michael Faraday'ın keşiflerine kadar uzanmaktadır. Çok düşük sıcaklıklara gereksinim duyulan bu işlemi ilk kez, 1823 yılında Michael Faraday kloru sıvılaştırarak gerçekleştirdi. Faraday, bunun için kloru 77 Kelvin'e (K) kadar soğutmuştur. Sonradan, değişik sıcaklıklarda başka gazları da sıvılaştırmayı başarmıştır. Daha sonraki yıllarda bilim adamları birçok gazı mutlak sıfır yakınlarında sıvılaştırabilmiş ve sıvılaştıran gazları kullanarak, diğer malzemelerin davranışlarını araştırmışlardır.

1.1. Sıfır Direnç

Günlük hayatımızda kullandığımız bütün iletkenler bir dirence sahiptir. Bu direnç, tel boyunca akan akımı, yani kullanılacak enerjinin bir kısmını ısıya dönüştürerek enerji kaybına yol açar. Fakat sıradan bir iletken yerine bir süperiletken

kullanılırsa elektrik akımı, hiçbir enerji kaybına uğramadan akabilir. Çünkü süperiletkenlerin elektriksel dirençleri yok denecek kadar azdır.

Akım bir metal boyunca akan elektronlar tarafından taşınır. Metaller genellikle, düzenli kristaller dizisine yani atomlar “örgüsüne” sahiptir. Metal bir elektrik alana maruz kaldığında bu örgü içindeki bazı elektronlar, ait oldukları atomlardan kurtularak serbest hale gelirler. Elektrik akımının taşınması için en uygun elektronlar bunlardır. Adları da bu nedenle “iletim elektronları”dır. Elektronlarını kaybeden atomlarsa iyon adı verilen artı yüklü atom haline geçerler.

Elektronlar düzenli kristal örgü boyunca serbestçe hareket edebilirler. Ancak bazen, örgünün yapısını bozan bir kusur oluştuğunda, elektronların serbest hareketi engellenir ve bu da akıma karşı bir dirence yol açar. Tellerdeki elektriksel direncin iki temel kaynağı vardır. Bunlardan birincisi, örgüdeki eksik atomların oluşturduğu boşluklar nedeniyle kristal örgüde meydana gelen kusurlardır. Elektronlar bu tür düzensizliklerle karşılaştıklarında enerji kaybederler. İkincisi ise, örgü titreşimleridir. Örgü içindeki atomlar mutlak sıfırın üzerindeki sıcaklıklarda iyonlaşır. Bu iyonlaşma bir titreşime yol açar ve ortaya çıkan titreşim kristal örgü boyunca yayılır. Dalga-parçacık gibi davranan ve bir katının titreşimini tarif eden niceliklerin en küçük birimine “fonon” adı verilir.

Oda sıcaklığında, normal bir iletkende hızla hareket eden çok sayıda fonon vardır. Bu tür iletkenlerdeki direncin nedenlerinden birisi, elektronların metal boyunca hareket ederken bu fononlarla karşılaşması, yani elektronlarla fononların çarpışmasıdır.

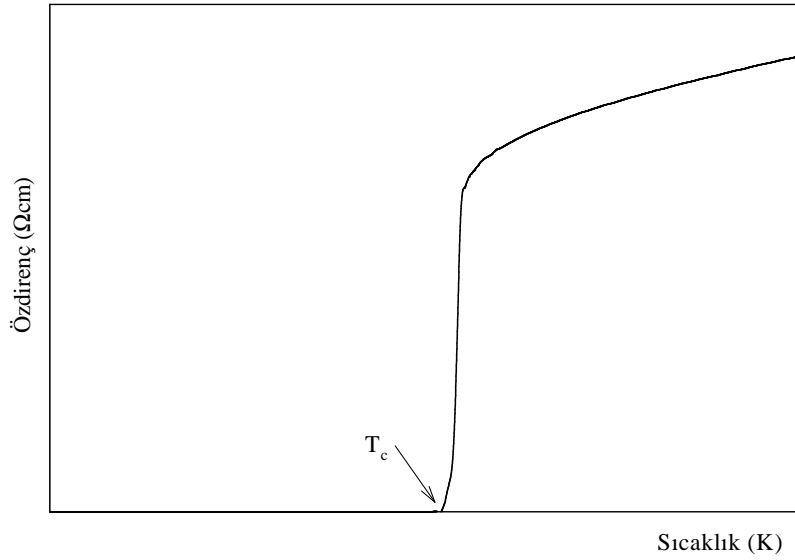
Bir süperiletkende, kristal örgüde kusurlar bulunmakla birlikte, elektronların bu engeller boyunca hareketi tamamen farklıdır. Elektronlar enerji kaybı olmaksızın elektriği iletebilirler.

Direncin neden olduğu bu enerji kaybı nasıl yok edilir? Metal bir tel soğutulduğunda ya da sıcaklığı oda sıcaklığının altına soğutulduğunda, direncinin azaldığı eskiden beri bilinmektedir. Böylece örgü titreşimleri azalır ve elektron akışı kolaylaşır. Direnci azaltmanın diğer bir yöntemi ise, metali saflaştırmaktır. Sıcaklığın mutlak sifıra yaklaşması gibi, metalde saflaştıkça direncini kaybeder. Dolayısıyla, saf bir metalin 0 K'deki direncinin sıfır olmasını beklemek yanlış olmaz.

20. yüzyılın başında mutlak sıcaklığa ulaşmak için girişilen çabaların en başarılı sonucu, 1908 yılında Danimarkalı fizikçi Kamerling Onnes'in helyumu sıvılaştırmasıdır. Onnes, ilk olarak bu sıcaklıkta metallerin elektriksel dirençlerinin ne olacağını araştırdı. Yaptığı deneylerde, bu metallerin mutlak sifıra yakın sıcaklıklara soğutulduklarında elektriksel dirençlerinin kararlı bir şekilde azaldığını gördü. Onnes, çok saf ince bir civa teli üzerinde ölçümler yaptı. 4,2 K'nin hemen üzerindeki bir sıcaklıkta telin direncinin birden neredeyse sifıra (yaklaşık 0,11 Ω) düştüğünü buldu. 1911 yılında yayımladığı sonuçlara göre, cıva 4,15 K'nin altındaki sıcaklıklarda süperiletken hale geçiyordu. Aynı deney, kalayın direncinin de 3,72 K'de yaklaşık olarak sifıra düştüğünü gösterdi. Bazı malzemeler, belli sıcaklık değerlerinin altında açıkça başka bir duruma geçiyorlardı. Onnes bu yeni keşfettiği duruma "süperiletkenlik" adını verdi⁽¹⁾.

Böylece, cıva ve benzeri bazı metallerin dirençlerinin, "kritik sıcaklık" (T_c) adı verilen belirli bir sıcaklıkta yaklaşık olarak sifıra düştüğü anlaşıldı. Bunun anlamı şudur: eğer süperiletken bir tel ilmekten bir akım geçerse bu akım sonsuza dek akar.

1913 yılında Onnes'e Nobel Fizik ödülünü getiren, malzemelerin bu ilginç davranışlarını keşfi, bilim adamlarını hemen harekete geçirdi⁽²⁾. Aslında süperiletkenlik için, daha doğrusu mutlak sıfıra yakın sıcaklıklardaki malzemelerin davranışlarına ilişkin, kuram geliştirme çabaları keşfinden önceye dayanmaktadır. Bu konuyla ilgili ilk kuram, James Dewar'ınkidir. Dewar, sıcaklığın mutlak sıfıra yaklaştığı durumlarda iletkenliğin de sıfıra yaklaşacağını söylüyordu. Ancak Dewar'a göre sıfır direnç mümkün değildi. Çünkü mutlak sıfıra ne kadar yaklaşırsa yaklaşılsın, asla ulaşamayacağını düşünüyordu.

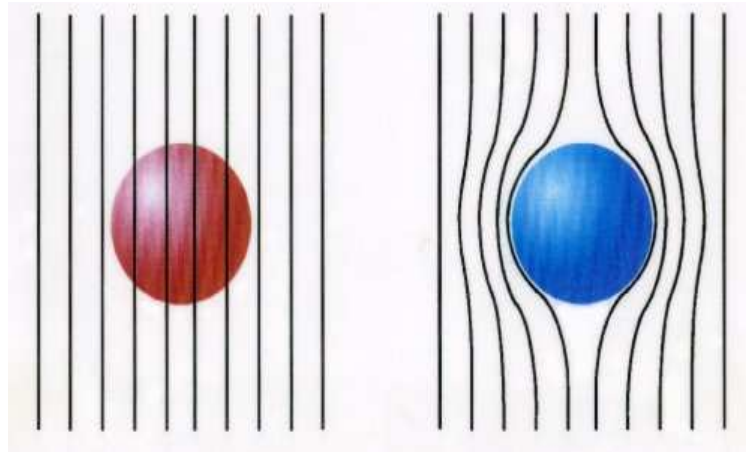


Şekil 1.1. Süperiletken için direnç-sıcaklık grafiği

Bir başka kuramın yaratıcısı Kelvin'e göre de, sıcaklık azaldıkça direnç artmalıydı. Kelvin'e göre, malzeme soğudukça elektronlar duracak ve hareket edemeyecek, böylece de akım iletimi mümkün olmayacaktı. 1900 yılına gelindiğinde Paul Drude ve Henrik Lorentz, sıcaklık ve direnç ilişkisine bir başka kuram önerdiler. Kurama göre, direncin iki temel kaynağı vardı; birisi sıcaklık diğeri de kristal yapıdaki kusurlar. Sıcaklık ne kadar yüksekse kristaldeki atomlar o kadar çok

titreşecek ve elektronların hareketi engellenerek daha fazla direnç oluşacaktır. Drude ve Lorentz, direncin azalmasının nedenini sıcaklığın çok düşük olduğu değerlere bağlıyorlardı. Sıcaklık azaldığında, sıcaklığın ve benzer şekilde kristaldeki kusurların neden olduğu direnç de azalacaktır. Bu sıcaklık-direnç üzerine sürdürülen tartışmalar, Onnes'in keşfiyle son buldu.

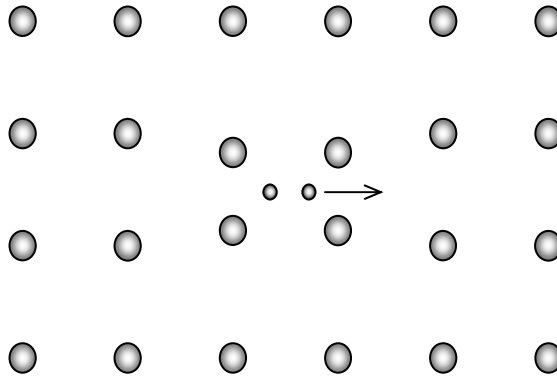
1933 yılında Walter Meissner ve R. Ochensfeld, süperiletkenlerin ilginç manyetik özelliklerinin olduklarını keşfettiler. Süperiletkenler, zayıf bir dış manyetik alanın içine konulduklarında, T_c kritik sıcaklığının üstündeki sıcaklıklarda, alan çizgileri numunenin içinden geçer. Sıcaklık T_c 'nin altına kadar soğutulduğunda ise süperiletken hale geçiş meydana gelir ve manyetik alanın içinden geçmesine izin vermeyip, dışlarlar. Çünkü dışardan uygulanan manyetik alan süperiletken yüzeyinde bir akıma, bu akım da dış manyetik alana karşı koyacak bir manyetik alana neden olur. Bu olay "Meissner Olayı" olarak adlandırılır.



Şekil 1.2. Süperiletken tarafından dış manyetik alanın dışarılanması.

Süperiletkenliği oluşturan mekanizmaları açıklayan en önemli teori Bardeen-Cooper-Schrieffer (BCS) teorisi olmak üzere, pek çok teori üretilmiştir⁽³⁾. Coulomb yasası gereği, elektronlar sahip oldukları negatif elektrik yükleri nedeniyle, birbirlerini iterler. Cooper, elektron çiftlerinin Coulomb itmesinden daha güçlü bir kuvvet yardımıyla birbirlerini çekebileceği bir mekanizmadan söz etmektedir. Elektronların birbirlerini çekmesi fikri ilk bakışta çok ilginç görünse de, bunun nasıl olduğu sorusunun yanıtı kristal örgüdeki iyonlarla elektronlar arasındaki etkileşimde gizlidir.

Cooper'ın düşüncesi, elektronları çiftler halinde biraraya getirip, örgü içindeki dirence neden olan engelleri geçmelerine dayanmaktadır. Bu elektron çiftlerine de "Cooper çiftleri" adı verilir. Cooper ve arkadaşlarına göre, elektriksel yükleri nedeniyle birbirlerini iten elektronlar, süperiletken içerisinde büyük bir çekim hissederler. Bu çekiciliğin sebebi ise fononlardır.



Şekil 1.3. İki elektron arasında örgü bozulmasından ortaya çıkan çekici etkileşimin şematik gösterimi

Kurama göre, eksi yüklü bir elektron örgü içerisinde ilerlerken, artı yüklü iyonları kendine doğru saptırır. Örgüde oluşan bu hareketlilik bir fonon yayımına neden olur, bu da elektronun etrafında bir artı yük katmanı oluşturur. Şekil 1.3'de görüldüğü gibi, iyonları saptıran elektron, örgüyü terketmeden, yani örgü eski haline geri dönmeden, ikinci bir elektron pozitif iyon varlığı nedeniyle buraya doğru çekilir. Böylece “Cooper çifti” adı verilen bir elektron çifti meydana getirir. Bir süperiletkendeki süperakımlar milyonlarca Cooper çifti tarafından taşınır. Eğer bir Cooper çifti bir fononla çarpışırsa, süperiletken özellik de kaybolabilir, ancak bunun için fononun enerjisinin elektronların karşılıklı etkileşimlerini aşabilecek derecede yeterli enerjiye sahip olması gerekir. Mutlak sıcaklığın yakınında, Cooper çiftlerini kırmaya yetecek enerjiye sahip fonon bulunmaz. Ancak sıcaklık kritik sıcaklığa doğru yükseldikçe, fononların kristal örgü içindeki titreşimleri artar. Kritik sıcaklığa ulaşıldığında da Cooper çiftleri kırılır ve malzeme süperiletken özelliğini kaybeder.

1.2. Yüksek Sıcaklık Süperiletkenleri

1986 yılında J. George Bednorz ve Karl Alex Müller⁽⁴⁾, seramik oksit La_2CuO_4 'e Ba, Sr veya Ca gibi safsızlıklar katarak elde ettikleri $(\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x)\text{CuO}_4$ bileşiğinin yaklaşık 30 K'de süperiletken olduğunu keşfettiler. O zamana kadar bilinen en yüksek sıcaklık Nb_3Ge alaşımı için 23,2 K idi. Bu keşif, süperiletkenlerin bir çok alanda kullanılabilmesi için ümidini doğurdu. Bundan hemen sonra, Wu ve arkadaşları kritik sıcaklığı $T_c=92$ K olan $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ keşfettiler⁽⁵⁾. $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ bileşiğinin keşfinden sonra, bir kısmı benzer bir kısmı daha yüksek sıcaklıklarda süperiletken olan, çok sayıda benzer bileşik sentezlenmiştir. Yüksek T_c değerinden

dolayı, bu maddelere “Yüksek Sıcaklık Süperiletkenleri” denir. Yüksek sıcaklık süperiletkenleri çok pahalı olan helyum (kaynama noktası 4,2 K) yerine daha ucuz olan azot (kaynama noktası 77 K) ile soğutulabilir ve bu yüzden de pratikte uygulanabilirlikleri yönünden önemlidir. 1987 yılında H. Maeda ve grubu Bi-Sr-Ca-Cu-O (BSCCO) bileşiğinin süperiletkenliğe geçiş sıcaklığının 110 K olduğunu buldular⁽⁶⁾. Daha sonra Arkansas Üniversitesinde çalışmalarını sürdüren Sheng ve Hermann⁽⁷⁾ Tl-Ba-Ca-Cu-O bileşiğinde süperiletkenlik geçiş sıcaklığının 120 K üzerinde olduğunu buldular. 1993 yılında, Hans Ott ve grubu, kritik geçiş sıcaklığı 133 K olan Hg-Ba-Ca-Cu-O sistemini keşfettiler⁽⁸⁾. İlerleyen zamanlarda ise Chu ve grubu 150 kbar basınç altında Hg-Ba-Ca-Cu-O sisteminin kritik sıcaklığını 153 K olarak buldular⁽⁹⁾.

Yüksek sıcaklık süperiletkenlerin keşfi bilim adamlarını çok heyecanlandırmıştır ve araştırmacıların birçoğu bu konuya yönelmiştir. 1911-1970 yılları arasında 6579 tane süperiletkenlikle ilgili makale var iken bunların 36 tanesi de 1941-1945 yılları arasına aittir. 1989-1991 yılları arasında yani yüksek sıcaklık süperiletkenlerin keşfinden sonra bu sayı 15000 olup ortalama günde 15 makale yayınlanıyor demektir⁽¹⁰⁾.

Süperiletkenliğin bu tarihsel gelişimini Ginzburg⁽¹¹⁾ 3 kısma ayırmıştır.

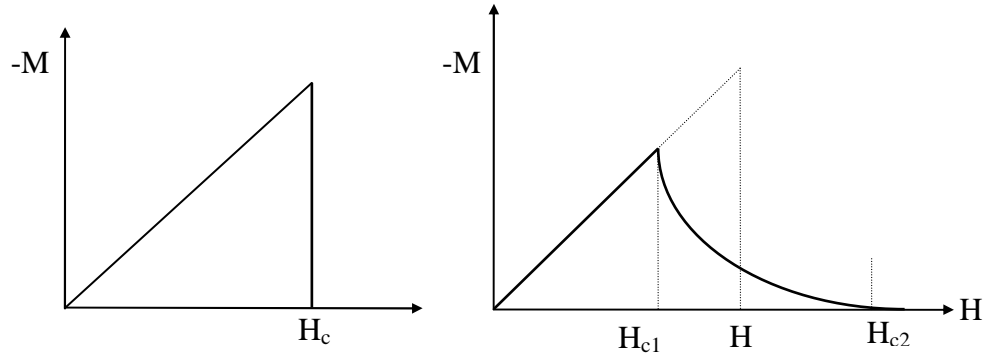
1. 1911-1941 arası düşük sıcaklık süperiletkenliğin keşfi ve ilgili çalışmalar
2. 1942-1986 süperiletkenlerin teorisi üzerine yapılan çalışmalar
3. 1987- günümüze kadar olan dönem yüksek sıcaklık süperiletkenliğin keşfi ve ilgili yapılan çalışmalar.

1.3. I. ve II. Tip Süperiletkenler

Süperiletkenlik hali, ancak dış manyetik alan bir H_c kritik değerinden daha küçük olduğu zaman devam edebilir. Bu H_c miktarı, $T=0$ K'de maksimum bir H_0 değerinden, kritik sıcaklıktaki sıfır alanına kadar değişir. Bir çok süperiletken için sıcaklık bağımlılığı yaklaşık olarak Tuyn kuralı olarak bilinen

$$H_c = H_0 (1 - (T/T_c)^2)$$

şeklindedir⁽¹²⁾.



Şekil 1.4. (a) I. tip süperiletkenlerin manyetik davranışı, (b) II. Tip süperiletkenlerin manyetik davranışı.

Süperiletkenlere kritik sıcaklığın altında manyetik alan uygulandığında, süperiletkenlerde yüzey akımları oluşur. Oluşan bu yüzey akımları manyetik alanın metal içine girmesine engel olur. Bu olay kritik manyetik alan şiddeti olan H_c 'ye kadar devam eder. Alan H_c 'den büyük olduğunda, yüzey akım yoğunluğu kritik değerini aşar ve manyetik alan metal içine girer. Metal içindeki net manyetik alan,

kritik manyetik alan şiddetine kadar sıfırdır. Bu davranış I. tip süperiletkenler için geçerlidir (Şekil 1.4.a). Dolayısıyla bu tip süperiletkenler için magnetizasyon (M) uygulanan alanla doğru orantılı fakat ters işaretlidir. Malzemenin manyetik duyunluğu ise $\chi = -M / H$ şeklindedir. II. tip süperiletkenlerde ise, bu davranış daha farklıdır. II .tip süperiletkenler H_{c1} ve H_{c2} kritik manyetik alan değerlerine sahiptir. Manyetik alan şiddeti H_{c1} olduğunda manyetik alan metal içerisine girer fakat süperiletkenlik durumu bozulmaz. Karışık durum denen bu koşulda metal, süperiletken ve normal bölgelerden oluşur. Bu durum H_{c2} manyetik alan değerine kadar devam eder. Manyetik alan şiddeti H_{c2} 'ye ulaştığında manyetik alan tüm metal içine girer ve süperiletken davranış bozulur (Şekil 1.4.b). Yüksek sıcaklık süperiletkenler de buna benzer manyetik davranış gösterirler⁽¹⁰⁾.

1.4. AC Manyetik Alınganlık

Bir süperiletkenin üretim aşamasından hemen sonra karakterizasyon aşamasında ya direnç ölçümleri kullanılarak süperiletkenin elektriksel özellikleri tayin edilir ya da süperiletkene kontak yapmayı gerektirmeyen manyetik ölçümlerle manyetik özellikler tayin edilir. Manyetik özelliklerin belirlenmesinde kullanılan pek çok yöntemin başında kuşkusuz ac alınganlık gelir⁽¹³⁾. AC manyetik alınganlık ölçümleri yoluyla yüksek sıcaklık süperiletkenlerin birçok özellikleri incelenebilir. AC alınganlık numune içerisine manyetik akı girişiyle oluşan mıknatıslanmanın uygulanan alanın tepe ve sıfır noktasındaki değerleri ile ilişkilidir.

Manyetik alınganlık, ω frekanslı bir akımın bir bobine uygulanması ile bobinde oluşturulan $H_{AC} = H_0 \cos(\omega t)$ şeklindeki manyetik alanın, bobin içerisindeki bir numunede oluşturduğu mıknatıslanmadan, aşağıdaki şekilde ifade edilebilir⁽¹⁴⁾;

$$M_{AC} = M_0 \cos(\omega t - \phi) = M_0 \cos(\omega t) \cos \phi + M_0 \sin(\omega t) \sin \phi$$

$$= \chi' H_0 \cos(\omega t) + \chi'' H_0 \sin(\omega t)$$

Buradaki ϕ faz açısı, uygulanan AC manyetik alan ile mıknatıslanmanın aynı fazda olmamasından dolayı yazılmıştır. Burada

$$\chi' = (M_0/H_0) \cos \phi \quad \text{ve} \quad \chi'' = (M_0/H_0) \sin \phi$$

olduğu görülür. Kompleks gösterim kullanılarak manyetik alan $H_{AC} = H_0 e^{i\omega t}$ şeklinde alınacak olursa, mıknatıslanma için $M_{AC} = \chi H_0 e^{i\omega t}$ ve manyetik alınganlık için de

$$\chi = \chi' - \chi'' = \chi_0 e^{-i\phi}$$

elde edilir.

Burada gerçel (real) χ' bileşeni, uygulanan alanla aynı fazda olan alınganlık bileşenini ve sanal (imaginary) χ'' bileşeni de, faz dışı bileşeni temsil etmektedir. χ' bileşeni, taneler ve taneler arası etkileşmelerle, χ'' bileşeni de (numune tarafından, uygulanan manyetik alandan soğurulan enerji gibi) enerji kayıpları ile ilgilidir.

Özdirenç ölçümlerinde T_c , numune normal durumdan süperiletken duruma geçerken, akımın süzülme yollarının (percolation paths) oluştuğu sıcaklıktır, manyetik alınganlık ölçümlerinde ise perdeleme akımlarının (shielding path) oluştuğu sıcaklıktır. AC alınganlığın sıcaklığa ve alan şiddetine kuvvetli bağlı olmasına rağmen frekansa bağımlılığı zayıftır⁽¹⁵⁾.

AC manyetik alınganlık ölçümü ile yüksek sıcaklık süperiletkenler hakkında aşağıdaki genel bulgular elde edilebilir⁽¹⁰⁾.

a) AC manyetik alınganlık $\chi = \chi' - i\chi''$ gibi karmaşık bir büyüklüktür. χ' alınganlığın gerçel kısmıdır ve diamanyetik geçişi temsil eder. χ'' ise diamanyetik geçiş sırasında soğurulan enerji ile orantılıdır.

b) Gerçel kısım numunenin içerdği fazlar ve mikroyapıya bağımlı diamanyetik geçişler göstermektedir.

c) Diamanyetik geçiş aralıkları manyetik alan şiddeti ile orantılıdır. Azalan manyetik alan şiddeti ile geçiş aralığının keskin aralığı artar.

d) Malzemenin süperiletkenliğe geçiş sıcaklığı manyetik alan şiddetine bağı değildir.

e) Malzemenin içerdği fazların miktarları manyetik alınganlık eğrilerinden hesaplanabilir.

f) χ'' sanal kısım manyetik alan şiddetine bağı olarak diamanyetik geçiş sırasında pozitif pik oluşturabilir.

g) χ'' pikinin maksimumuna karşılık gelen sıcaklık değeri, pikin büyüklüğü ve şekli, manyetik alan şiddetine bağıdır.

h) χ'' pikinin maksimumuna karşılık gelen sıcaklık değeri ile kritik akım yoğunluğu belirlenebilir.

1.5. $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ Süperiletkeninin Yapısal Özellikleri

Süperiletken oksitler, perovskit kristallerle ilişkili bir yapıya sahiptir. Yüksek kritik sıcaklığa (T_c) sahip oksitlerin hepsi iki veya üç metal oksitle birlikte bakır içermektedir. Bunlardan en çok dikkati çeken materyal, Y-123 bileşiği olarak da adlandırılan, $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ (YBCO) bileşiğidir. Bu bileşiğin kristal yapısı ortorombiktir ($a \approx b$ ve $c \approx 3a$); bu durum, süperiletken özelliklerde anizotropiye neden olur⁽¹⁶⁾.

$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 'nin kristal yapısı Şekil 1.5'de gösterilmiştir. İdeal bir perovskit yapının birim hücresinde üç tane anyon (negatif yüklü oksijen) bulunur. Bu da üçlü perovskit hücrede 9 tane oksijen konumunun varlığını belirtir. $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ bileşiği ise ideal perovskit yapıya göre oksijen eksikliğine sahiptir. Bu durum Y atomlarının 12 yerine 8 tane oksijen atomu tarafından çevrelenmesinin sonucudur. İdeal bir perovskit yapıda oksijen atomları sayısı 12'dir. Ayrıca nötron kırınımı çalışmalarında, Ba atomları arasındaki taban düzleminde, birim hücre kenarındaki oksijen atomlarından birisinin olmadığı gözlenmiştir.

YBCO süperiletkenleri, kristal yapılarındaki bakır ve oksijenin hem Cu-O zincirlerini ve hem de kare piramitsel CuO_2 düzlemlerini (a-b düzlemi) oluşturmalarından dolayı diğer süperiletken oksit bileşiklerden farklılık gösterirler (Şekil 1.6)^(17,18). Bu bileşiğin önemli bir özelliği, bakırın kristalografik olarak bağımsız iki durumunun (CuO_2 düzlemindeki Cu(2) ve Cu-O zincirindeki Cu(1)) varlığıdır. YBCO bileşiğinin tüm elemanları birim hücrede iki CuO_2 düzlemine sahiptirler. Ayrıca, YBCO bileşiğini diğer süperiletkenlerden ayıran özelliklerden biri de tek veya çift Cu-O zincirlerine sahip olmasıdır. $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$

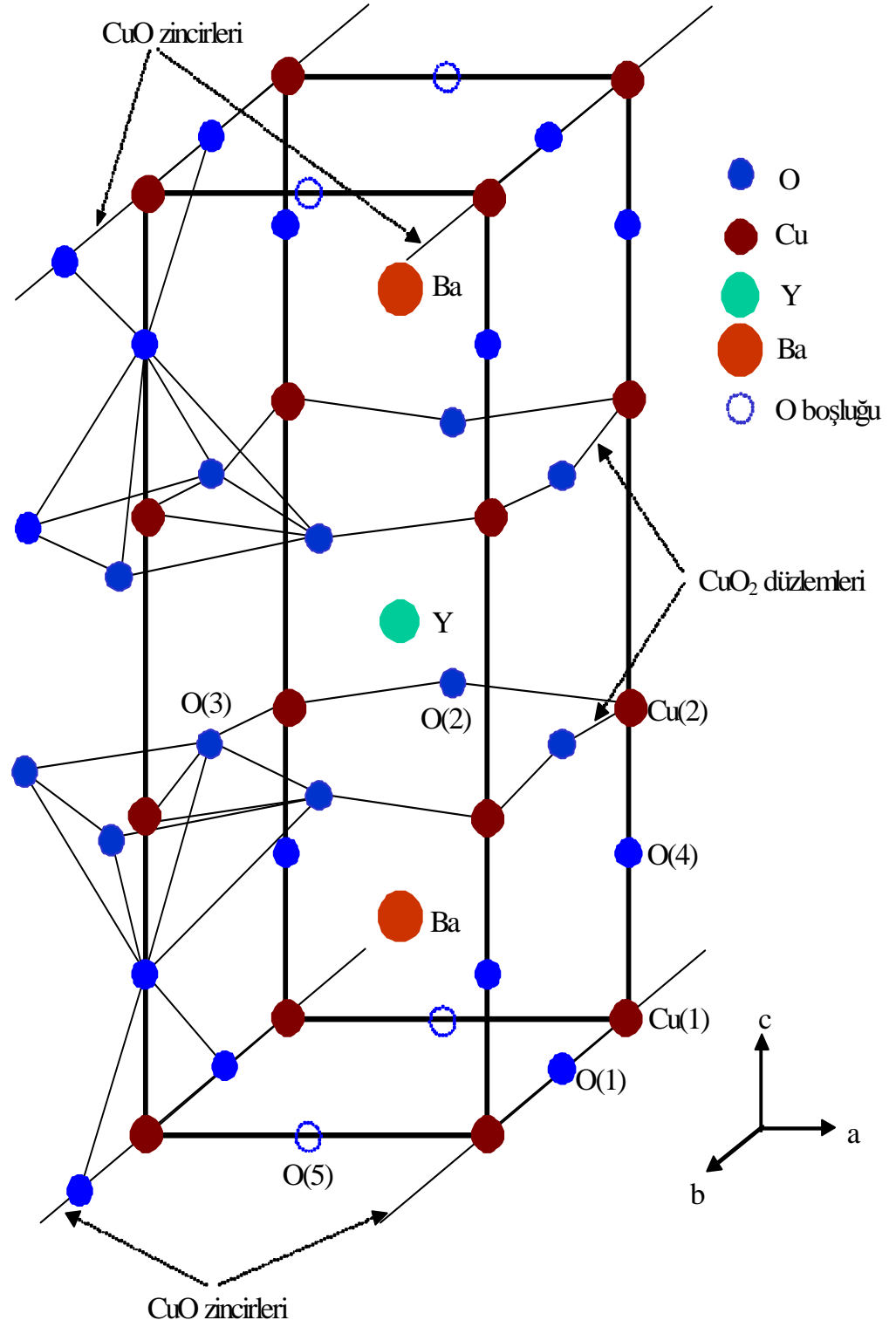
bileşiminde birim hücrede bir zincir, $YBa_2Cu_4O_8$ bileşiminde iki zincir ve $Y_2Ba_4Cu_7O_{15}$ bileşiminde de c eksenini boyunca ardışık bir ve iki zincir bulunur^(19,20).

Oksijen kaybına duyarlı olan Cu-O zincirleri $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ süperiletken bileşiminde ortorombik-tetragonal faz geçişine neden olur. Ortorombik-tetragonal faz geçişi, sıcaklığa ve oksijenin kısmi basıncına bağlı olan, stokiometrik olmayan oksijen parametresi x tarafından zorlanan, bir düzen-düzensizlik faz geçişidir⁽²¹⁾. Bir boyutlu Cu-O zincirlerindeki O(1) mevkilerine, oksijen atomlarının yerleşmesiyle ($x=0$) tamamen oksijenlenmiş (ortorombik) durum oluşur. x arttıkça, yani oksijen malzemeden ayrılırken normal olarak O(1) yerlerinden boş olan O(5) mevkilerine oksijen geçerek düzensizlik oluşturur. Ortorombik-tetragonal faz geçişi, oksijenin difüzyon kinetiği tarafından kontrol edilen bir işlemdir⁽²¹⁾.

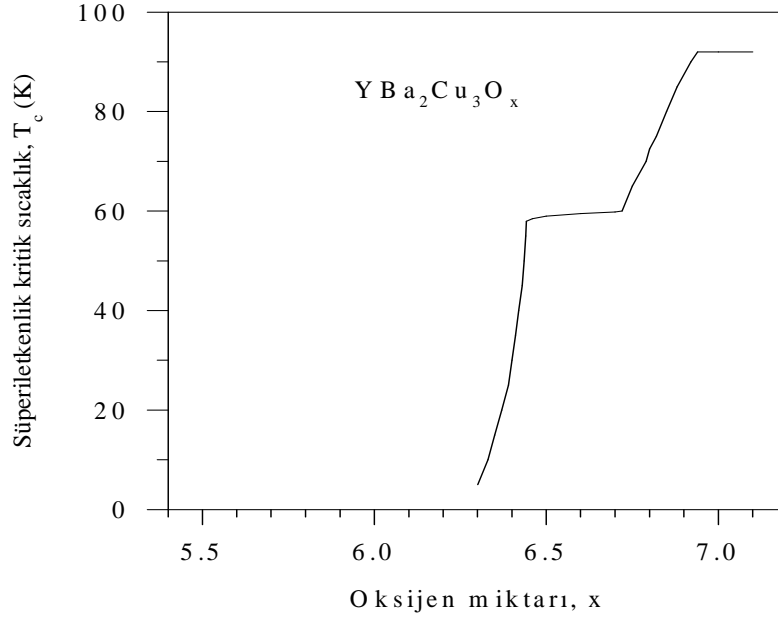
Oksijen boşluklarının düzenlenmesinin sonucu oluşan zincirler, yalnızca ortorombik fazda görülür. Oksijen konsantrasyonunun değişmesi, maddeyi ısıtma işlemine tabi tutma esnasındaki ısıtma ve soğutma şartlarına bağlıdır. Tek-zincirli $YBa_2Cu_3O_{7-x}$, oksijen eksikliğine bağlı olarak ($0 < x < 0,6$) 94 K'den 0 K'e kadar değişen süperiletken geçiş sıcaklığına sahiptir. YBCO'nun normal ve süperiletken durumlarının her ikisinin de özellikleri, oksijen konsantrasyonu ve ortorombik fazdaki oksijen düzeninin derecesine kuvvetli bir şekilde bağlıdır.

Çift zincirli $YBa_2Cu_4O_8$ süperiletkeninin kritik sıcaklığı (80 K civarında) oksijen kaybına hassas değildir. $YBa_4Cu_7O_{15}$ bileşimi de yüksek geçiş sıcaklığına sahiptir (92- 94 K) ve $YBa_2Cu_3O_7$ gibi süperiletkenlerin zincir kısımlarındaki oksijen kaybından kaynaklanan oksijen değişimine çok hassastır⁽²⁴⁾. Oksijenin miktarına bağlı olarak YBCO'nun yapısı hem ortorombik hem de tetragonal olabilir.

Kritik sıcaklık, örgüdeki oksijen miktarına oldukça bağlıdır (Şekil 1.6) ve nötron kırınımı çalışmalarından, oksijen boşluklarının düzenlenmesiyle kritik sıcaklığın maksimum olduğu bilinmektedir. $x \sim 6,5$ iken kritik sıcaklığı 60 K ve $x \sim 7$ iken kritik sıcaklığı 90 K olan iki farklı süperiletken bileşik vardır. Bu düşüncelere göre, YBCO malzemelerinde süperiletkenlikten sorumlu olanın kusurlu (oksijen-eksik) bakır-oksijen tabakalarının olduğu söylenebilir⁽¹⁶⁾.



Şekil 1.5. Ortorombik yapıdaki $YBa_2Cu_3O_7$ 'nin birim hücresi⁽²³⁾.



Şekil 1.6. $YBa_2Cu_3O_x$ bileşiğinde, oksijen miktarı x 'in fonksiyonu olarak süperiletkenlik kritik sıcaklığının değişimi⁽¹⁶⁾.

YBCO⁽⁵⁾ süperiletkenleri, sıvı azot sıcaklığında süperiletken oldukları için pratik uygulamalarda oldukça ilgi çekicidir. Bununla birlikte, çoğu kez büyük manyetik alanların varlığında, birçok uygulama için 10^4 - 10^6 A.cm⁻² mertebesinde büyük kritik akım yoğunluğuna (J_c) ihtiyaç vardır. Kritik akım yoğunluğu süperiletkenin temel bir özelliği değildir; fakat onun mikroyapısına kuvvetli bir şekilde bağlıdır. Bu nedenle mikroyapı kontrolü, pratik uygulamalarda çok önemlidir. Her ne kadar yapısal kontrol, oksit süperiletkenlerde çok zor olsa da son zamanlardaki gelişmeler, bu malzemelerde yüksek kritik akım yoğunluğu değerlerinin elde edilebileceğini göstermektedir^(25,26).

1.6. Çalışmanın Amacı

Bu çalışma ile $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ süperiletken bileşiğine, $\text{YBa}_{2-x}\text{Cs}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ stokiyometresine uyacak şekilde farklı oranlarda Cs katkısı yaparak bu süperiletken bileşiklerin fiziksel, elektriksel ve manyetik özellikleri üzerine, katkı miktarının etkisini araştırmak amaçlanmıştır.

2. MATERYAL VE YÖNTEM

2.1. Giriş

Yüksek kritik sıcaklığa sahip süperiletken numuneler hazırlamak için çeşitli yöntemler kullanılmaktadır.

Kullanılan en yaygın yöntemlerden birisi, klasik katıhal tepkime yöntemidir. Bu yöntem, tozları karıştırma ve bu karışımları yüksek sıcaklıklarda tavlamaı içerir. Katıhal yöntemiyle numune hazırlanırken, üretimde kullanılan tozlar karıştırıldıktan sonra homojen bir karışım elde etmek için saatlerce öğütölmektedir. Bu işlemin ardından ara öğütmeli bir sinterleme (erime noktasının hemen altında ısıtma) işlemi gelmektedir.

Diğer yöntemlerden birisi de eritme-aniden soğutma yöntemidir. Bu yöntemde, numune yüksek sıcaklıkta eritildikten sonra aniden soğutulur ve öğütölür. Daha sonra malzeme, yüksek sıcaklıkta uzun süreli tavlama işlemine tabi tutulur. Böylece malzeme süperiletken özellik kazanmış olur.

Kullanılan bir başka yöntem ise ince film yöntemidir. Bu yöntem vakum ortamında başlangıç malzemesinin buharlaştırılmasına dayanmaktadır. Malzeme buharlaştığıında, üzerine çöktüğü altlıkla birlikte birkaç saatlik bir tavlama işleminden sonra süperiletken hale geçmektedir.

Bu çalışmada ise, $YBa_{2-x}Cs_xCu_3O_{7-\delta}$ stokiyometrisine uygun şekilde farklı miktarlarda Cs ($x=0,05; 0,1; 0,2; 0,3$) katkısı yapılıp nitratlı bileşikler kullanılarak süperiletken bileşikler üretildi. Bu katkı miktarlarının, üretilen süperiletken bileşiklerin elektriksel ve fiziksel özelliklerine etkisini araştırıldı.

2.2 Deneysel Çalışmalar

2.2.1. $YBa_{2-x}Cs_xCu_3O_{7-\delta}$ ($x=0,05; 0,1; 0,2; 0,3$) Bileşiğinin Hazırlanması

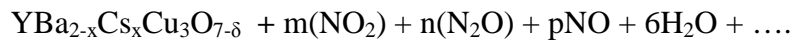
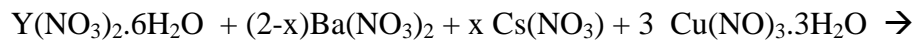
$YBa_{2-x}Cs_xCu_3O_{7-\delta}$ bileşiğini hazırlamak için kullanılan bileşiklerin saflık dereceleri ve molekül ağırlıkları aşağıdaki çizelgede verilmiştir.

Çizelge 2.1. $YBa_{2-x}Cs_xCu_3O_{7-\delta}$ bileşiğini hazırlamak için kullanılan bileşiklerin saflık dereceleri ve molekül ağırlıkları

Bileşik	Saflık (%)	Molekül Ağırlığı
$Y(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$	99,9	383,01
$Ba(NO_3)_2$	99,999	261,35
$Cu(NO)_3 \cdot 3H_2O$	99,9	241,6
$Cs(NO_3)$	99,9	194,9

Numunelerin hazırlanmasında ve ardından yapılan ölçümler sırasında hassas dijital terazi, 450°C'lik ısıtıcı, beher, havan (agat) ve tokmağı, presleme aygıtı (Perkin Elmer), yüksek sıcaklık fırını (Carbolite), numune kesme aygıtı (Metal Research), gümüş pasta, Cu teller, (alimüna) seramik pota ve Oksijen gazı gibi araç ve gereçlerden faydalanıldı.

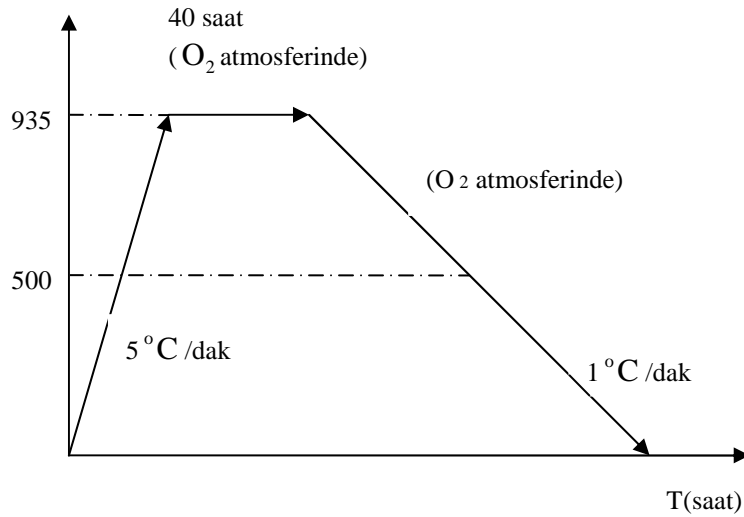
$YBa_{2-x}Cs_xCu_3O_{7-\delta}$ bileşiği, yukarıdaki kimyasallar kullanılarak,



bağıntısına göre hazırlandı.

Başlangıç kompozisyonu olarak yukarıdaki bağıntı gereği, başlangıç karışımı belirlendi ve her bir katkı için 10 gr'lık numuneler hazırlandı. Hassas terazi yardımı ile başlangıç tozları uygun miktarlarda tartıldı ve bir beher içerisine konuldu. Bir

ısıtıcı yardımı ile yaklaşık 50C° aralıklarla ısıtılmaya başlandı. Isıtma işlemi boyunca, homojenliği artırmak için tozlar bir baget yardımı ile sürekli karıştırıldı. Böylece gaz çıkışı düzenli ve daha kolay gerçekleşti. Çıkan gaz kokusundan metal oksitler ile amonyum nitrat arasında bir reaksiyon meydana geldiği anlaşıldı. Sıcaklığın artmasıyla karışım mavi-yeşil rengi alarak eriyik hale geldi. Daha sonra tamamen yeşil renge dönüştü. Sıcaklık daha da arttıkça karışım koyu gri renkli katı halini aldı. Isıtma işlemi süresince sıcaklık 450°C 'ye kadar çıkartıldı ve sonuçta tamamen siyah renkli çökelti oluştuğu gözlemlendi. Azotlu bileşiklerin malzeme içerisinde kalma olasılığına karşı, malzeme yaklaşık 650°C 'ye kadar ısıtıldı. Malzeme bu sıcaklıkta 4 saat kadar bekletildikten sonra fırın oda sıcaklığına soğutulurken, malzeme fırından çıkartıldı. Havanda yaklaşık 2 saat kadar iyice öğütülerek oldukça ince bir toz haline getirildi. Bu malzeme, 4,5 ton/cm² basınç altında preslenerek tabletler haline getirildi.



Şekil 2.1. Tabletlerin tavlanması için uygulanan sıcaklık işlemi

Bu tabletler oda sıcaklığında, programlanabilir 2416 Euroterm kontrollü Carbolite marka fırına konuldu. Fırın 5°C/dk hızla 935°C'ye kadar ısıtıldı. Malzeme bu sıcaklıkta 40 saat süreyle oksijen atmosferinde bekletildi. Daha sonra sıcaklık 1°C/dk hızla oda sıcaklığına soğutuldu.



Şekil 2.2. 2416 Euroterm kontrollü Carbolite marka fırın

2.2.2. SEM Öçümleri

Üretilen Cs katkılı numunelerin taramalı elektron mikroskobu SEM analizleri, Kırıkkale Üniversitesi Fen Edebiyat Fakültesi Fizik Bölümü'nde, Jeol JSM 5600 kullanılarak yapıldı. SEM mikrografları 20 kV çalışma voltajında 1500 kat büyütme ve 10 μ m'luk ölçek ile yapıldı. Yapılan incelemelerde kullanılan elektron mikroskobu aşağıda Şekil 2.3' de görülmektedir.

Bu ölçümlerden faydalanılarak, numunelerin yapısal özellikleri hakkında bilgi edinilebilir.



Şekil 2.3. Jeol JSM 5600, Elektron Mikroskobu

2.2.3. X-Işını Toz Kırınımı Ölçümleri

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

Üretilen numunelerin x-ışını kırınım desenleri, Ortadoğu Teknik Üniversitesi'nde, Rikagu marka difraktometre kullanılarak, 0,04° adımlarla $2\theta = 10-60^\circ$ aralığında 30 kV/15 mA çalışma şartlarında yapıldı.

X-ışını kırınım desenlerinden faydalanılarak aşağıdaki bağıntıdan,

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

$\text{YBa}_{2-x}\text{Cs}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ numunelerinin örgü parametreleri hesaplandı.



Şekil 2.4. XRD cihazı, Rikagu difraktometre

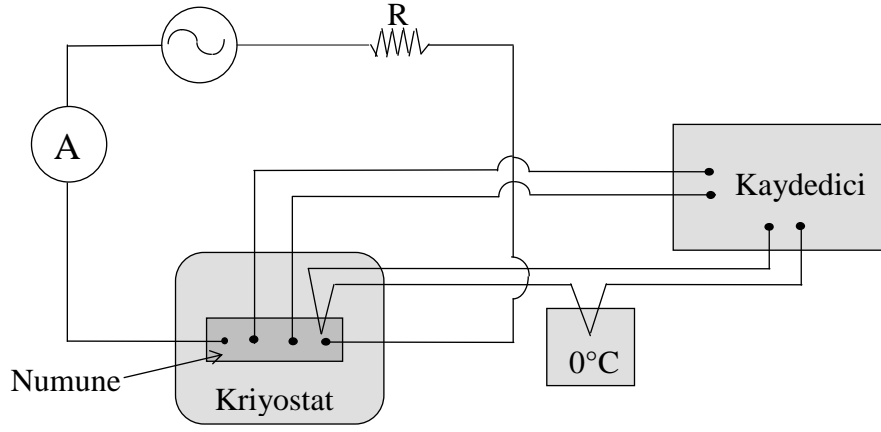
2.2.4. Elektriksel Özdirenç Ölçümleri

Elektriksel özdirençlerin ölçümlerine geçilmeden önce, üretilen numuneler, bir kesici cihaz (Metal Research) ile dikdörtgenler prizması şeklinde kesildi ve gümüş pasta kullanılarak bakır tellerle kontak yapıldı. Daha sonra standart dört nokta yöntemi ile aşağıda şematik olarak gösterilen deneysel düzenele sıcaklığa bağlı olarak

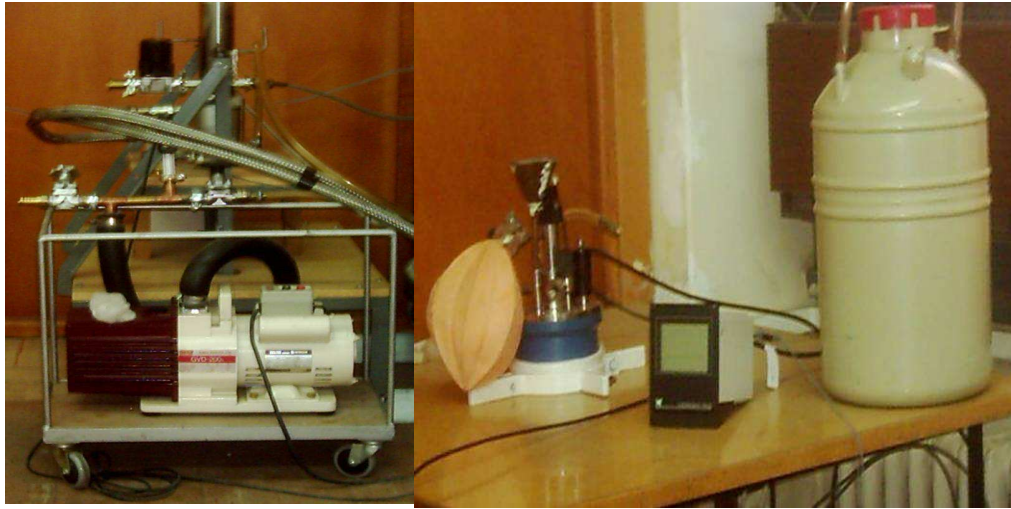
$$\rho = \frac{V}{I} \cdot \frac{A}{\ell}$$

bağıntısı ile özdirençleri ölçüldü.

A numunenin kesiti, ℓ iç kontaklar arası mesafe, V iç kontaklardan ölçülen gerilim ve I numuneye uygulanan akımdır.



Şekil 2.5. Standart dört nokta yöntemi ile özdirenç ölçüm düzeneği



Şekil 2.6. Kriyostat sisteminin fotoğrafı

Elektriksel özdirenç ölçümleri, Bolu Abant İzzet Baysal Üniversitesi'nde, standart dört nokta yöntemi kullanılarak aşağıda görülen kriyostat sistemi ile gerçekleştirildi. Ölçümler sırasında numuneye 5 mA'lık akım uygulandı.

Bu yolla malzemenin süperiletken olup olmadığı, T_c kritik geçiş sıcaklığı gibi özellikleri belirlenebilir.

2.2.5. Kritik Akım Yoğunluğu Ölçümleri

Kritik akım yoğunluğu ölçümleri standart dört nokta yöntemi kullanılarak sıvı azot sıcaklığında (77 K), Şekil 2.5’de görüldüğü gibi devreden akım geçirilerek gerçekleştirildi.

Numuneler sıvı azot sıcaklığında süperiletken durumda iken, güç kaynağından devreye akım verildi ve iç uçlar arasındaki gerilimin sıfır olduğu gözlemlendi. Akım belli bir kritik değeri aşınca, iç uçlar arasındaki gerilimin sıfırdan farklılaştığı gözlemlendi. Bu durum süperiletkenlik halinin ortadan kalktığını göstermektedir. Bu gerilime karşılık gelen akım, kritik akım olarak adlandırılır.

Kritik akım yoğunluğu (J_c), ilk voltajın görüldüğü akım-voltaj eğrilerinden elde edilen I_c kritik akım değerleri ve numunelerin kesit alanlarından yararlanılarak hesaplandı.

2.2.6. Manyetik Alınganlık Ölçümleri

Süperiletkenlerin kritik akım karakteristikleri ve akı dinamiğinin anlaşılmasında manyetik alınganlık ölçümleri önemli bir rol oynamaktadır.

Cs katkısı ile hazırlanan numunelerin, 40-100 K aralığında manyetik alınganlıklarının gerçel (real) ve sanal (imaginer) kısımları; 80 A/m’lik bir manyetik alan ve sabit frekans 111 Hz’de ölçüldü. Bu ölçümler, 7130 Lake Shore AC Susceptometer ile yapıldı.



Şekil 2.7. 7130 Lake Shore AC, Manyetik Alınganlık Ölçüm Sistemi

3. ARAŞTIRMA BULGULARI VE TARTIŞMA

3.1. Giriş

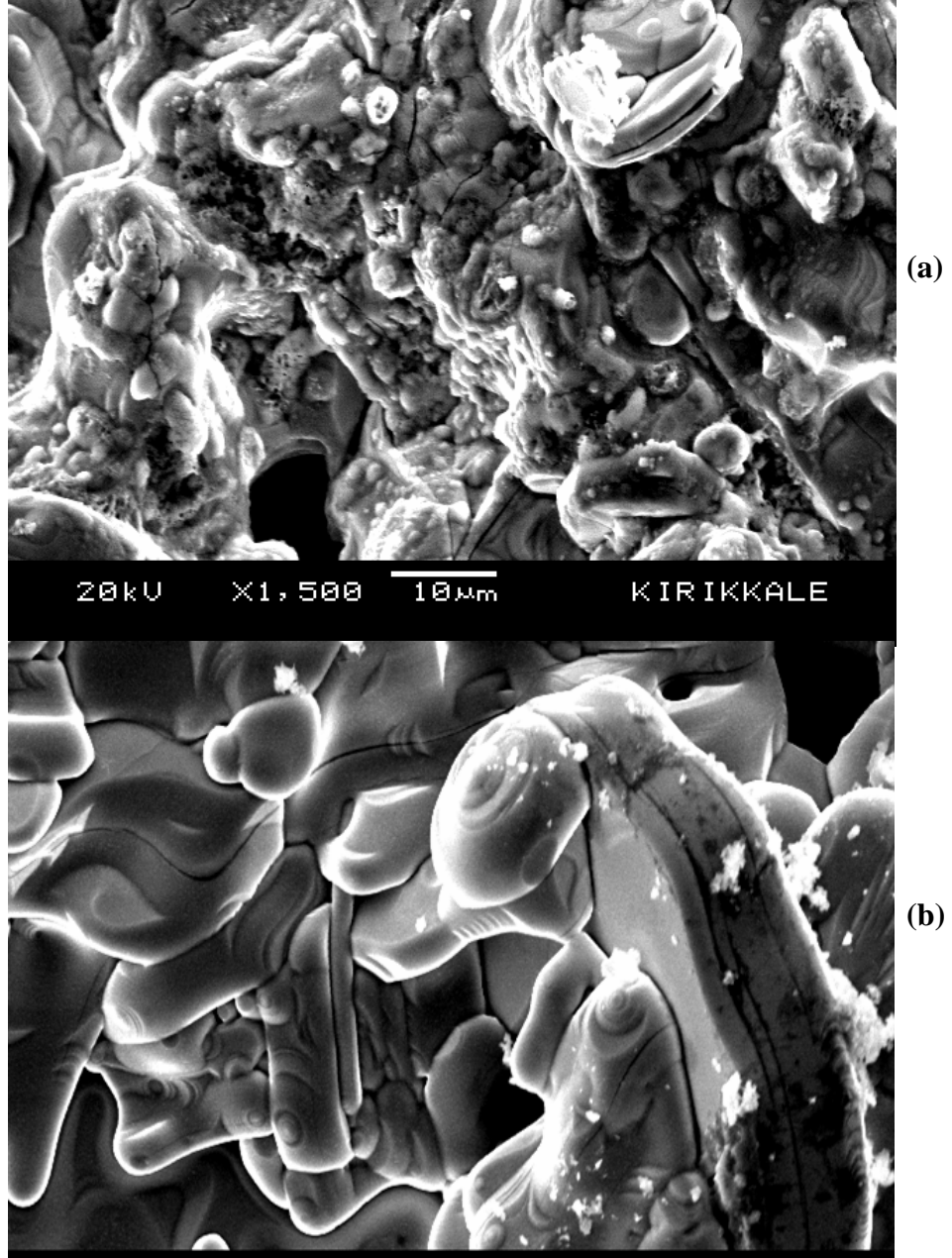
Bu çalışmada, nitratlı bileşikler kullanılarak hazırlanan Cs katkılı $YBa_{2-x}Cs_xCu_3O_{7-\delta}$ süperiletkeninin, x-ışını kırınım desenleri, SEM analizleri, elektriksel özdirenç, kritik akım yoğunluğu ve manyetik alınganlık ölçümleri yardımıyla, katkı miktarlarının numunenin yapısal ve elektriksel özelliklerine etkisi incelendi.

3.2. SEM Analizleri

Yapılan SEM incelemeleri sonucunda, katkı oranının artmasıyla ortalama tane büyüklüğünün arttığı görülmektedir^(27,28,29). Şekil 3.1'den de görülebileceği gibi, 0,05 Cs katkılı numunede tanelerin genellikle yuvarlak yapıda ve 10-15 µm civarında oldukları, buna karşın 0,1 Cs katkılı numunede ise tanelerin dikdörtgen prizması yapısına benzer bir yapıda ve istiflenmiş bir şekilde oldukları, tane boylarının da 30µm'a kadar varabildikleri görülmektedir. Bu istiflenme, x-ışını kırınım desenlerinde c-örgü parametresinin çok belirgin bir şekilde ortaya çıkmasıyla da doğrulanmaktadır.

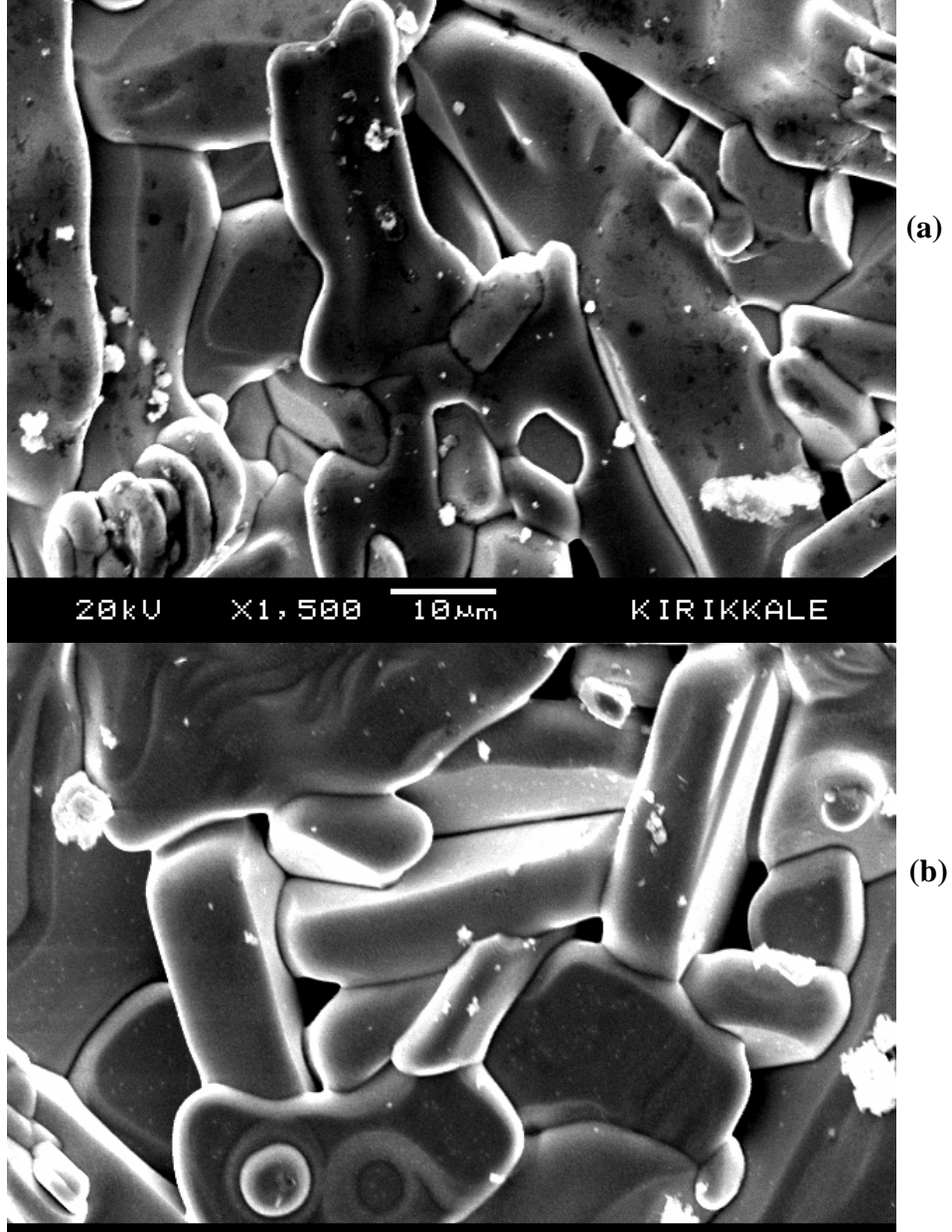
Şekil 3.2'de görüldüğü gibi, katkı oranının 0,2 ve 0,3 olduğu numunelerde tane boylarının 50 µm' a kadar varabildikleri, genişliklerinin de ortalama olarak 10µm civarında oldukları görülmektedir. Ayrıca ilk iki numunenin aksine taneler arasındaki boşlukların büyük ölçüde ortadan kalktıkları görülmektedir. Bu da tanelerin birbirlerine çok daha iyi temas etmelerine neden olmaktadır. Bunun sonucu

olarak da kritik akım yoğunluğu deęerlerinin dięerlerine gre daha byk olmasına yol aacaęı tahmin edilmektedir.



Őekil 3.1. (a) 0,05 Cs katkılı $YBa_{2-x}Cs_xCu_3O_{7-\delta}$ numunesinin SEM fotoęrafı.

(b) 0,1 Cs katkılı $YBa_{2-x}Cs_xCu_3O_{7-\delta}$ numunesinin SEM fotoęrafı



Şekil 3.2. (a) 0,2 Cs katkılı $YBa_{2-x}Cs_xCu_3O_{7-\delta}$ numunesinin SEM fotoğrafı.

(b) 0,3 Cs katkılı $YBa_{2-x}Cs_xCu_3O_{7-\delta}$ numunesinin SEM fotoğrafı

Tanelerdeki bu büyük yapılar ve taneler arası boşluğun azlığı x-ışını kırınım desenlerinde daha şiddetli piklerin oluşumuna neden olmaktadır. Nitekim bu durum, Şekil 3.3’de x-ışını kırınım desenlerinin incelenmesinden de anlaşılmaktadır.

Numuneye katılan Cs'un YBCO'daki sıvı fazın oluşumunu arttırdığı ve bunun da taneleri olağanüstü büyüttüğü düşünülmektedir.

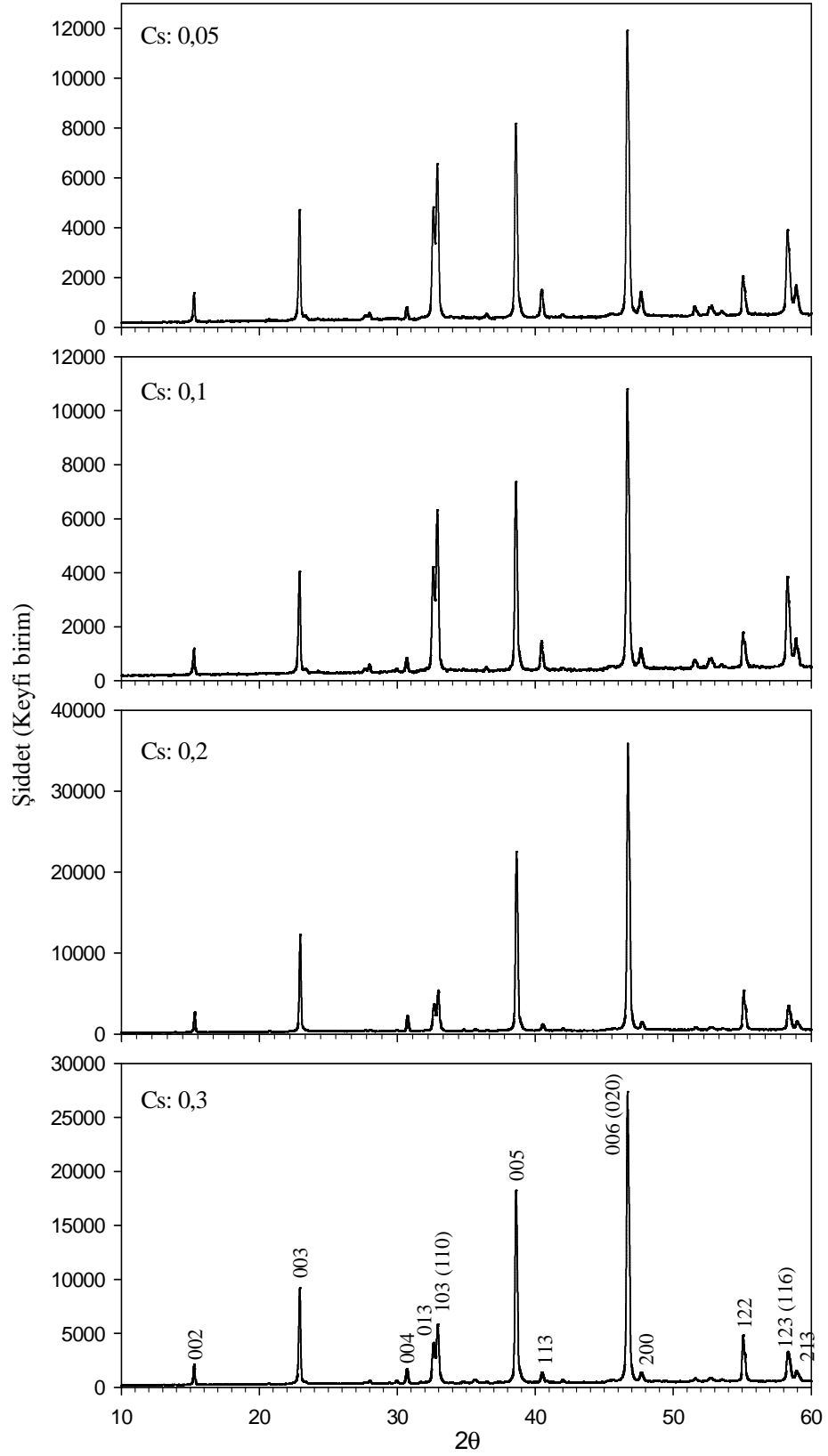
3.3. X-Işını Kırınım Desenleri Analizi

Cs katkılı ($x= 0,05; 0,1; 0,2; 0,3$) $YBa_{2-x}Cs_xCu_3O_{7-\delta}$ örneklerinden alınan x-ışını kırınım desenleri sırasıyla Şekil 3.3' de verilmiştir. Buna göre, örneklerin tavlama sonucunda yapısal faz oluşumlarının tamamlandığı ve ortaya çıkan piklerin literatürde verilen^(30,31,32) $YBa_{2-x}Cs_xCu_3O_{7-\delta}$ pikleri ile uyum içinde oldukları görülmektedir. Süperiletken olmayan faza ve düşük oksijen miktarlı tetragonal faza ait piklere rastlanmamıştır.

Katkı miktarı arttıkça (103), (113) ve (123) piklerinde belirgin bir şekilde azalma görülmektedir. (003), (004), (005) ve (006) gibi *c*-ekseni yönündeki pikler net bir şekilde ortaya çıkmaktadır. Bu da, SEM fotoğraflarının (Şekil 3.1 ve 3.2) incelenmesinden de görülebileceği gibi, katkı miktarının artmasıyla numunelerdeki tanelerin *c*-ekseni boyunca yönlendiklerini göstermektedir.

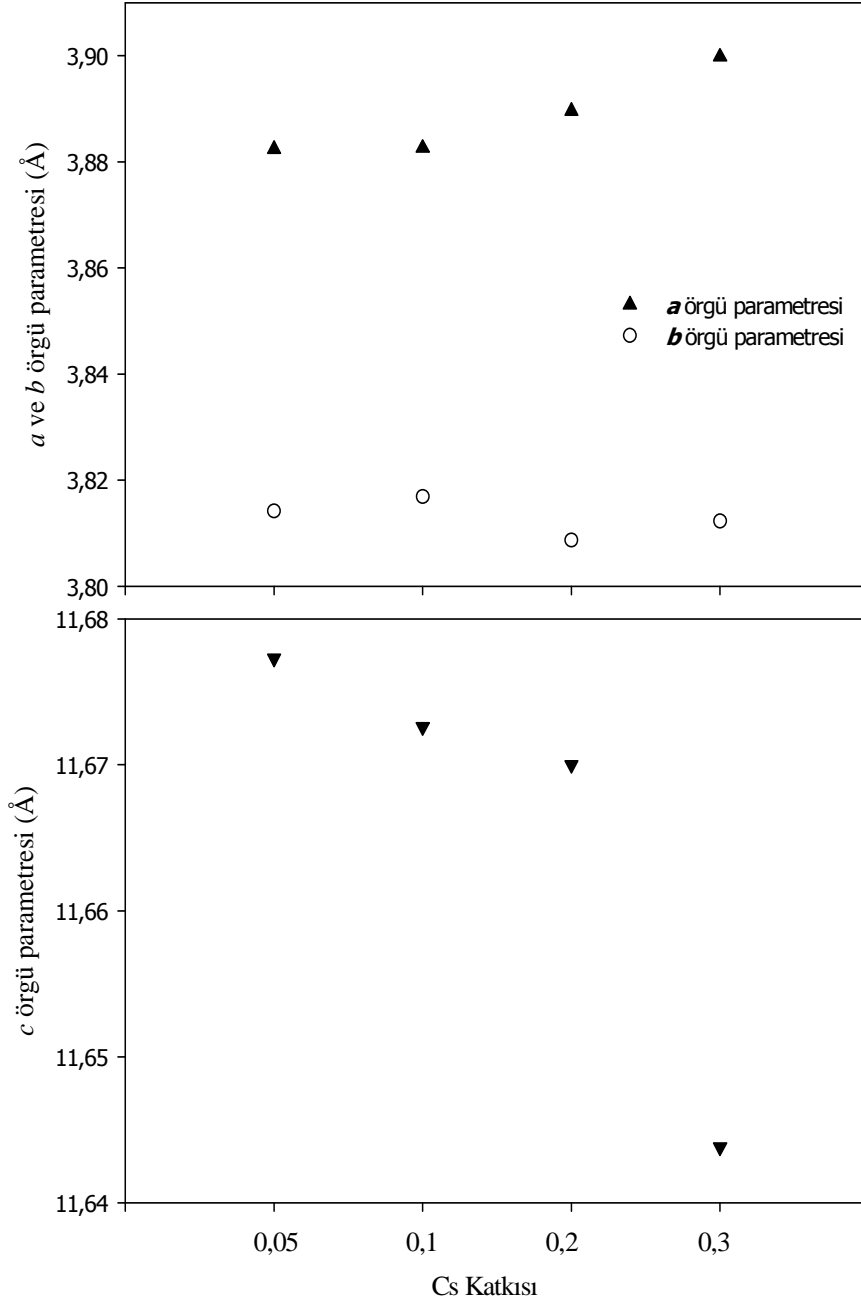
ASTM (American Society For Testing standarts) verilerine dayanılarak, Cs'a ait karakteristik piklerin, numune pikleriyle karşılaştırılması sonucu, herhangi bir karakteristik Cs piki gözlenmemiştir. Bu da, Ba atomları yerine katılan bütün Cs atomlarının, kristal yapıda Ba atomlarının yerine büyük bir olasılıkla yerleştiklerini göstermektedir.

X-ışını kırınım desenlerinden faydalanılarak numunelerin örgü parametreleri hesaplandı⁽³³⁾ ve Şekil 3.4'de gösterildi.



Şekil 3.3. Cs katkılı (x= 0,05; 0,1; 0,2; 0,3) YBa_{2-x}Cs_xCu₃O_{7-δ} numunelerinin x-ışını

kırınım desenleri



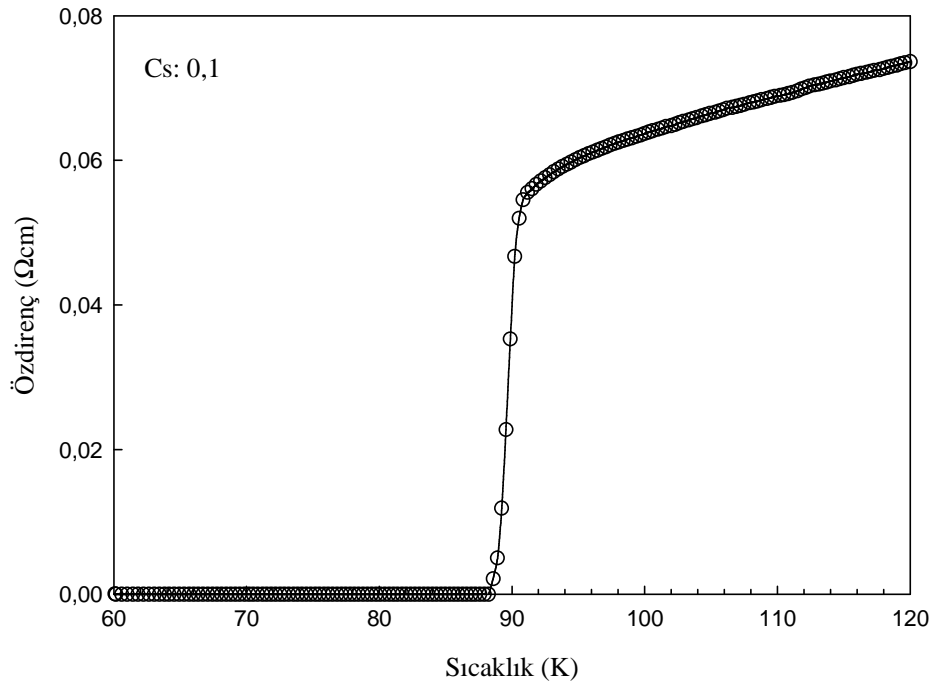
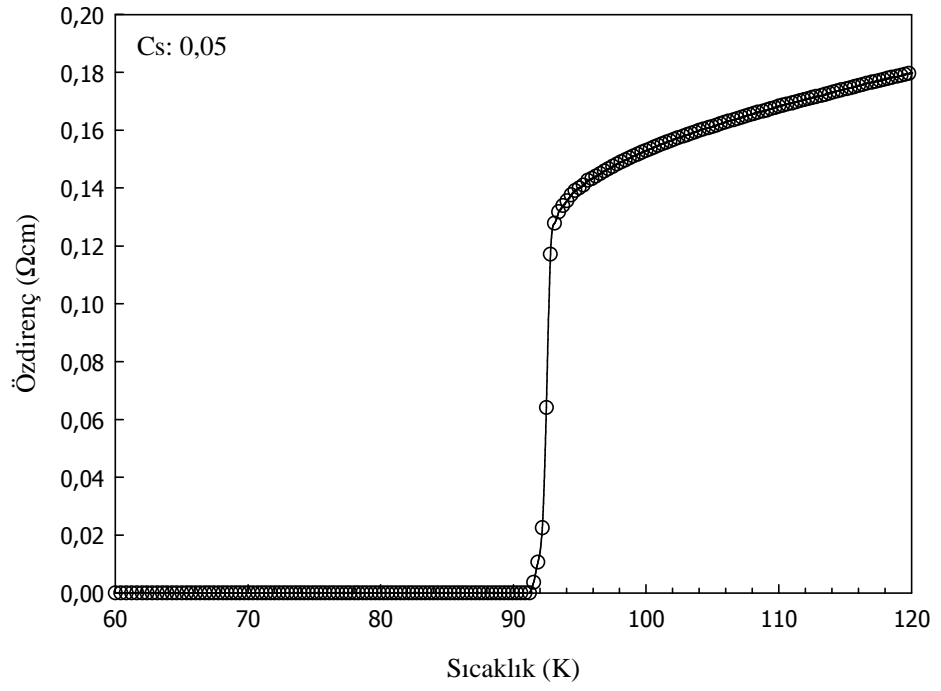
Şekil 3.4. Cs katkılı ($x= 0,05; 0,1; 0,2; 0,3$) $YBa_{2-x}Cs_xCu_3O_{7-\delta}$ numunelerinin örgü parametreleri

Buna göre, katkı miktarının artmasıyla a örgü parametresinin arttığı b örgü parametresinin pek fazla değişmediği buna karşılık c örgü parametresinin belirgin bir şekilde azaldığı görülmektedir. Buna Ba yerine giren Cs'un iyonik yarıçapının daha

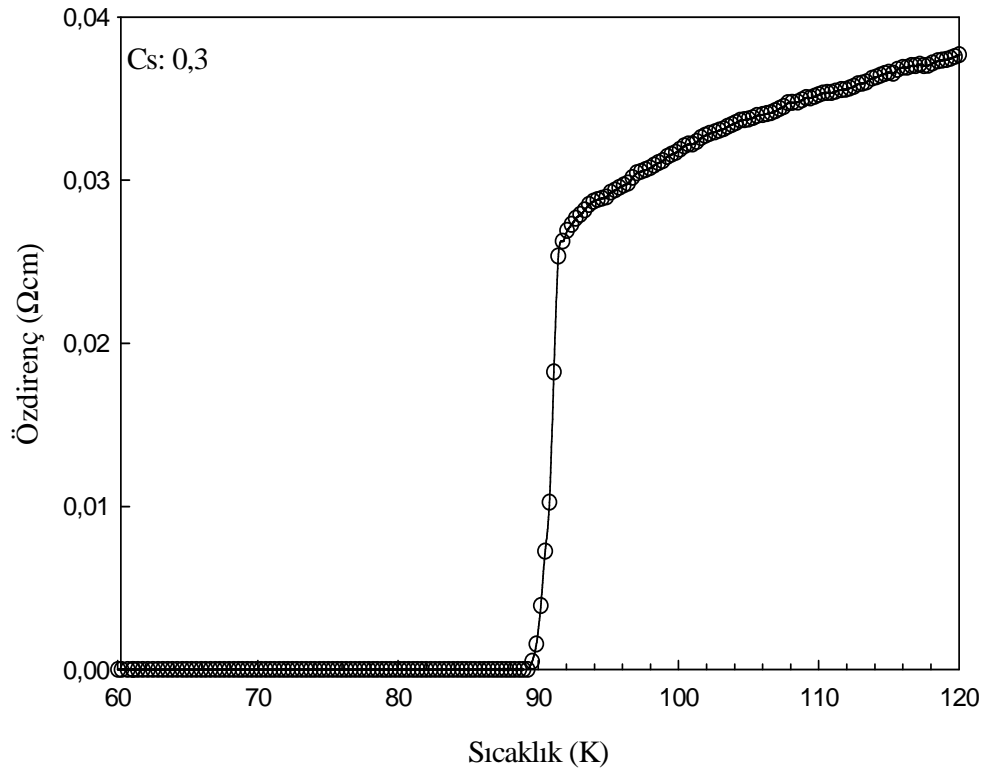
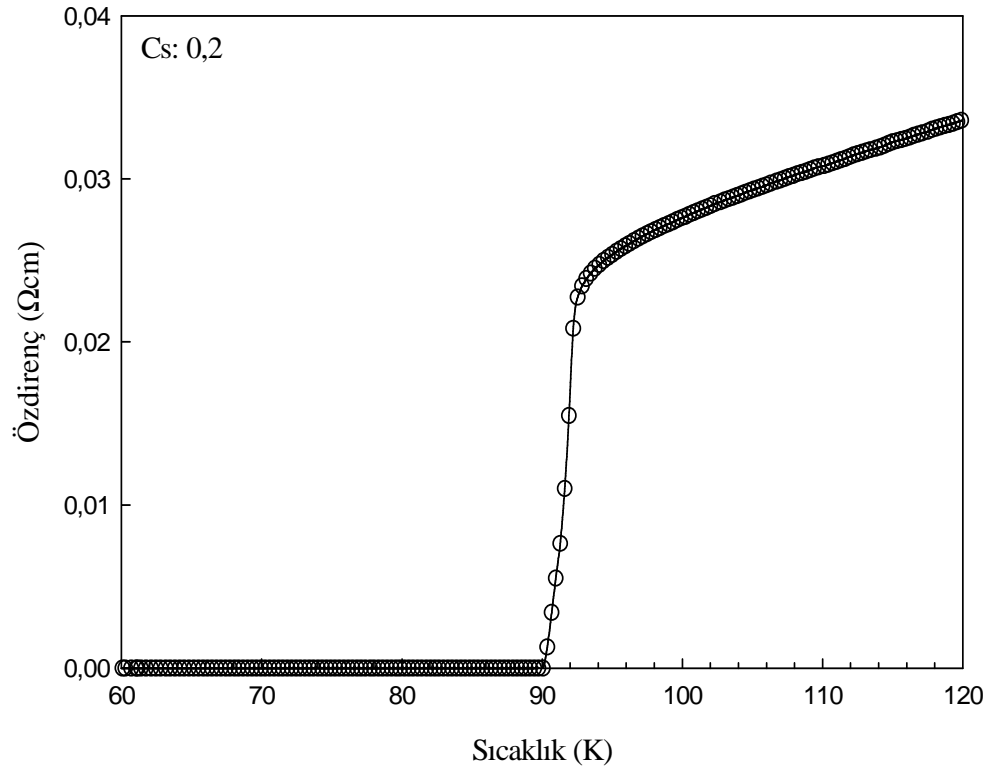
büyük olması nedeniyle O(5) boşluklarından dolayı a -ksenini bir miktar genişletmesinin ve böylece c -kseninin bir miktar büzülmesinin neden olduğu tahmin edilmektedir. b -kseninde bulunan O(1) iyonları nedeniyle b parametresinde fazla bir değişme olmayacağı tahmin edilmektedir.

3.4. Elektriksel Özdirenç Ölçümleri

Nitratlı bileşikler kullanılarak 935°C sıcaklıkta 40 saat süreyle oksijen ortamında tavlansak üretilen numunelerin elektriksel özdirenç ölçümleri yapıldı. Şekil 3.5 ve Şekil 3.6'de görülebileceği gibi katkı miktarının artmasıyla normal bölgedeki özdirenç değerlerinde belli bir miktar azalma meydana gelmektedir. Ayrıca şeklin incelenmesinden süperiletkenlik geçişin (ΔT_c) keskin olduğu (yaklaşık olarak 1,5 K) gözlemlendi. Diğer yandan ağırlıkça 0,05 Cs katkılı numunede yaklaşık 91,5 K olan T_c değeri katkı miktarının ağırlıkça 0,3'e çıktığı numunede 90 K'e düşmektedir. Bu durum, katkı miktarının artışının, özdirence az da olsa olumsuz etkisinin olabileceğini göstermektedir.

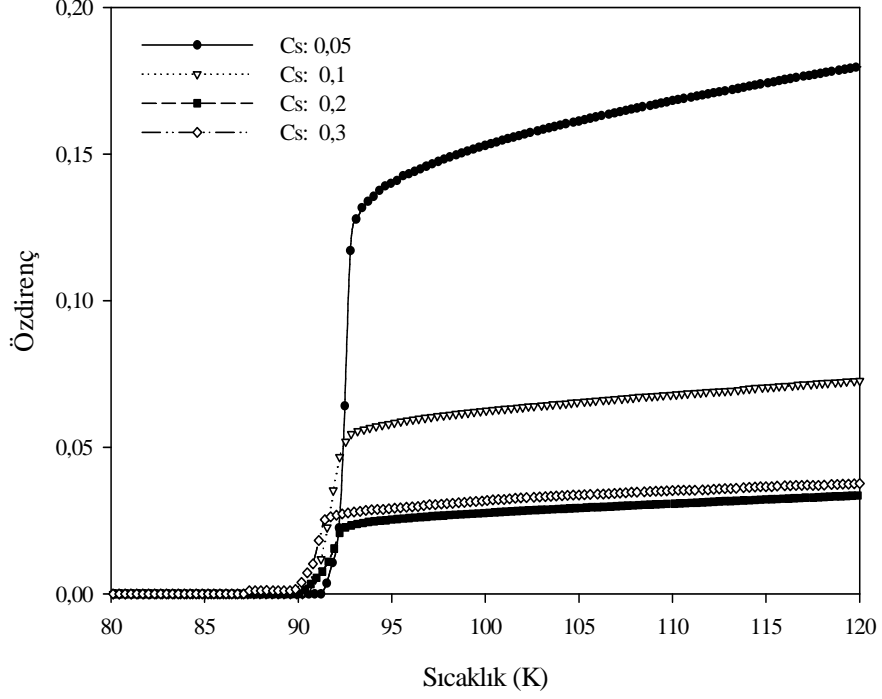


Şekil 3.5. $YBa_{2-x}Cs_xCu_3O_{7-\delta}$ ($x=0,05; 0,1$) numunelerinin özdirenç-sıcaklık eğrileri



Şekil 3.6. $\text{YBa}_{2-x}\text{Cs}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ($x=0,2; 0,3$) numunelerinin özdirenç-sıcaklık eğrileri

Bu durum, Şekil 3.7’de gösterilen normalize edilmiş özdirençlerinin sıcaklıkla değişimi grafiğinden görülmektedir.

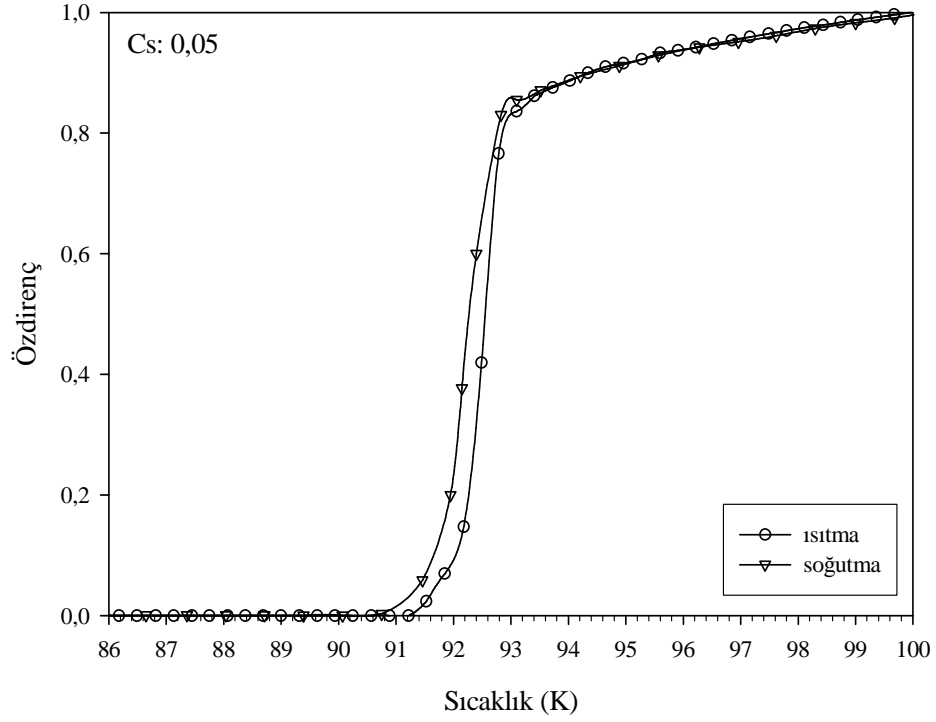


Şekil 3.7. Üretilen $YBa_{2-x}Cs_xCu_3O_{7-\delta}$ ($x=0,05; 0,1; 0,2; 0,3$) numunelerinin özdirençlerinin sıcaklıkla değişim grafiği

M. Ausloos ve arkadaşlarının⁽³⁴⁾ Ba yerine 0,05 Cs katarak yaptıkları çalışmada kritik geçiş sıcaklığı 80 K olarak rapor edilmiştir. Oysa, aynı katkıyı kullanarak ürettiğimiz numunede T_c 91,5 K olarak ölçülmüştür (Şekil 3.5).

Yapılan literatür taraması sonucu⁽³⁵⁾ elektriksel özdirenç ölçümlerinde, soğutma sırasında gözükten geçiş sıcaklığının, ısıtma sırasındaki geçiş sıcaklığından genellikle daha düşük olduğundan bahsedilmektedir. Bu amaçla Cs ($x=0,05$) katkılı numunenin hem ısıtma hem de soğutma sırasında ölçümleri kaydedildi ve bu

Şekil 3.8’de gösterildi. Buna göre, ısıtma sırasındaki T_c değerinin soğutma sırasındaki T_c değerinden 0,2 K kadar daha büyük olduğu anlaşılmaktadır.

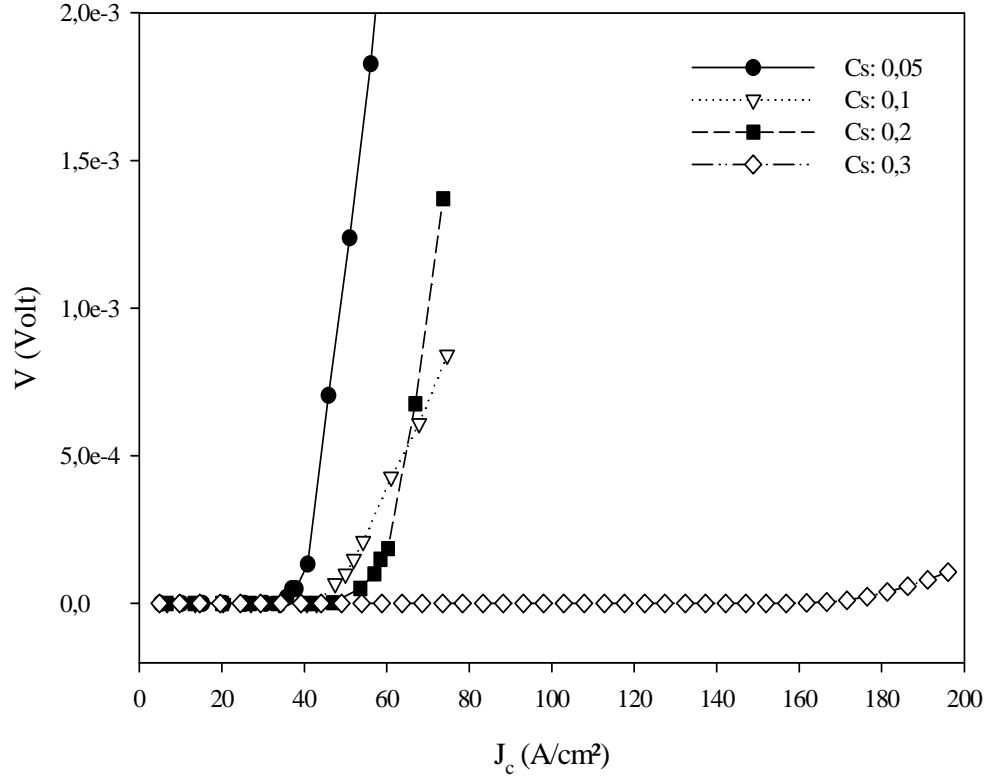


Şekil 3.8. 0,05 Cs katkıli YBa_{2-x}Cs_xCu₃O_{7-δ} numunesinin ısıtma-soğutma değişim grafiği

3.5. Kritik Akım Yoğunluğu Ölçümleri

Kritik akım yoğunluğu ölçümleri, standart dört nokta yöntemiyle, 5 μ A' lik akım uygulanarak yapıldı. Ölçüm sonuçları Şekil 3.9'da görülmektedir. Yapılan ölçümler sonucunda katkı oranının artmasıyla J_c değerlerinin de arttığı

gözenmektedir. J_c , düşük katkı miktarlı numunelerde 40-55 A/cm^2 iken, Cs ($x=0,3$) katkılı numunede maksimum yani 160 A/cm^2 değerine ulaşmaktadır.

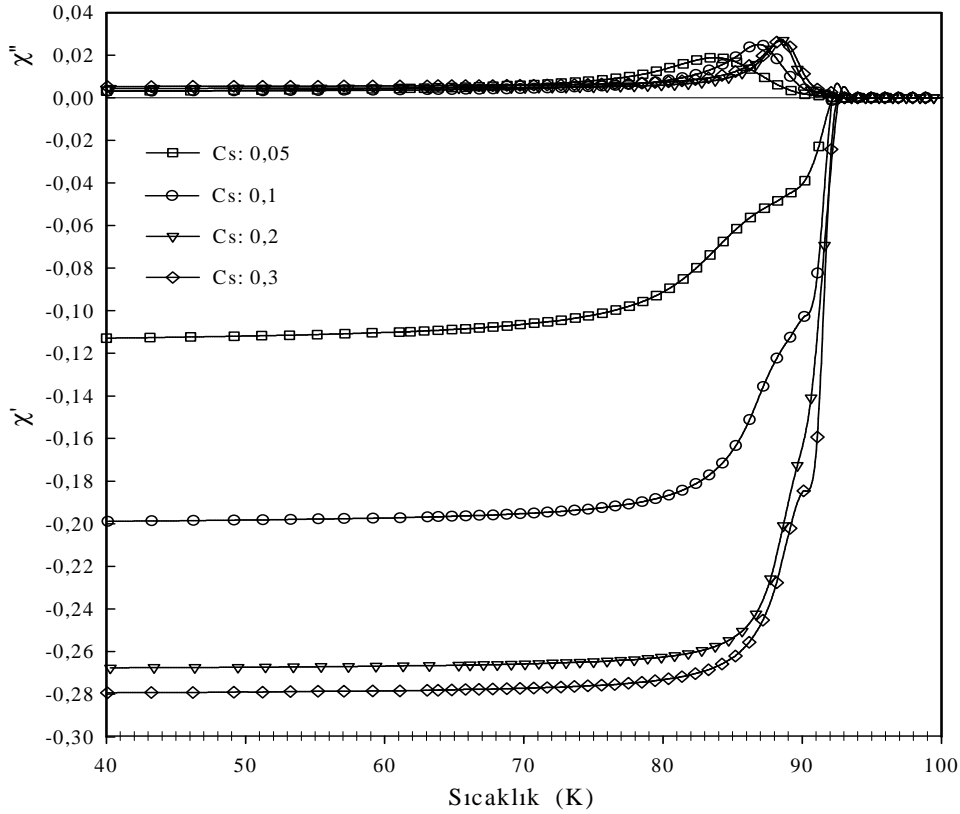


Şekil 3.9. $YBa_{2-x}Cs_xCu_3O_{7-\delta}$ ($x=0,05; 0,1; 0,2; 0,3$) numunelerinin akım yoğunluğu-gerilim eğrileri

Buna, SEM fotoğraflarının (Şekil 3.1 ve 3.2) incelenmesi ile de görülebileceği gibi, yapıdaki porozitenin azalması nedeniyle taneler arası temasın artmasının ve tane büyüklüğündeki artışın neden olduğu tahmin edilmektedir.

3.6. Manyetik Alınganlık Ölçümleri

Üretilen süperiletken numunelerin 40K-100K aralığındaki manyetik alınganlık ölçümleri Şekil 3.10'da gösterildi. Buna göre, literatürde de^(36,37,27,38) bahsedildiği gibi, nispeten daha taneli olan numunelerde (Cs: 0,05 ve 0,1) çiftlenim diamagnetik perdeleme net bir şekilde gözükmemektedir. Cs katkı oranının 0,2 ve 0,3 olduğu numunelerde ise tanecik etkisi oldukça azalmakta (özden diamagnetik perdeleme) ve malzeme daha keskin bir şekilde süperiletkenliğe geçmektedir. Tanecik etkisinin azalması SEM fotoğraflarından da anlaşılmaktadır.



Şekil 3.10. $YBa_{2-x}Cs_xCu_3O_{7-\delta}$ ($x=0,05; 0,1; 0,2; 0,3$) numunelerinin AC manyetik alınganlıklarının sıcaklığa göre değişimi

4. SONUÇ

Bu çalışmada bilimsel olarak yaygın bir şekilde çalışılan YBaCuO bileşiği klasik numunelerden farklı olarak nitrathlı bileşikler kullanılarak üretildi. Bu yöntem ile sıvı fazdan katı faza dönüşümle başlangıç karışımının ortaya çıkmasından dolayı hem zamandan tasarruf ve hem de daha homojen bir karışım elde edilmektedir. Çalışmada parametre olarak Ba yerine belirli miktarlarda ($x=0,05$; 0,1; 0,2; 0,3) Cs konulması uygun görülmüştür.

Cs miktarının artmasıyla süperiletken bileşikteki yapısal, elektriksel ve manyetik bir takım değişiklikler incelenmiştir. 935°C 'de oksijen 40 saat tavlansak üretilen numunelerin taramalı elektron mikroskobu (SEM) ile görüntüleri elde edildi. Bu görüntülerden katkı miktarının artmasıyla numunedeki gözenekli yapının azaldığı ve buna bağlı olarak başlangıçta 10-15 μm mertebesinde, yuvarlak şekilli tanelerin daha sonra 50 μm ' a kadar varabilen dikdörtgensel tanelere dönüştüğü görüldü.

Üretilen numunelerin x-ışınları difraktometresiyle $2\theta=10-60^{\circ}$ aralığında kırınım desenleri elde edildi. Bu desenlerin incelenmesi sonucu katkı miktarının artmasıyla tanelerdeki (001) piklerinin belirgin bir şekilde ortaya çıktığı görüldü. Diğer yandan numunelerdeki süperiletken olmayan faza ve Cs'a ait herhangi bir pike rastlanmamıştır. SEM fotoğraflarının incelenmesinde karşımıza çıkan gittikçe daha sıkı ve de büyük taneli yapının sonucu olarak x-ışını kırınım desenlerinde katkı miktarının artmasıyla şiddette de önemli ölçüde artış gözlenmemiştir.

X-ışını kırınım desenlerinden yararlanılarak numunelerin örgü parametreleri hesaplandı. Ve bunun sonucu olarak ortorombik yapıdaki süperiletken numunelerde

katkı miktarının artmasıyla a parametresinin arttığı buna karşın b parametresinde dikkate değer bir değişikliğin olmadığı görüldü. c örgü parametresinde ise belirgin bir azalma gözlemlendi. Bu duruma Ba atomundan daha büyük çaplı olan Cs atomlarının kristal örgüde, arzu edildiği gibi Ba atomlarının yerlerine yerleşmelerinin neden olduğu tahmin edilmektedir. Ba atomunun üst kısmında bulunan a -ekseni üzerindeki oksijen eksikliklerinin ve bu eksenindeki bağ kuvvetlerinin daha zayıf olması nedeniyle Ba atomlarının a -eksenini daha rahat bir şekilde genişlettikleri ve bunun sonucu olarak da c -ekseninin bir miktar büzüştüğü tahmin edilmektedir.

10 K-300 K aralığında yapılan elektriksel özdirenç ölçümleri sonucunda katkı miktarının artmasıyla numunelerin özdirençlerinde bir miktar azalmanın meydana geldiği gözlemlenmektedir. Buna SEM fotoğraflarından da görülebileceği gibi katkı miktarının artmasıyla ortaya çıkan iri taneli ve daha sıkı bağlı yapının neden olduğu düşünülmektedir. Kritik geçiş sıcaklık bölgesi keskin olup geçiş sıcaklığı katkı miktarının artmasıyla 91,5 K'den 90 K'e doğru küçük bir miktar azalmıştır.

Standart dört nokta yöntemiyle 77 K'de yapılan akım-gerilim ölçümleri sonucunda katkı miktarının 0,2'ye kadar olduğu numunelerde kritik akım yoğunluğunun YBaCuO numuneler için bilinen değerler mertebesinde ve 40-55 A/cm² olduğu anlaşılmaktadır. Katkı miktarının 0,3'e çıktığı numunede ise J_c değeri 160 A/cm²'nin üzerine kadar ulaşmaktadır. Bu durum yukarıda bahsedilen SEM fotoğraflarından, x-ışını ve özdirenç ölçümlerinden de kendini hissettirmektedir.

Üretilen numunelerin manyetik alınganlıkları sıcaklığı bağlı olarak sabit bir frekans ve sabit bir manyetik alan altında ölçüldü. Bu ölçümler sonucunda katkı miktarının artmasıyla manyetik alınganlığın real kısmında ideal değer olan -1'e

dođru gözle görülür bir düşüşün olduđu görüldü. SEM fotođraflarından da görülebileceđi gibi katkı miktarının artmasıyla tanecikli yapıdan kaynaklanan yayvan geçişin, daha keskin bir geçişe dođru dönüştüđu görülmektedir. Bir başka deyişle numuneler daha kısa bir sıcaklık aralığında süperiletken hale bütün olarak geçmektedir.

Numunelere katılan Cs'un $YBa_{2-x}Cs_xCu_3O_{7-\delta}$ bileşiginde sıvı fazın oluşumunu arttırdığı ve bunun sonucu olarak da iri taneli yapının ortaya çıktığı düşünölmektedir.

KAYNAKLAR

1. H. K. Onnes, Leiden Comm., **124**, 120(1911).
2. İlhami Buğdaycı, Süperiletkenlik, www.ch.ic.ac.uk/otway/YBCO.html.
3. J. Bardeen, L. N. Cooper, J. R. Schrieffer, Phys. Rev, **108**, 1175(1957).
4. J. G. Bednorz and K. A. Müller, Phys. Rev. B, **64**, 189(1986).
5. M. K. Wu, J.R. Ashbourn, C. J. Torng, L. Gao, Z. J. Huang, Y. Q. Wang and C. W. Chu, Phys. Rev. Lett. **58**, 908(1987).
6. H. Maeda, Y. Tanaka, M. Fukutami and T. Asano, Jpn. J. Appl. Phys. Lett. **4**, 209(1988).
7. Z. Z. Sheng, A. M. Herman, A. El Ali, C. Almasan, J. Estarda, T. Datta and R. J. Matsan, Phys.Rev. Lett. **60**, 937(1988).
8. H.R. Ott, A. Schilling, M. Cantoni and J.D. Guo, Nature, **363**, 56(1993).
9. C. W. Chiu, R.L. Meng, L. Gao, Z.J. Huang, F. Chen and Y.Y. Xue, Nature, **365**, 323(1993).
10. M. Yılmazlar, $\text{Bi}_{1,6}\text{Pb}_{0,4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Cu}_3\text{O}_7$ Süperiletkenine Sm_2O_3 Katkısının Etkileri, Doktora Tezi, K. T. Ü., Trabzon, 2002.
11. V.L. Ginzburg, Journal of Superconducting Incorporating Novel Magnetism, Vol **13**, 896(2000).
12. A. Oota, A. Krihigashi, Y. Sasaki, K. Ohba, Jpn. J. Appl. Phys., **27**, 12 (1988).
13. A.Gencer, et al. Supercond. Sci. Technol. **9**, 284(1996).
14. A. J. van Duyneveldt, AC Susceptibility Studies in Solid State Magnetism, Lake Shore Cryotronics, Inc., Ohio, 1991.
15. S. Nezir, Amonyum Nitrat Yöntemiyle Hazırlanmış Yüksek Sıcaklık Bi(Pb)-Sr-Ca-Cu-O Süperiletken Bileşiklerin Bazı Elektriksel, Yapısal ve Magnetik Özellikleri, Doktora Tezi, KTÜ, Trabzon, 1996.
16. D. Dew-Hughes, Met. Mater. **4**, 741(1988).
17. M. S. Islam, R. C. Baetzold, Physical Review B, **40**, 10926(1989).
18. M. Cyrot, D. ve Pauna, Introduction to Superconductivity and High- T_c Materials, World Scientific, New Jersey, 1992.
19. T. D. Dzhafarov, M. Altunbaş, A. Varilci ve T. Küçükömeroğlu, Materials

- Letters, **25**, 81(1995)
20. K. Yvon, M. François, Z. Physics B - Condensed Matter, **76**, 413(1989).
 21. J. R. LaGraff, P. D. Han, D. A. Payne, Physical Review B, **43**, 441(1991).
 22. E. D. Specht, C. J. Sparks, A. G. Dhere, J. Brynestad, O. B. Cavin, D. M. Kroeger, H. A. Oye, Physical Review B, **37**, 7426(1988).
 23. S. J. Rothman, J. L. Routbort, Physical Review B, **40**, 8852(1989).
 24. J. L. Tallon, D. M. Pooke, R. G. Buckley, M. R. Presland, F. J. Blunt, Physical Review B, **41**, 7220(1990).
 25. S. Jin, T. H. Tiefel, R. C. Sherwood, M. E. Davis, R. B. Van Dover, G. W. Kammlott, R. A. Fastnavht, H.D. Keith, Applied Physics Letters, **52**, 2074(1988).
 26. M. Murakami, M. Morita, K. Doi, M. Miyamoto, Japanese Journal of Applied Physics, **28**, 1189(1989).
 27. Chun Wel Cheng, A. C. Rose Innes, N. McN Alford, M. A. Harmer, J. D. Birchall, Supercond. Sci. Technol. **1**, 113(1988).
 28. M. Murakami, Supercond. Sci. Technol. **5**, 185(1992)
 29. John R. LaGraff and David A. Payne, The American Physical Society, Phys. Rev. B **47**, 3380(1993)
 30. Klans Yvon, Micheal François, Z. Phys. B - Condensed Matter, **76**, 413(1989).
 31. Georgeta Alecu, Romanion Reports of Physics, **56**, 404(2004).
 32. R. J. Cava, B. Batlogg, R. B. van Dover, D. V. Murphy, S. Sunshine, T. Siegrist, J. P. Remeika, E. A. Rietman, S. Zahurak and G. P. Espinosa, Physical Review Letter, **59**, 1676(1987).
 33. Masae Kikuchi, Yasuhiko Syono, Ayako Tokiwa, Katsuyoshi Oh-Ishi, Hide Arai, Kenji Hiraga, Norio Kobayashi, Tokaaki Sasaoka and Yoshio Muto, Japanese Journal of Applied Physics, **26**, L1066(1987).
 34. M. Ausloos, Physical Review B, **39**, 2729(1989)
 35. David J. Bishop, L. Gammel Peter and A. Huse David, Scientific American Feb., p **24**, 48(1993)
 36. R. B. Goldford, M. Leleental, C. A. Thompson, NISTIR., **3977**, 1(1991)
 37. M. Nikola and R. B. Goldfard, Physical Review B, **39**, 6615(1989)
 38. V. Calzona, M. R. Cimberle, C. Ferdeghini, M. Putti and A. S. Sırı, Physica C **157**, 425(1989)

