$YBa_2Cu_3O_7$ SÜPERİLETKENLERİNİN YAPISAL ÖZELLİKLERİ ÜZERİNE BASINÇ ETKİSİNİN ARAŞTIRILMASI

Ismahan DÜZ

YÜKSEK LİSANS TEZİ
ORTAÖĞRETİM FEN VE MATEMATİK ALANLARI EĞİTİMİ
FİZİK ÖĞRETMENLİĞİ PROGRAMI
Konya, 2008

T.C.
SELÇUK ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

$YBa_2Cu_3O_7$ SÜPERİLETKENLERİNİN YAPISAL ÖZELLİKLERİ ÜZERİNE BASINÇ ETKİSİNİN ARAŞTIRILMASI

Ismahan DÜZ

YÜKSEK LİSANS TEZİ
ORTAÖĞRETİM FEN VE MATEMATİK ALANLARI EĞİTİMİ
FİZİK ÖĞRETMENLİĞİ PROGRAMI

DANIŞMAN
Prof. Dr. Oğuz DOĞAN

Konya, 2008

T.C.
SELÇUK ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

$YBa_2Cu_3O_7$ SÜPERİLETKENLERİNİN YAPISAL ÖZELLİKLERİ ÜZERİNE BASINÇ ETKİSİNİN ARAŞTIRILMASI

Ismahan DÜZ

YÜKSEK LİSANS TEZİ
ORTAÖĞRETİM FEN VE MATEMATİK ALANLARI EĞİTİMİ
(FİZİK ÖĞRETMENLİĞİ PROGRAMI)

Bu tez 11.11.2008 tarihinde aşağıdaki jüri tarafından oybirliği / oyçokluğu ile kabul edilmiştir.

Prof. Dr. Oğuz DOĞAN
(Danışman)

Yrd. Doç. Dr. Ö. Faruk YÜKSEL
(Üye)

Yrd. Doç. Dr. Haziret DURMUŞ
(Üye)

ÖZET

Yüksek Lisans Tezi

$YBa_2Cu_3O_7$ SÜPERİLETKENLERİNİN YAPISAL ÖZELLİKLERİ ÜZERİNE BASINÇ ETKİSİNİN ARAŞTIRILMASI

Ismahan DÜZ

Selçuk Üniversitesi

Fen Bilimleri Enstitüsü

Ortaöğretim Fen ve Matematik Alanları Eğitimi

(Fizik Öğretmenliği Programı)

Danışman: Prof. Dr. Oğuz DOĞAN

2008, 95 Sayfa

Jüri;

Prof. Dr. Oğuz DOĞAN

Yrd. Doç. Dr. Ö. Faruk YÜKSEL

Yrd. Doç. Dr. Haziret DURMUŞ

Bu tezde; basıncın ve Y bölgesine Lu ve Cu bölgesine de Ag katkılamasının $Y_{0.5}Lu_{0.5}Ba_2Cu_{3-x}Ag_xO_{7-\delta}$ süperiletken malzemesinin yapısal ve süperiletkenlik özellikleri üzerine etkisi araştırılmıştır.

$YBa_2Cu_3O_{6.5}$ oksit süperiletken malzemesi katıhal tepkime yöntemiyle hazırlanmıştır. Malzemeye 15, 30, 45 *MPa* büyüklüğünde basınçlar uygulanmıştır. Y bölgesine Lu ve Cu bölgesine de Ag katkılanarak $Y_{0.5}Lu_{0.5}Ba_2Cu_{3-x}Ag_xO_{7-\delta}$ (x = 0.1, 0.2, 0.3) bileşiği elde edilmiştir. x = 0.1 için elde edilen malzemeler A serisi (15 *MPa* için A1, 30 *MPa* için A2, 45 *MPa* için A3), x = 0.2 için elde edilen malzemeler B serisi (15 *MPa* için B1, 30 *MPa* için B2, 45 *MPa* için B3)ve x = 0.3 için elde edilen malzemeler ise C serisi (15 *MPa* için C1, 30 *MPa* için C2, 45 *MPa* için C3) olarak adlandırılmıştır. Elde edilen malzemelerin, XRD analizleri, polarize optik mikroskop fotoğrafları, SEM görüntüleri ve yoğunluk ölçümleriyle karakterizasyonu yapılmıştır.

Sonuç olarak, YBCO seramiğinde Y bölgesine Lu ve Cu bölgesine de Ag katkılamasının malzemenin yapısal ve süperiletkenlik özelliklerini iyileştirdiği, basınç uygulamasının ise YBCO ve $Y_{0.5}Lu_{0.5}Ba_2Cu_{3-x}Ag_xO_{7-\delta}$ bileşiklerinde, genel olarak yapısal ve süperiletkenlik özelliklerinde olumsuz etkiler yaptığı tespit edilmiştir.

Anahtar Kelimeler: $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ seramik süperiletkenler, Lu ve Ag katkılaması, tablet basıncı.

ABSTRACT

MS Thesis

INVESTIGATION OF THE EFFECT OF PRESSURE ON STRUCTURAL PROPERTIES OF $YBa_2Cu_3O_7$ SUPERCONDUCTORS

Ismahan DÜZ

Selcuk University

Graduate School of Natural and Applied Science

Department of Physics Education

Supervisor: Prof. Dr. Oğuz DOĞAN

2008, 95 Pages

Jury;

Prof. Dr. Oğuz DOĞAN

Dr. Ö. Faruk YÜKSEL

Dr. Haziret DURMUŞ

In this thesis, the effects of pressure and partial substitutions of Lu instead of Y and Ag instead of Cu sites about structural and superconducting properties of $Y_{0.5}Lu_{0.5}Ba_2Cu_{3-x}Ag_xO_{7-\delta}$ compound has been investigated.

$YBa_2Cu_3O_{6.5}$ oxide superconductor samples have been prepared by solid state reaction method. 15, 30, 45 *MPa* pressures have been applied to the samples. $Y_{0.5}Lu_{0.5}Ba_2Cu_{3-x}Ag_xO_{7-\delta}$ compound (x = 0.1, 0.2, 0.3) has been synthesized by partial substitution of Lu instead of Y and Ag instead of Cu sites. As A series that which has x = 0.1 (for 15, 30, 45 *MPa,* respectively A1, A2 and A3), B series that which has x = 0.2 (for 15, 30, 45 *MPa,* respectively B1, B2 and B3), C series that which has x = 0.3 (for 15, 30, 45 *MPa,* respectively C1, C2 and C3) have been called. All the samples have been characterized by XRD analysis, polorized optical microscopy photographs, SEM microphotographs and density measurements.

Finally, it was determined that although the partial substitutions of Lu instead of Y and Ag instead of Cu sites in YBCO ceramic improved structural and superconducting properties of samples, applied pressure on YBCO and $Y_{0.5}Lu_{0.5}Ba_2Cu_{3-x}Ag_xO_{7-\delta}$ compounds damaged this properties.

Keywords: $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ ceramic superconductors, doping of Lu and Ag, pellet pressure.

ÖNSÖZ

Yüksek Lisans tezi olarak sunduğum bu çalışmada her türlü görüş ve yardımlarını esirgemeyen çok değerli tez hocam sayın Prof. Dr. Oğuz DOĞAN'a en içten teşekkürlerimi sunarım.

Laboratuarlarını kullanma imkanı veren Atatürk Üniversitesi Mühendislik-Mimarlık Fakültesi Elektrik-Elektronik Mühendisliği Bölümünden Prof. Dr. Mehmet ERTUĞRUL'a ve Atatürk Üniversitesi Kazım Karabekir Eğitim Fakültesinden Arş. Gör. Erdal SÖNMEZ'e teşekkürlerimi sunarım. Ayrıca araştırmalarımın her safhasında yardımcı olan Arş. Gör. Mücahit YILMAZ'a ve tüm Fizik Eğitimi Anabilim Dalı öğretim üyelerine yardımları için çok teşekkür ederim.

Hayatımın her anında olduğu gibi, tez çalışmalarım sırasında da büyük desteklerini gördüğüm çok değerli aileme de teşekkürlerimi sunarım.

İÇİNDEKİLER

ÖZET iii

ABSTRACT iv

ÖNSÖZ v

İÇİNDEKİLER vi

ŞEKİLLER DİZİNİ ix

ÇİZELGELER DİZİNİ xiv

KISALTMALAR VE SEMBOLLER DİZİNİ xv

1. GİRİŞ 1

1.1. Süperiletkenliğin Tarihsel Gelişimi 2

1.2. Süperiletkenlerin Özellikleri 3

1.2.1. Geçiş sıcaklığı (Kritik sıcaklık) 3

1.2.2. Meissner etkisi 4

1.2.3. Kritik magnetik alan 6

1.2.4. Kritik akım yoğunluğu 9

1.2.5. Nüfuz derinliği (Penetration depth) 11

1.2.6. Eşuyum uzunluğu (Coherence lenght) 12

2. YÜKSEK SICAKLIK OKSİT SÜPERİLETKENLERİ **14**

2.1. Giriş **14**

2.1.1. Yüksek sıcaklık oksit süperiletkenlerinin yapısal özellikleri **15**

2.2. YBCO'nun Genel Özellikleri **16**

2.2.1. YBCO'nun kristal kimyası **17**

2.2.2. YBCO'da iyon katkılama-yerdeğiştirme etkileri **19**

2.3. Yüksek Sıcaklık Oksit Süperiletkenlerinin Basınç Altındaki Davranışları **21**

2.3.1. Giriş **21**

2.4. Kaynak Araştırması **22**

2.4.1. Basınç altında yapılan çalışmalar **22**

2.4.2. Basınç altında YBCO üzerine yapılan çalışmalar **23**

2.4.2.1. Alçak basınçta YBCO üzerine yapılan çalışmalar **25**

2.4.2.2. Yüksek basınçta YBCO üzerine yapılan çalışmalar **26**

3. MATERYAL VE METOD **28**

3.1. YBCO Süperiletken Hazırlama Metodları **28**

3.2. Numunelerin Hazırlanması **29**

3.3. X-ışını Kırınım Ölçümleri **34**

3.4. Optik Fotoğraf Analizleri **35**

3.5. SEM Analizleri **36**

3.6. Yoğunluk Tayini **38**

4. DENEYSEL BULGULAR **39**

4.1. Giriş **39**

4.2. XRD Analizleri **39**

4.3. Optik Fotoğraf Analizleri **60**

4.4. SEM Analizleri **68**

4.5. Yoğunluk Analizi **76**

5. SONUÇ VE TARTIŞMA **81**

6. KAYNAKLAR **86**

ŞEKİLLER DİZİNİ

Şekil 1.1	Normal metal ve süperiletkenin düşük sıcaklıklarda davranışı…….....	1
Şekil 1.2	a) $T > T_c$ sıcaklığında; b) $T << T_c$ sıcaklığında dış magnetik alan ve magnetizasyon……..	5
Şekil 1.3	Meissner etkisi ile havada asılı kalan daimi bir mıknatıs…….	6
Şekil 1.4	Kritik magnetik alanın sıcaklığa bağlı değişimi……...	6
Şekil 1.5	Bazı süperiletkenlerde kritik magnetik alanın sıcaklığa bağlı değişimi…….....	7
Şekil 1.6	a) I. ve b) II. tip süperiletkenlerde magnetizasyonun uygulanan magnetik alana bağlı değişimi…….	8
Şekil 1.7	İki adet Bi-2223 şeritlerinde 77 *K*'de DC akım uygulandığında elde edilen *I-V* karakteristikleri……...	10
Şekil 1.8	Magnetik akının süperiletken metal içine nüfuzu……	11
Şekil 1.9	Nüfuz derinliğinin sıcaklığa bağlı değişimi…….	12
Şekil 2.1	Ortorombik yapıdaki $YBa_2Cu_3O_7$'nin birim hücresi……	18
Şekil 2.2	Cu(2) düzleminde yer değiştiren iki değerlikli bir geçiş metal iyonu yakınındaki iyonların yer değiştirmesi……	20
Şekil 2.3	Bakır oksit süperiletkenlerinde yüksek basınçta sentezde kullanılan temel sistem……..	21
Şekil 3.1	C5 kontrol üniteli N 11/R Nabertherm marka kül fırını ve kontrol paneli……	30

Şekil 3.2	Kalsinasyon işleminde sıcaklık zaman grafiği…….	31
Şekil 3.3	Crystal Lab marka pres ve 9 *mm* çaplı KBr die seti…….	32
Şekil 3.4	CARBOLITE-201 modeli ve Eurotherm-2132 modelli kontrol paneli……	33
Şekil 3.5	Sinterleme işleminde sıcaklık zaman grafiği……...	34
Şekil 3.6	Rigaku D/Max-IIIC marka x-ışını difraktometresi……..	35
Şekil 3.7	Nikon ECLIPSE ME600 Polarize Optik Mikroskop……...	36
Şekil 3.8	Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM)……	37
Şekil 4.1	15 *MPa* basınç altındaki saf YBCO'ya ait x-ışını kırınım deseni……	40
Şekil 4.2	30 *MPa* basınç altındaki saf YBCO'ya ait x-ışını kırınım deseni……	41
Şekil 4.3	45 *MPa* basınç altındaki saf YBCO'ya ait x-ışını kırınım deseni……	41
Şekil 4.4	15, 30 ve 45 *MPa* basınç altındaki saf YBCO'ya ait x-ışını kırınım desenleri……...	42
Şekil 4.5	A1, A2 ve A3 numunelerine ait x-ışını kırınım desenleri……	43
Şekil 4.6	A1, A2 ve A3 numunelerine ait x-ışını kırınım desenlerinin üç boyutlu gösterimi……..	44
Şekil 4.7	B1, B2 ve B3 numunelerine ait x-ışını kırınım desenleri…….	45
Şekil 4.8	B1, B2 ve B3 numunelerine ait x-ışını kırınım desenlerinin üç boyutlu gösterimi……..	46

Şekil 4.9 C1, C2 ve C3 numunelerine ait x-ışını kırınım desenleri……. 47

Şekil 4.10 C1, C2 ve C3 numunelerine ait x-ışını kırınım desenlerinin üç boyutlu gösterimi…….. 48

Şekil 4.11 A1, B1 ve C1 numunelerine ait x-ışını kırınım desenleri…… 49

Şekil 4.12 A2, B2 ve C2 numunelerine ait x-ışını kırınım desenleri…… 50

Şekil 4.13 A3, B3 ve C3 numunelerine ait x-ışını kırınım desenleri…… 51

Şekil 4.14 Saf YBCO'ya ait *a, b, c* ve *V* değerlerinin basınca bağlı değişimi…… 53

Şekil 4.15 A Serisine ait numunelerin *a, b, c* ve *V* değerlerinin basınca bağlı değişimi……... 54

Şekil 4.16 B Serisine ait numunelerin *a, b, c* ve *V* değerlerinin basınca bağlı değişimi…….. 55

Şekil 4.17 C Serisine ait numunelerin *a, b, c* ve *V* değerlerinin basınca bağlı değişimi……... 56

Şekil 4.18 15 *MPa* altında *a, b, c* ve *V* değerlerinin katkı miktarı *x*'e bağlı değişimi……... 57

Şekil 4.19 30 *MPa* altında *a, b, c* ve *V* değerlerinin katkı miktarı *x*'e bağlı değişimi……... 58

Şekil 4.20 45 *MPa* altında *a, b, c* ve *V* değerlerinin katkı miktarı *x*'e bağlı değişimi……... 59

Şekil 4.21 15 *MPa* altındaki saf YBCO'nun polarize optik mikroskopla çekilmiş fotoğrafı…….. 62

Şekil 4.22 30 *MPa* altındaki saf YBCO'nun polarize optik mikroskopla çekilmiş fotoğrafı…….. 62

Şekil 4.23 45 *MPa* altındaki saf YBCO'nun polarize optik mikroskopla çekilmiş fotoğrafı…….. 63

Şekil 4.24 A1 numunesinin polarize optik mikroskopla çekilmiş fotoğrafı…… 63

Şekil 4.25 A2 numunesinin polarize optik mikroskopla çekilmiş fotoğrafı…… 64

Şekil 4.26 A3 numunesinin polarize optik mikroskopla çekilmiş fotoğrafı…… 64

Şekil 4.27 B1 numunesinin polarize optik mikroskopla çekilmiş fotoğrafı…… 65

Şekil 4.28 B2 numunesinin polarize optik mikroskopla çekilmiş fotoğrafı……... 65

Şekil 4.29 B3 numunesinin polarize optik mikroskopla çekilmiş fotoğrafı…… 66

Şekil 4.30 C1 numunesinin polarize optik mikroskopla çekilmiş fotoğrafı…… 66

Şekil 4.31 C2 numunesinin polarize optik mikroskopla çekilmiş fotoğrafı…… 67

Şekil 4.32 C3 numunesinin polarize optik mikroskopla çekilmiş fotoğrafı…… 67

Şekil 4.33 15 *MPa* altındaki saf YBCO'nun SEM görüntüsü……... 70

Şekil 4.34 30 *MPa* altındaki saf YBCO'nun SEM görüntüsü……... 70

Şekil 4.35 45 *MPa* altındaki saf YBCO'nun SEM görüntüsü……... 71

Şekil 4.36 A1 numunesinin SEM görüntüsü……. 71

Şekil 4.37 A2 numunesinin SEM görüntüsü……. 72

Şekil 4.38 A3 numunesinin SEM görüntüsü……. 72

Şekil 4.39 B1 numunesinin SEM görüntüsü……. 73

Şekil 4.40 B2 numunesinin SEM görüntüsü……. 73

Şekil 4.41 B3 numunesinin SEM görüntüsü……. 74

Şekil 4.42 C1 numunesinin SEM görüntüsü……. 74

Şekil 4.43 C2 numunesinin SEM görüntüsü……. 75

Şekil 4.44 C3 numunesinin SEM görüntüsü……. 75

Şekil 4.45 15 *MPa* basınçta numunelerin yoğunluklarının katkı miktarına (x) bağlı değişimi…….. 77

Şekil 4.46 30 *MPa* basınçta numunelerin yoğunluklarının katkı miktarına (x) bağlı değişimi…….. 78

Şekil 4.47 45 *MPa* basınçta numunelerin yoğunluklarının katkı miktarına (x) bağlı değişimi…….. 78

Şekil 4.48 Saf YBCO'da yoğunluğun basınca bağlı değişimi…….. 79

Şekil 4.49 A serisine ait numunelerin yoğunluklarının basınca bağlı değişimi…… 79

Şekil 4.50 B serisine ait numunelerin yoğunluklarının basınca bağlı değişimi…… 80

Şekil 4.51 C serisine ait numunelerin yoğunluklarının basınca bağlı değişimi…… 80

ÇİZELGELER DİZİNİ

Tablo 1.1	Bazı I. tip ve II. tip süperiletkenlerin kritik sıcaklıkları ve T = 0 K'de ölçülen kritik magnetik alanları…….	9
Tablo 1.2	Mutlak sıfırda bazı metaller için özgün eşuyum uzunlukları ve London nüfuz derinlikleri…….	13
Tablo 2.1	Yüksek sıcaklık süperiletkenleri ve kritik sıcaklıkları…….	14
Tablo 3.1	Bileşiklerin saflık dereceleri ve molekül ağırlıkları…….	29
Tablo 3.2	x = 0.1, 0.2 ve 0.3 katkı miktarları için hesaplanan malzeme miktarları……...	30
Tablo 3.3	Seri numunelerin basınç ve katkı miktarları…….	32
Tablo 4.1	Numunelerin *a, b, c* ve *V* değerleri……...	52
Tablo 4.2	Numunelerin yoğunlukları (*d*)……..	77

BAZI KISALTMALAR VE SEMBOLLER

a, b, c	: Örgü parametreleri
A^o	: Angstrom (10^{-10} m)
$\vec{B}$	: Magnetik indüksiyon
BCS	: Bardeen-Cooper-Schrieffer
d	: Yoğunluk
DC	: Doğru akım
DTA	: Diferansiyel termal analiz
E	: Elektrik alan
E_g	: Aralık enerjisi
GL	: Ginzburg-Landau
GLAG	: Ginzburg-Landau-Abrikosov-Gorkov
h, k, l	: Miller indisleri
$\vec{H}$	: Dış magnetik alan
H_c	: I. Tip süperiletkenlerde kritik magnetik alan
H_{c1}	: II. Tip süperiletkenlerde alt kritik magnetik alan
H_{c2}	: II. Tip süperiletkenlerde üst kritik magnetik alan
HTS	: Yüksek sıcaklık süperiletkenleri
$\hbar$	: Dirac sabiti
IBS	: İyon demeti yoluyla püskürtme

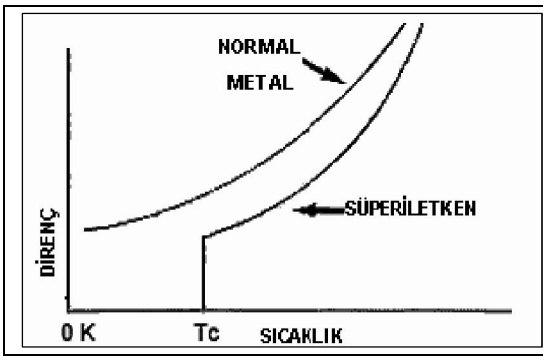
I	: Akım şiddeti
I_c	: Kritik akım şiddeti
J_c	: Kritik akım yoğunluğu
K	: Kelvin
k	: Boltzmann sabiti
LAO	: $LaAlO_3$
M	: Magnetizasyon
MOD	: Metal organik çökeltme
m	: Kütle
PLD	: Atımlı lazerle çökeltme
q	: Yük
RE	: Nadir toprak elementleri (Lantanit)
S	: Kesit alanı
SEM	: Scanning Electron Microscobe (Taramalı Elektron Mikroskobu)
T	: Sıcaklık
T_c	: Kritik sıcaklık
TGA	: Termal gravimetrik analiz
v_F	: Fermi yüzeyinde elektronun hızı
x	: Katkı miktarı
XRD	: X-Ray Diffraction (X-Işınları Kırınımı)
δ	: Oksijen eksikliği

μ	: Mikro (10^{-6})
ρ	: Özdirenç
χ	: Magnetik alınganlık
λ	: Nüfuz derinliği
λ_L	: London nüfuz derinliği
ψ	: Dalga fonksiyonu
ξ_0	: Özgün eşuyum uzunluğu
ξ	: Eşuyum uzunluğu
Ω	: Ohm (Direnç birimi)

1. GİRİŞ

Düşük sıcaklık fiziğinin tarihi, 1908 yılında Hollandalı fizikçi Heike Kamerling Onnes'in kaynama sıcaklığı 4.2 K (-268.8 ^{o}C) olan helyumu sıvılaştırması ile başlamıştır.

Süperiletkenlik, 1911'de civanın elektriksel direncinin sıcaklığa bağlılığı incelenirken H. Kamerlingh Onnes tarafından keşfedildi. 4 K civarındaki bir sıcaklıkta civa örneğinin direncinin aniden sıfıra düştüğü ve bu sıcaklık değerinin altındaki ulaşılabilir sıcaklıklarda da ölçülemeyen bir direncin olduğu keşfedildi. Yani, sıcaklık azaldığında direnç kademeli olarak azalacağı yerde aniden sıfır değerine düşmüştü. Numune, alışılmışın dışında, sıfır elektriksel direnç tarafından karakterize edilen bir durumda idi. Bu durum "***süperiletkenlik***" olarak isimlendirildi. Günümüzde, duyarlılığı artırılmış modern araçlar ile bir süperiletkenin direncinin sıfır kabul edilebilecek kadar küçük olan 10^{-24} Ωcm mertebesinde olduğu tespit edilmiştir **[1-6].**



Şekil 1.1 Normal metal ve süperiletkenin düşük sıcaklıklarda davranışı

1.1. Süperiletkenliğin Tarihsel Gelişimi

Civadaki süperiletkenliğin keşfinden sonra, benzer özellik Kalay (Sn), Kurşun (Pb), İndium (In), Alüminyum (Al), Niobium (Nb) gibi bazı metallerde ve pek çok alaşım ile metal karışımlarında da gözlenmiştir **[1].**

1950'lerin ortalarına kadar, süperiletkenlik bir muamma olma özelliğini korudu. Pek çok bilimadamı süperiletkenliğin mekanizmasını anlamaya çalışıyordu. 1934'te, Meissner etkisinin keşfinden hemen sonra, Fritz ve Heinz London kardeşler London denklemleri olarak bilinen elektrodinamik denklemleri geliştirdiler. Bu denklemler Maxwell denklemlerinden faydalanarak Meissner etkisini tanımlıyordu. Bu süperiletkenliğe ilk yarı-klasik yaklaşımdı **[7-8]**. Süperiletkenliği açıklamada kuantum teorisini dikkate alan ilk teori Ginzburg-Landau (GL) teorisidir **[1, 7-9].** Bu model ile I. tip ve II. tip süperiletkenler tanımlanmıştır **[1].**

Süperiletkenliği açıklamaya yönelik oluşturulan teorilerden en kapsamlı olan teori 1957'de Amerikalı fizikçiler John Bardeen, Leon Cooper ve John Schrieffer tarafından geliştirildi. Daha sonraları BCS Teorisi olarak bilinmeye başladı**.** BCS teorisi, elementler ve basit alaşımlar için mutlak sıfıra yakın sıcaklıklarda süperiletkenliği açıklayabiliyordu. Ancak, daha sonraları farklı süperiletken sistemlerde yüksek sıcaklıklarda süperiletkenliğin nasıl oluştuğunu tam olarak açıklamakta yetersiz kaldı. Cooper, Fermi yüzeyinin hemen üzerinde, Fermi yüzeyi kenarından saçılan iki elektron arasında çekici bir etkileşme olabileceğini gösterdi. Bu elektron çiftine Cooper çifti denilmektedir. Cooper çiftleri süperiletkenliği açıklamakta önemli bir adım olmuştur **[1, 4, 7, 10].**

L.P. Gorkov (1958) tarafından Green Fonksiyonları kullanılarak BCS modelinin problemleri çözülerek yeniden düzenlendi. Gorkov'un çalışmaları Ginzburg-Landau-Abrikosov-Gorkov tarafından tamamlandı (GLAG teorisi) **[1, 11-14].**

1962'de Brian D. Josephson'un iki süperiletken malzeme arasında elektrik akımın oluşacağını ileri sürmesi bir başka önemli teorik gelişme oldu. Bu tünelleme olayı, günümüzde Josephson etkisi olarak bilinir ve en zayıf manyetik alanları bile dedekte edebilen SQUID gibi elektronik aletlere uygulanabilmiştir **[1, 11, 15].**

1987'de J. Bednorz ve K.A. Müller ilk yüksek sıcaklık süperiletkeni keşfettiler. (LaBaCuO, T_c~40 K). Alex Müller ve George Bednorz, IBM Araştırma Laboratuarında, 35 K'de süperiletken olan Lantan, Baryum, Bakır ve Oksijenden ilk seramik perovskite yapmayı başardılar **[1, 7, 9, 11-13]**. Araştırmacılar normalde yalıtkan olan bu maddeleri süperiletken olarak düşünmemişlerdi. 1987'de, Lantan yerine itriyum kullanan Müller ve Bednorz 92 K'de süperiletken olan seramik geliştirmeyi başardılar. 1987'de, Chu ve arkadaşları 94 K geçiş sıcaklığına sahip olan ve Y-Ba-Cu-O sistemini temel alan süperiletken bileşiği sentezlemeyi başardılar **[1, 4, 7, 12-13]**. Daha sonra geçiş sıcaklığında meydana gelen en büyük sıçrama 1988'de, 110 K ve 125 K geçiş sıcaklığına sahip olan BiSrCaCuO ve Tl-Ca-Ba-Cu-O süperiletkenlerinde bulundu.

Bakır oksitlerde süperiletkenlik araştırmalarına odaklandıktan 20 yıl sonra ilgi magnezyum diborid ve temel elementler gibi daha basit materyallere doğru yön değiştirdi. Son zamanlarda basit materyallerin, şaşırtıcı bir şekilde yüksek kritik sıcaklıkta (MgB_2 için 40 K) süperiletken olduğu rapor edilmiştir. Son bir kaç yıl boyunca fizikçiler birçok yeni elementte gözlenen süperiletkenlik ile sevinmişlerdir. Basınç altında süperiletken özellik gösteren sülfür 17 K, oksijen 0.5 K, nanotüp içindeki karbon (karbon nanotüp) 15 K, elmas formu 4 K, demirin magnetik olmayan durumu 1 K, lityum 20 K, bor 11 K 'lik kritik sıcaklığa sahiptir **[4].**

1.2. Süperiletkenlerin Özellikleri

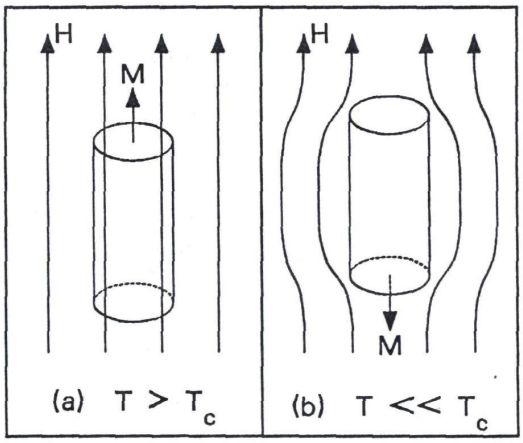
1.2.1. Geçiş sıcaklığı (Kritik sıcaklık)

Bir iletkende akım, metal içinde serbestçe hareket eden iletim elektronları tarafından taşınır. İletken malzemelerden bir elektrik akımı geçirildiğinde, iletim elektronları kristal örgü ile elastik olmayan çarpışmalar yaparlar ki bu da enerjilerinin bir kısmını ısı enerjisi olarak harcamalarına yol açar. Bu etkiye malzemenin elektriksel direnci denir. Süperiletkenlik, bazı metallerin oldukça düşük

sıcaklıklardaki elektriksel ve magnetik özelliklerinin sıra dışı haline verilen addır. Bir süperiletkenin sıcaklığı belli bir sıcaklık değerinin altına düşürüldüğünde, elektrik yük akışına karşı tüm elektriksel direncini kaybeder. Normal durumdan süperiletken duruma geçiş sıcaklığı "***kritik sıcaklık***" olarak isimlendirilir ve T_c ile gösterilir. Kritik sıcaklık olarak isimlendirilen sıcaklığın (T_c) altında bazı metal ve alaşımların dirençleri tamamen ortadan kaybolur. Bu da sürekli akımlara yol açar. Süperiletken malzemede; bir kere başlatılan akım, herhangi bir voltaj uygulanmasına gerek kalmadan geçmeye devam eder. Bu durum Ohm Kanununun bir sonucudur. Bazen aşırı akım olarak da adlandırılan sürekli akımların, herhangi bir kayba uğramadan birkaç yıl sürdüğü gözlenmiştir. 1956 yılında Büyük Britanya'da S.S Collins tarafından yapılan bir deneyde, bir süperiletken halkadaki akım 2.5 yıl sürdürülebilmiştir.

1.2.2. Meissner etkisi

1933 yılında Meissner ve Ochsenfeld; zayıf bir magnetik alanda bir metal süperiletken olduğunda, madde içinde her noktada $\vec{B} = 0$ olacak şekilde magnetik alanın dışarılandığını keşfettiler. Bu etki, uzun silindir biçimindeki bir madde için şekil 1.2'de gösterilmiştir. Sıcaklık T_c'den büyük iken, magnetik alan şekil 1.2 a)'da görüldüğü gibi silindire nüfuz etmektedir. Bununla beraber, sıcaklık T_c'nin altına düşürüldüğünde, alan çizgileri şekil 1.2 b)'deki gibi süperiletkenden uzaklaştırılmaktadır. Bu durumda 1. tip süperiletken, $\rho = 0$'a karşılık gelen mükemmel bir iletken olmanın ötesinde, numune içerisinde $\vec{B} = 0$ olan mükemmel bir diamagnetik maddedir. Magnetik alanın süperiletkenden dışarılanması durumu ***Meissner Etkisi*** olarak bilinmektedir.



Şekil 1.2. a) $T > T_c$ sıcaklığında; b) $T << T_c$ sıcaklığında dış magnetik alan ve magnetizasyon

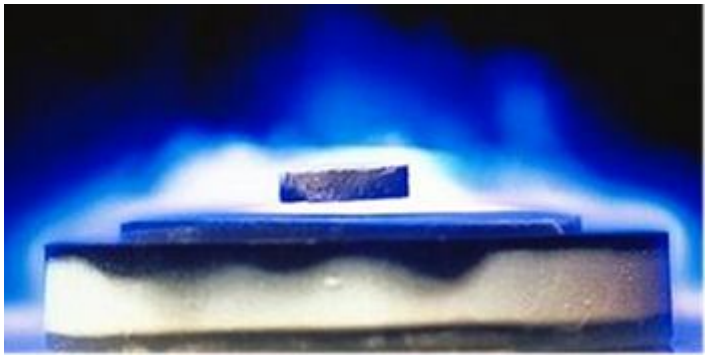
Magnetizasyon ile ilgili denklemler göz önüne alınacak olursa bu etki kolaylıkla açıklanabilir.

$$\vec{B} = \mu_0(\vec{H} + \vec{M}) \tag{1.1}$$

Burada $\vec{M}$ magnetizasyonu, $\vec{B}$ magnetik indüksiyonu ve $\vec{H}$ de dış magnetik alanı göstermektedir. Eğer $\vec{H}$ dış magnetik alanı küçük bir değere sahipse, malzeme mıknatıslanır (magnetize olur). Sıcaklık T_c değerine ulaştığı zaman

$$\chi(T) = \frac{\vec{M}}{\vec{H}} = -1 \tag{1.2}$$

olarak tanımlanan magnetik alınganlık değerini elde edebilmek için $\vec{B}$, örneğin iç kısımlarından dışarıya atılır. Bunun anlamı süperiletken materyal $T < T_c$ durumunda mükemmel bir diamagnetik davranış göstermektedir. Bu yüzden T_c değerinin altında süperiletken materyalin elektriksel direnci sıfırdır ve mükemmel bir diamagnettir.



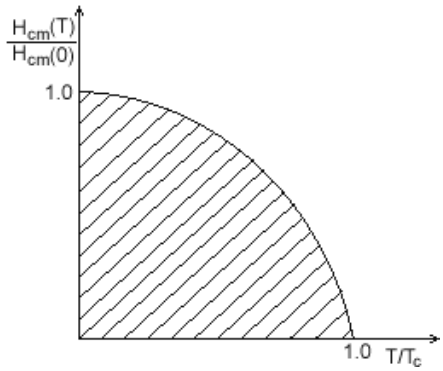
Şekil 1.3. Meissner etkisi ile havada asılı kalan daimi bir mıknatıs

1.2.3. Kritik magnetik alan

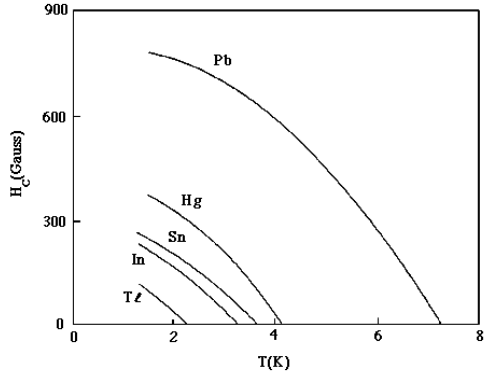
$T < T_c$ durumunda herhangi bir sıcaklık değerinde $\vec{H}_c(T)$ ile gösterilen belirli bir minimum magnetik alan vardır. Bu alana ***kritik magnetik alan*** denir ve bu alan değerinin üzerindeki alanlarda süperiletkenlik kaybolur. Sıcaklığın bir fonksiyonu olarak kritik magnetik alan;

$$H_c(T) = H_c(0)[1-(T/Tc)^2] \quad (1.3)$$

denklemiyle ifade edilir. Kritik magnetik alanın sıcaklığa bağlı değişimi şekil 1.4 ve şekil 1.5'te gösterilmektedir.



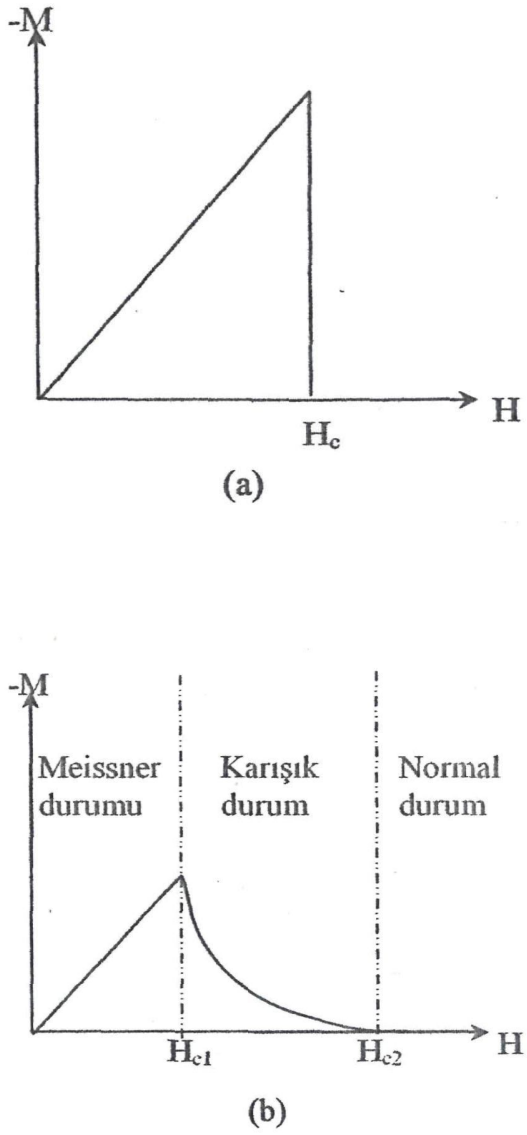
Şekil 1.4. Kritik magnetik alanın sıcaklığa bağlı değişimi



Şekil 1.5. Bazı süperiletkenlerde kritik magnetik alanın sıcaklığa bağlı değişimi

Süperiletkenler, genelde magnetik alandaki davranışlarına göre iki gruba ayrılırlar. Pb ve Sn gibi bazı elementler, I. tip süperiletken grubuna girerken, Nb-Ti ve Nb_3Sn gibi alaşımlar ise II. tip süperiletken grubuna girmektedir. $\vec{H}$ magnetik alanında bulunan süperiletkenin kritik sıcaklığı, magnetik alan şiddeti arttıkça azalmaktadır. I. tip süperiletkenler, kritik magnetik alan şiddetinden daha düşük magnetik alanlarda ideal diamagnetizm özelliği gösterirler. Kritik magnetik alandan daha yüksek magnetik alanlarda ise keskin bir şekilde normal duruma geçiş yaparlar (Şekil 1.6 a).

II. tip süperiletkenler ise düşük kritik alan $\vec{H}_{c1}$ değerine kadar ideal diamagnetizm özelliği gösterirler. $\vec{H}_{c1}$'den büyük magnetik alanlarda ise, magnetik akı çizgilerinin numune içine kısmen girmeye başlaması, karışık durumun ortaya çıkmasına neden olur. Bu durumda ise akı dışarılanması vardır (Şekil 1.6 b). Eğer uygulanan magnetik alan $\vec{H}_{c1}$ alt kritik alandan küçükse madde tam olarak süperiletkendir ve I. tip süperiletkenlerde olduğu gibi hiçbir akı maddeye nüfuz edememektedir. Uygulanan magnetik alan, $\vec{H}_{c2}$ üst kritik alanı aştığında, akı numunenin tamamına nüfuz etmekte ve süperiletken hal ortadan kalkmaktadır. Fakat $\vec{H}_{c1}$ ve $\vec{H}_{c2}$ arasındaki alanlar için madde 'Girdaplı hal' (Vorteks hali) olarak bilinen karışık halde bulunmaktadır. Karışık halde madde sıfır direncine sahip olabilmekte ve akı kısmen nüfuz edebilmektedir. Karışık durumda akı çizgileri süperiletken içerisine hekzagonal bir akı örgüsü oluşturacak şekilde girmektedirler. Uygulanan magnetik alan şiddeti üst kritik alana ulaştığında, madde normal hale geçmektedir.



Şekil 1.6. a) I. ve b) II. tip süperiletkenlerde magnetizasyonun uygulanan magnetik alana bağlı değişimi

I. tip ve II. tip süperiletkenler olarak bilinen bazı elementler için kritik sıcaklık ve üst kritik alan değerleri tablo 1.1'de verilmiştir.

Tablo 1.1. Bazı I. tip ve II. tip süperiletkenlerin kritik sıcaklıkları ve $T = 0\ K$'de ölçülen kritik magnetik alanları

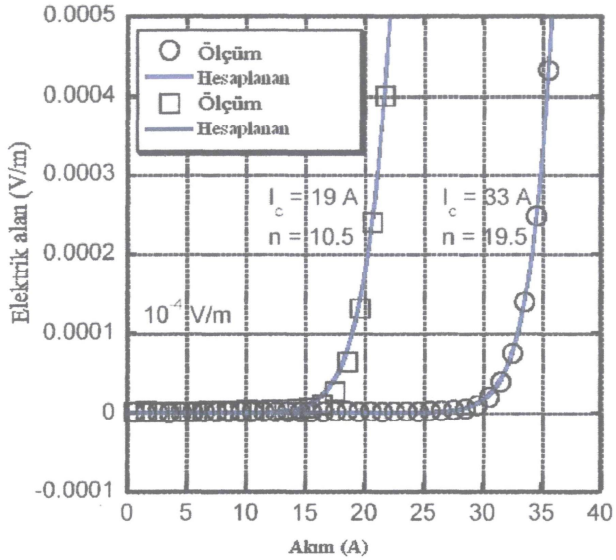
I. Tip Süperiletken	$T_c(K)$	$H_c(0)$ $(Tesla)$	**II. Tip Süperiletken**	$T_c(K)$	$H_{c2}(0)$ $(Tesla)$
Al	1.196	0.0105	Nb_3Al	18.7	32.4
Ga	1.083	0.0058	Nb_3Sn	18.0	24.5
Hg	4.153	0.041	Nb_3Ge	23	38
In	3.408	0.0281	NbN	15.7	15.3
Nb	9.26	0.1991	NbTi	9.3	15
Pb	7.193	0.0803	$Nb_3(AlGe)$	21	44
Sn	3.722	0.0305	V_3Si	16.9	23.5
Ta	4.47	0.0829	V_3Ga	14.8	20.8
Ti	0.39	0.010	PbMoS	14.4	60
V	5.30	0.1023			
W	0.015	0.000115			
Zn	0.85	0.0054			

1.2.4. Kritik akım yoğunluğu

Yüksek sıcaklık ve düşük sıcaklık süperiletkenlerinin karakterizasyonu için basit olması nedeniyle kuvvet serisi voltaj akım bağıntısı kullanılmaktadır. Kuvvet serisi modelinde elektrik alan E,

$$E=E_c(I/I_c)^n \tag{1.4}$$

eşitliği ile verilir. Buradaki E_c voltaj kriterini, I_c kritik akımı ve n değeri de I-V eğrisinin eğimini göstermektedir. 77 K'de DC akım uygulayarak elde edilen ölçümlerden iki adet Bi-2223 şeritlerinin I-V karakteristikleri şekil 1.7'de gösterilmektedir.



Şekil 1.7. İki adet Bi-2223 şeritlerinde 77 *K*'de DC akım uygulandığında elde edilen *I-V* karakteristikleri

Kritik akım yoğunluğu J_c,

$$J_c = I_c / S \tag{1.5}$$

eşitliği ile hesaplanır. Buradaki *S*, süperiletkenin kesit alanını göstermektedir.

Kritik akım yoğunluğu (J_c), süperiletkenin direnç göstermeksizin taşıyabildiği maksimum akım yoğunluğu olarak tanımlanır. Bir süperiletkende kritik akım yoğunluğunu belirleyen öğelerden biri, Cooper çiftlerinin bozulmasıdır. Bu durumda, bozulan çiftlerin yoğunluklarına bağlı olarak, numunede kısmen normal iletken davranış gözlenir. II. tip süperiletkenlerde bu çiftlerin bozulmasının yanında, girdapların hareketi de kritik akım yoğunluğuna etki eder. Süperiletken numune, yapısal olarak taneler ile taneler arası zayıf bağlar veya taneler arası yalıtkan fazdan oluşabilir. Bu durumda taneler arasında meydana gelebilecek girdapların sınırlı hareketleri de akım yoğunluğunu kısıtlar.

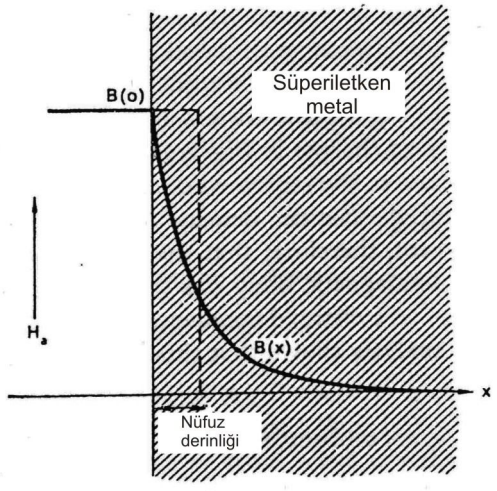
$YBa_2Cu_3O_7$ süperiletkenlerin monokristallerinde büyük bir akım yoğunluğu ve yüksek kritik magnetik alan değeri gözlenmiştir. Sıcaklığın 4 *K* olduğu anda tane içi kritik akım yoğunluğu 106 A/cm^2 olarak ölçülmüştür. Polikristal numunelerde ise kritik akım yoğunluğunun, sıcaklığın 77 *K* olduğu anda 200 ile 300 A/cm^2 arasında değiştiği gözlenmiştir **[5].**

1.2.5. Nüfuz derinliği (Penetration depth)

Süperiletken numuneye magnetik alan uygulandığında alt kritik magnetik alandan küçük alanlarda süperiletken içinde $\vec{B}$ magnetik akı yoğunluğu sıfırdır. Fakat süperiletken sınırında *B(0)* magnetik akı yoğunluğu sıfır olmayıp zamanla eksponansiyel olarak azalmaktadır (Şekil 1.8). İçinde akımların dolaştığı bu mesafeye '***nüfuz derinliği***' denilmektedir. Metal sınırındaki akı yoğunluğunun *x* mesafesinde *B(x)* değerine düştüğü nüfuz derinliği;

$$B(x) = B(0)e^{-x/\lambda} \qquad (1.6)$$

eşitliği ile gösterilir. Burada *B(0)*, metal yüzeyindeki akı yoğunluğunu göstermektedir.



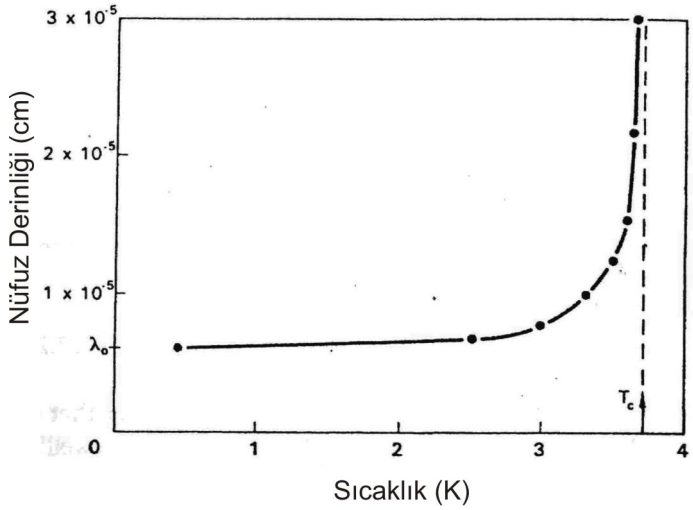
Şekil 1.8. Magnetik akının süperiletken metal içine nüfuzu

Nüfuz derinliği çok küçüktür ($YBa_2Cu_3O_7$ süperiletkeninde magnetik alan *a-b* düzlemine paralel uygulandığında ~1400 A^o **[4]**). Bu sebeple magnetik akının nüfuz etmesi ince film, toz veya seramiklerde belirgin hale gelir. Film kalınlığı λ mertebesinde veya ondan küçük ise, uygulanan alan numunenin tamamına kolaylıkla

nüfuz eder ve akı dışarılanması tam olamaz. Nüfuz derinliği, düşük sıcaklıklarda sıcaklıktan yaklaşık olarak bağımsızken geçiş sıcaklığına ulaşıldığında hızla artar ve sonsuza gider (Şekil 1.9). Nüfuz derinliğinin sıcaklıkla değişimi

$$\lambda = \frac{\lambda_0}{(1-t^4)} \tag{1.7}$$

eşitliği ile verilmektedir. Buradaki t, kritik sıcaklığa bağlı olup $t = T / T_c$'dir.



Şekil 1.9. Nüfuz derinliğinin sıcaklığa bağlı değişimi

Süperiletken metalde nüfuz derinliği saflığa da bağlı olup metaldeki yabancı madde miktarının artması ile artar **[16].**

1.2.6. Eşuyum uzunluğu (Coherence lenght)

Bir süperiletkenin temiz ve düz yüzeyi ince bir metal ile kaplanırsa süperiletken yüzeyin yakın bölgelerinde elektron yoğunluğu değişir. Eşuyum uzunluğu süperiletken içinde konuma bağlı bir magnetik alan olduğunda elektron yoğunluğunun yaklaşık olarak sabit kaldığı uzunluktur. Eşuyum uzunluğu ayrıca,

uzayda normal ve süperiletken bölgeler arasındaki geçiş tabakasının minimum genişliğinin de bir ölçüsüdür.

Elektron sisteminin uzay durumundaki her değişiklik fazladan bir kinetik enerji gerektirir. Bir özfonksiyonun modüle edilmesi kinetik enerjiyi büyütür.

$\Psi(x)=e^{ikx}$ düzlem dalgası alınırsa dalgayı modüle etmek için gerekli enerji artışı $\hbar^2 kq / 2m$ olur. Bu enerji E_g aralık enerjisinden daha büyük olursa süperiletken durum yok olacaktır. O halde, modüle eden dalga vektörünün q_o kritik değeri yazılabilir:

$$\frac{\hbar^2}{2m} k_F q_0 = E_g \tag{1.8}$$

Kritik modülasyonu belirleyen **özgün eşuyum uzunluğu** $\xi_0 = 1 / q_0$ olarak tanımlanır. Buna göre

$$\xi_0 = \hbar^2 k_F / 2mE_g = \hbar \upsilon_F / 2E_g \tag{1.9}$$

olup v_F Fermi yüzeyinde elektron hızıdır. Benzer bir sonuç BCS teorisinden elde edilir:

$$\xi_0 = 2\hbar \upsilon_F / \pi E_g \tag{1.10}$$

Denklem 1.10'dan hesaplanan ξ_0 değerleri tablo 1.2 de verilmiştir. Özgün eşuyum uzunluğu ξ_0,, saf süperiletken durumun karakteristik bir özelliğidir.

Tablo 1.2. Mutlak sıfırda bazı metaller için özgün eşuyum uzunlukları ve London nüfuz derinlikleri

Metal	Özgün eşuyum uzunluğu ξ_0 $(10^{-6}\ cm)$	London nüfuz derinliği λ_L $(10^{-6}\ cm)$	λ_L / ξ_0
Sn	23	3.4	0.16
Al	160	1.6	0.010
Pb	8.3	3.7	0.45
Cd	76	11.0	0.14
Nb	3.8	3.9	1.02

Eşuyum uzunluğu ilk kez Landau-Ginzburg denklemlerinde ortaya çıkmıştır; bu denklemler BCS teorisinden de elde edilebilirler. Bu denklemler temas halindeki normal ve süperiletken fazlar arasındaki geçiş tabakasının fiziğini tayin ederler **[17].**

2. YÜKSEK SICAKLIK OKSİT SÜPERİLETKENLERİ

2.1. Giriş

1986 yılı, süperiletkenlik dünyasında bir dönüm noktası olmuştur. IBM Araştırma Laboratuvarındaki araştırmacılardan Alex Müller ve Georg Bednorz, o zamana kadar bilinen en yüksek sıcaklık olan 30 *K*'de kırılgan bir süperiletken seramik oluşturdular. Müller ve Bednorz'un sentezlediği, La-Ba-Cu-O bileşiği; yüksek sıcaklık süperiletkenlik (HTSC) dönemini başlattı. 1987'nin ocak ayında, C.W. Chu ve M.K. Wu başkanlığındaki bir grup araştırmacı, Müller ve Bednorz'un geliştirdiği yapıdaki lantanyum yerine itriyum katarak 93 *K*'lik kritik sıcaklığa ulaşmayı başardılar. Böylece ilk kez, bir malzemede ($YBa_2Cu_3O_7$) oldukça yaygın bir soğutucu olan sıvı azottan (77 *K*) daha yüksek sıcaklıklarda süperiletkenlik elde edildi ve helyumla çalışan soğutucular yerine daha ucuz olan azotla çalışan soğutucuları kullanmak mümkün hale geldi. Bednorz ve Müller'in $La_{2-x}Ba_xCuO$ yüksek sıcaklık oksit süperiletkenini keşfinden sonra bir takım oksit aileleri sentezlenmiştir (Tablo 2.1) **[1, 7-15].**

Tablo 2.1. Yüksek sıcaklık süperiletkenleri ve kritik sıcaklıkları

Bileşik	**Kritik Sıcaklık (*K*)**	**Bileşik**	**Kritik Sıcaklık (*K*)**
$La_{2-x}Sr_xCuO_4$	30-40	$Tl_2Ba_2CuO_6$	90
$La_{2-x}Ba_xCuO_4$	30-40	$Tl_2Ba_2CaCuO_6$	110
		$Tl_2Ba_2Ca_2Cu_3O_{10}$	125
$YBa_2Cu_3O_7$	94		
$YBa_2Cu_4O_8$	80	$HgBa_2CuO_y$	94
$Y_2Ba_4Cu_7O_{15}$	90–92	$HgBa_2CaCu_2O_y$	127
		$HgBa_2Ca_2Cu_3O_y$	134
$Bi_2Sr_2CuO_6$	12	$HgBa_2Ca_3Cu_4O_y$	126
$Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$	90	$HgBa_2Ca_4Cu_5O_y$	112
$Bi_2Sr_2Ca_2Cu_3O_{10}$	110		

1993 yılına kadar yüksek sıcaklık süperiletkenlerinde ulaşılan rekor kritik sıcaklık $HgBa_2Ca_2Cu_3O_{8+x}$ için, düşük basınçta 133.5 *K* ve 30 *GPa* basınç altında 164 *K*'dir. 1993 yılından sonra en yüksek kritik sıcaklık 1995 yılında, 138 *K* ile (normal basınçta) $Hg_{0.8}Tl_{0.2}Ba_2Ca_2$-$Cu_3O_{8.33}$ bileşiği (seramiği) kullanılarak elde edildi. O zamandan beri daha yüksek bir geçiş sıcaklığına ulaşılamadı. Fakat T_c = 127 *K* ile $Ba_2Ca_{3-y}Cu_{3+y}O_x$, T_c = 40 *K* ile MgB_2, T_c = 89 *K* ile $CaCuO_2$ gibi yeni yüksek sıcaklık süperiletken bileşikler elde edilmiştir **[4]**.

2.1.1. Yüksek sıcaklık oksit süperiletkenlerinin yapısal özellikleri

Yüksek kritik sıcaklığa sahip malzemelerin birçoğu bakır oksit bileşikleridir. İncelenen değişik süperiletken bileşikler, perovskit olarak adlandırılan kristal yapı cinsinden sınıflandırılabilirler. İlk sınıf $BaPb_{1-x}Bi_xO_3$ kübik perovskitlerdir ($a = b = c$). Bu malzeme, ilk yüksek kritik sıcaklığa sahip malzemelerden birisi olup, geçiş sıcaklığı 10 *K*'dir. $KNiF_4$ yapısı olarak bilinen ikinci sınıf ise, tetragonal yapıya sahip ($a = b \neq c$) tek tabakalı perovskitlerdir. Buna bir örnek T_c~38 *K* olan $La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_4$'tür. Burada *a* ve *b* örgü sabitleri oksijen düzleminde ölçülmektedir ve *c* de bu düzleme diktir. Üçüncü sınıf ise ortorombik yapıya sahip ($a \neq b \neq c$) $YBa_2Cu_3O_7$ (T_c~92 *K*) gibi çok tabakalı perovskitlerdir. Bunlar bileşik metallerin bağıl oranlarından dolayı genellikle 1-2-3 malzemeleri olarak adlandırılmaktadırlar. Bu malzemelerin kristal yapıları; CuO_2 düzlemli ve eksik-oksijene sahip perovskit yapılar olarak tanımlanabilir. Daima güçlü bir anizotropiye sahiptirler. Etkin süperakımlar; Josephson çiftlenimi ile birbirlerine bağlanmış CuO_2 düzlemleri boyunca akar. Yüksek sıcaklık süperiletkenlerin $10^{21}/cc$'lik taşıyıcı yoğunluğu; elementel düşük sıcaklık süperiletkenlerinkinin yaklaşık iki katı kadardır. Eşuyum uzunluğu ise düşük sıcaklık süperiletkenlerine göre daha küçüktür ve düzlem doğrultusuna göre farklılık gösterir **[18].**

[Y-Ba-Cu-O], [Bi-Sr-Ca-Cu-O] ve [Tl-Ba-Ca-Cu-O] oksit süperiletken sistemleri pratik uygulamalar için oldukça çekicidir. Çünkü sıvı azot sıcaklığında süperiletken olabilmektedirler **[19].** Şu ana kadar, La-Ba-Cu-O, Y-Ba-Cu-O, Bi-Sr-

Ca-Cu-O, Tl-Ba-Ca-Cu-O ve Hg-Ba-Ca-Cu-O olmak üzere beş temel yüksek sıcaklık oksit süperiletkenleri keşfedildi ve çalışıldı **[20].**

YBCO ilk sentezlenen ve halen en yaygın olarak incelenen malzemelerden biridir. Her bir YBCO birim hücresi; itriyum atomlarının bir düzlemi ile ayrılmış ve iki BaO tabakası arasında kalmış iki CuO_2 düzlemi içerir. YBCO, Cu-O tabakalarındaki oksijen dağılımına ve miktarına bağlı olarak olası iki simetriye (tetragonal ya da ortorombik) sahiptir **[18].**

Bi-Sr-Ca-CuO ve Tl-Ba-Ca-CuO ailelerinin genel formülü $Bi_2Sr_2Ca_{n-1}Cu_nO_y$ ve $Tl_2Ba_2Ca_{n-1}Cu_nO_y$'dir. Burada n = 1, 2 ve 3 değerleri alabilmektedir. Bu bileşikler ortorombik yapıya sahip olup Cu-O zincirleri içermezler.

$HgBa_2Ca_{n-1}Cu_2O_y$ ailesinin yapısı, n adet CuO_2 ve (n-1) adet Ca tabakasının BaO/HgO/BaO kaya tuzu arasında sandviçlenmesi ile inşa edilir. Bu Hg bileşikleri yüksek kritik sıcaklığa sahiptir. Kritik sıcaklık, CuO_2 tabakasının (n sayısının) artması ile artar ve n > 3 için azalır. n = 1, 2, 3, 4 ve 5 bileşikleri için sırasıyla 94 *K*, 127 *K*, 135 *K*, 126 *K* ve 112 *K* kritik sıcaklıklar kaydedilmiştir **[20].**

2.2. YBCO'nun Genel Özellikleri

Diğer yüksek sıcaklık süperiletkenleri gibi; YBCO'da II. tip süperiletken sınıfına girer. Tüm II. tip süperiletkenlerde olduğu gibi bu yapıda da magnetik alanın dışlanması için bir enerji kullanımının gerekliliği yerine, magnetik alan süperakımlarla çevrelenmiş, girdap denilen akı tüpleri içine hapsedilmiştir.

Normal bölge ile YBCO arasındaki ara yüzey enerjisi negatiftir ve bundan dolayı eşuyum uzunluğu (ξ) nüfuz derinliğinden (λ) daha küçüktür. Buna göre; tanecik sınırlarının zayıf bağlantılar gibi davranabilmeleri için boyutlarının yeterli büyüklükte olması gerekir. Yüksek sıcaklık seramik bulk süperiletkenlerde akım yoğunluğunun nispeten daha küçük olmasının nedeni de budur.

YBCO, diğer seramik süperiletkenlerle kıyaslandığında sayısız avantajlara sahiptir. 77 *K*'den büyük kritik sıcaklığa sahip olduğu bilinen kararlı dört elementli tek bileşiktir.

* Toksik elementler ya da kararsız bileşikler içermez.

* Tek-fazlı YBCO hazırlamak nispeten daha kolaydır.

* HTS malzemelere oranla daha düşük anizotropiye sahiptir ve daha güçlü manyetik alanlarda daha yüksek akım yoğunlukları taşıyabilir.

Ayrıca bu sistemin geçiş sıcaklığı 80 *K* olan YBCO-124 ve 50 *K* olan YBCO-247 fazları da vardır. Bu iki faz normal koşullarda oluşturulamazlar. Yani oldukça yüksek oksijen basıncına ya da normal basınçta hava ortamındaki ek alkali metal bileşiklerine ihtiyaç vardır **[18].**

2.2.1. YBCO'nun kristal kimyası

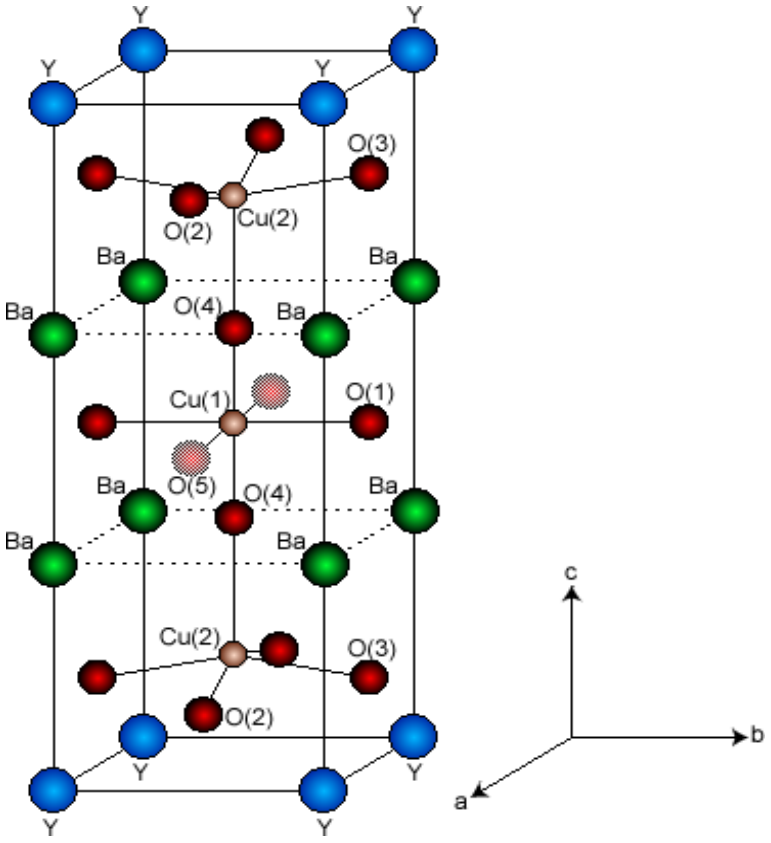
Basit yapıdaki bakır oksit perovskitler yalıtkandırlar ve sadece katkılama ile daha karmaşık kristal yapılar oluşturulduğunda metal gibi davranıp süperiletken olma olasılığı gösterirler **[18].**

Ortorombik yapıdaki $YBa_2Cu_3O_7$'nin birim hücresi şekil 2.1'de görülmektedir.

Bakırın kristolografik olarak iki bağımsız pozisyonunun varlığı (CuO_2 düzleminde Cu(2) ve Cu-O zincirinde Cu(1)) bu ailenin en önemli özelliğidir. Y-Ba-Cu-O ailesinin tüm üyeleri birim hücrede CuO_2 düzlemine sahiptir ama tek ve çift Cu-O zincirlerinin bulunmasına göre farklılık gösterirler. $YBa_2Cu_3O_7$ birim hücrede bir zincire, $YBa_2Cu_4O_8$ ise iki zincire sahiptir.

$YBa_2Cu_3O_{7-y}$, süperiletken olan ortorombik fazdan yarıiletken olan tetragonal faza geçerken zincirlerdeki oksijen kaybından çabuk etkilenir. Bu ortorombik-tetragonal geçişi, bir düzen-düzensizlik yapısal faz geçişidir ve oksijenin kısmi basıncına ve sıcaklığa bağlı olan, stokiyometrik olmayan *y* parametresi tarafından belirlenir. $y = 0$ ile tamamen oksijenlenmiş durum (ortorombik) O(1) yerlerinde oksijen atomlarının düzenlenmesiyle meydana gelir. Böylelikle tek boyutlu Cu-O zinciri şekillenir. *y* arttıkça, oksijen materyalden ve düzensiz olan O(1) yerlerinden normalde boş olan O(5) yerlerine gider. Ortorombik-tetragonal faz geçişi oksijen difüzyon kinetiği tarafından kontrol edilen evrimsel bir işlemdir. Oksijen boşluklarının düzenlenmesi sonucu oluşan zincirler sadece ortorombik fazda görülür.

Oksijen konsantrasyonunun çeşitliliği materyali üretme işlemi boyunca ısıtma ve soğutma şartlarına bağlıdır. Tek zincir $YBa_2Cu_3O_{7-y}$ oksijen kaybına bağlı olarak ($0<y<0,6$) 94 *K*'den 0 *K*'e kadar değişen süperiletkenlik geçiş sıcaklığına sahiptir. $YBa_2Cu_3O_{7-y}$'nun normal ve süperiletken durumun her ikisinin de özelliği, oksijen konsantrasyonuna ve ortorombik fazda oksijen düzenlemesinin derecesine oldukça güçlü bir şekilde bağlıdır. Süperiletken $YBa_2Cu_3O_{7-y}$ faz ortamdaki gazın tipine (hava, oksijen vs) ve oksijen basıncının değerine bağlı olarak 600 ^oC den 750 ^oC aralığındaki sıcaklıklarda ısıtma süresince ortorombik-tetragonal faz geçişi gösterir. Çift zincir $YBa_2Cu_4O_8$ süperiletkenlerinin kritik sıcaklığı (yaklaşık 80 *K*) oksijen kaybından çok etkilenmez.

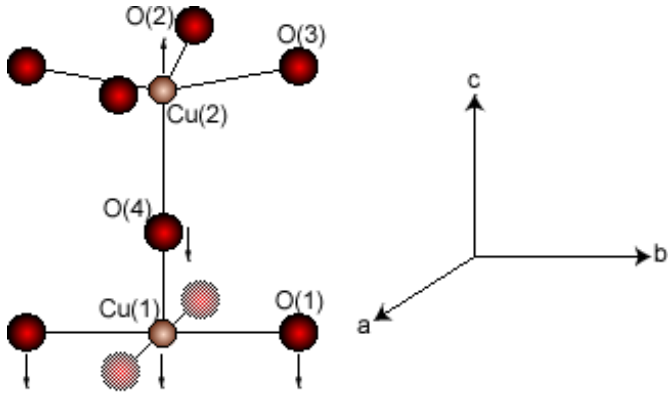


Şekil 2.1. Ortorombik yapıdaki $YBa_2Cu_3O_7$'nin birim hücresi

2.2.2. YBCO'da iyon katkılama-yerdeğiştirme etkileri

Katkılama çalışmaları, YBCO'nun kimyası üzerine sağlıklı veriler elde etmede oldukça yardımcı olmuştur. Örgüdeki hol miktarı da, bu yapılan katkılamalarla kontrol altına alınabilir. Örneğin; La^{3+} iyonunun Ba^{2+} yerine katkılanması ($x = 0.05$) ile hol miktarı azalır ve kritik sıcaklık 94 *K*'e çıkar. İyonik yarıçaplar, valans elektronları, katkılama yapılan bölge, elektron konfigrasyonu ve manyetik yapı, katkılamada sonucu etkileyen temel etkenlerdir.

YBCO'ya yapılan katkılama incelemelerinin temelde iki sebebi vardır. Bunlardan ilki; malzemenin özelliklerini değiştirmek ve böylece olası süperiletkenlik mekanizması ile ilgili daha fazla bilgi edinmektir. İkinci neden ise; malzemenin yoğunluk, tanecik yapısı ve kırılganlık gibi fiziksel özelliklerini geliştirebilmektir. Yabancı atom katkıları araştırılırken, oksijen içeriği kontrol edilmelidir. Çünkü oksijen miktarı CuO_2 düzlemindeki taşıyıcıların sayısını etkiler ve kritik sıcaklık değerini belirler **[18].** YBaCuO'da (Y^{3+}, Ba^{2+}, Cu^{2+} ve O^{2-} atomlarının başlangıç iyonik yükleri ile) katyon yer değiştirmesinin hesaplanmış çözünme enerjileri, katkı iyon yarıçapının bir fonksiyonu olarak büyük sistematik değişimler göstermektedir **[5].** Bu sonuçlar iki değerli katyonların M^{2+} (M^{2+} = Ni^{2+}, Zn^{2+} ve Cd^{2+}) düzlemlerdeki Cu(2) yerlerine tercihli olarak koyulacağı önerisi getirir. Bu, komşu örgü iyonlarının yerdeğiştirmesine, yerel simetride küçük değişimlere neden olur (Şekil 2.2). Katkı iyonlarıyla kuşatılan Cu(2) konumundaki bir esas örgü iyonunun yer değiştirmesi, Cu(1) - O(4) bağ mesafesinin azalmasıyla ve M^{2+} - O(4) bağ mesafesinin artmasıyla sonuçlanmaktadır. Cu(1)-O(4) bağ mesafesi, $YBa_2Cu_3O_7$'nin yerel elektriksel özelliklerini yansıtan önemli bir parametredir **[20].**



Şekil 2.2. Cu(2) düzleminde yer değiştiren iki değerlikli bir geçiş metal iyonu yakınındaki iyonların yer değiştirmesi

Üç değerlikli Al^{3+} ve Fe^{3+} iyonları için hesaplanan çözünme enerjileri, bu iyonların yerel olmayan (delocalize) model için Cu(2) nin yerine ve yerel (localize) model için Cu(1) in yerine geçmesini öngörür. $YBa_2Cu_3O_7$ bileşiklerinde nadir toprak elementleri Ba ve Y ile yerdeğiştirmede kullanılır. Baryumun yerine koyulan üç değerlikli nadir toprak iyonları için iyon boyutuyla enerjileri (Lu, Ho, Gd, Eu, Nd ve La'nın) arasında bir ilişki olduğu gözlenmiştir. Büyük nadir toprak iyonlarının (örneğin La^{3+}) Ba için yerdeğiştirmesi enerji olarak daha uygundur.

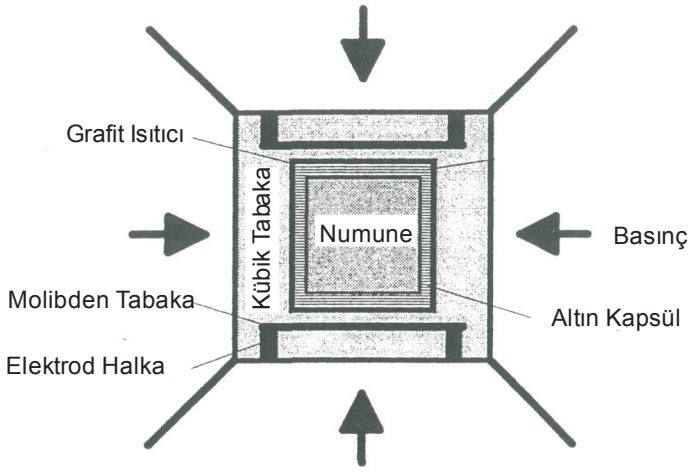
Şu ana kadarki gerçekleştirilen araştırmalar magnetik ve izoelektronik nadir toprak iyonlarının (Nd, Sm, Eu, Gd, Ho, Er ve Lu) örgüye ait olan Y^{3+} ile yerdeğiştirebileceğini ve süperiletkenlik geçiş sıcaklığında önemli bir değişiklik olmadığını göstermiştir. Ca^{2+} ve Sr^{2+} toprak alkali iyonları kristal içinde Ba^{2+} yerinde çözünür. Fe^{2+}, Co^{2+}, Ni^{2+} ve Cd^{2+}, Al^{3+} geçiş metal katyonları tercihli olarak Cu ile yerdeğiştirebilir.

2.3. Yüksek Sıcaklık Oksit Süperiletkenlerinin Basınç Altındaki Davranışları

2.3.1. Giriş

Bakır oksit (Cuprate) süperiletkenlerinin büyük bir çoğunluğu sadece yüksek basınç ve yüksek sıcaklık altında sentezlenerek hazırlanmaktadır. Hg ve Tl tabanlı süperiletkenler için tek-fazlı numunelerin hazırlanması, yüksek basınç altında kolaylaştırılmıştır. $YBa_2Cu_4O_8$, ilk olarak yüksek basınçta sentezlenmiştir **[21].**

Bakır oksit süperiletkenlerinin yüksek basınçta sentezi için temel sistem şekil 2.3'te gösterilmektedir. Bir kübik blok, basıncı aktarmak için kullanılmaktadır. 4 *mm* çapta ve 9 *mm* uzunlukta altın bir kapsül, yaklaşık 250 *mg* kütleli bakır oksit numuneleri hazırlamak için yeterlidir **[22].**



Şekil 2.3. Bakır oksit süperiletkenlerinde yüksek basınçta sentezde kullanılan temel sistem

2.4. Kaynak Araştırması

2.4.1. Basınç altında yapılan çalışmalar

$SrCO_3$ ve CuO tozlarından düşük basınçta, kuru havada elde edilen $Sr_2CuO_{3+\delta}$ bileşiğinin 160 *bar* oksijen basıncında ve 1150 ^oC sıcaklığında süperiletken olmadığı bulunmuştur. 5.7 *GPa* basınçta $KClO_4/Sr_2CuO_3/KClO_4$ tabletleri hazırlanmıştır. Tabletlerin 1 *bar* basınçta N_2 ile 310 ^oC sıcaklıkta 1 *saat* tutulması sonucunda da kritik sıcaklığın 94 *K* olduğu bulunmuştur **[23].**

$SrCuO_2$, Ca_2CuO_3, CuO, SrO_2 veya $KClO_3$ tozlarından elde edilen $Sr_2CuO_{3.2}$ bileşiğinin; 6 *GPa* basınçta, 900 ^oC sıcaklıkta $\leq$ 3 *saat* bir sürede tutularak süperiletken olmadığı bulunmuştur. Aynı tozlardan elde edilen; $Sr_2CaCu_2O_5$ bileşiği 5.5 *GPa* basınçta, 1050 ^oC sıcaklıkta $\leq$ 3 *saat* bir sürede tutularak kritik sıcaklığın 77 *K*, $Sr_2Ca_2Cu_3O_7$ bileşiği 5.5 *GPa* basınçta, 1250 ^oC sıcaklıkta $\leq$ 3 *saat* bir sürede tutularak kritik sıcaklığın 109 *K*, $Sr_2Ca_3Cu_4O_9$ bileşiği 5.5 *GPa* basınçta, 1250 ^oC sıcaklıkta $\leq$ 3 *saat* bir sürede tutularak kritik sıcaklığın 83 *K* olduğu bulunmuştur **[24].**

$SrCuO_2$, Ca_2CuO_3, CuO, SrO_2 ve B_2O_3 tozlarından elde edilen $BSr_2Ca_2Cu_3O_9$ bileşiğinde kritik sıcaklığın 75 *K* olduğu bulunmuştur. Aynı tozlardan elde edilen; $BSr_2Ca_3Cu_4O_{11}$ bileşiği 1200-1300 ^oC sıcaklıkta 1 *saat* tutularak kritik sıcaklığın 110 *K*, $BSr_2Ca_4Cu_5O_{14}$ bileşiği de 6 *GPa* basınçta tutularak kritik sıcaklığın 85 *K* olduğu bulunmuştur **[25, 26].**

$SrCuO_2$, CaO_2, Ga_2O_3 tozlarından elde edilen $GaSr_2CaCu_2O_6$ bileşiğinin 6 *GPa* basınçta 1200 ^oC sıcaklıkta 2 *saat* tutulması ile kritik sıcaklığın 70 *K* olduğu bulunmuştur **[27, 28].**

$SrCuO_2$, Ca_2CuO_3, CuO, SrO_2 ve Al_2O_3 tozlarından elde edilen $AlSr_2Ca_3Cu_4O_{11}$ bileşiğinde kritik sıcaklığın 110 *K* olduğu bulunmuştur. Aynı tozlardan elde edilen $AlSr_2Ca_4Cu_5O_{13}$ bileşiği 5.5 *GPa* basınçta, 1250 ^oC sıcaklıkta 1 *saat* tutularak kritik sıcaklığın 83 *K* olduğu bulunmuştur **[29].**

$Ru_{1-x}Rh_xSr_2GdCu_2O_8$ bileşiğinde (x = 0, 0.05, 0.10, 0.15) 2 *GPa* hidrostatik basınç altında elektriksel özdirenç ve sıcaklık gibi ölçümler alınmıştır. Ru ile Rh nin kısmi yer değiştirmesinin kritik sıcaklığı azaltırken bu maddelere basınç uygulamasının kritik sıcaklığı artırdığı bulunmuştur **[30].**

Bakır tabanlı süperiletkenlerde dış basınç uygulamasının kritik sıcaklıkta artmaya neden olduğu bulunmuştur. Dış basınç yerine kimyasal basınç uygulandığında ise sadece $La_{2-x}(Ba_{1-y}Sr_y)_xCuO_4$ olarak isimlendirilen bakır tabanlı süperiletkenlerde kritik sıcaklığın arttığı gözlenmiştir **[31].**

Bakır ve itriyum oksitleri ile baryum florid ve su buharı karışımından meydana gelen metal organik çökeltmede (MOD) yeterli yüksek sıcaklıkta su buharının varlığı hidrojen florür (HF) gazı ve YBCO üretimine neden olmuştur. HF gazının öneminin anlaşılması için YBCO oluşumu yerleşmeden önce meydana gelen reaksiyonlarda açığa çıkan HF nin kısmi basıncı 525, 575 ve 625 ^oC'de ölçülmüştür. HF nin 575 ^oC'de ölçülen kısmi basıncının; YF_3 reaksiyonu için 0.16 ± 0.02 *Pa* ve BaF_2 reaksiyonu için 0.02 ± 0.002 *Pa* olduğu bulunmuştur **[32].**

Yüksek basınçta sentezlenen Mg ve B tozlarına Ta-Ti ve Zr tozlarından belirli miktarda ilave edilmesiyle elde edilen MgB_2 + (Ta-Ti-Zr) numunesinde kritik akım yoğunluğunun magnetik alan ve sıcaklığın artmasıyla azaldığı bulunmuştur **[33].**

2.4.2. Basınç altında YBCO üzerine yapılan çalışmalar

Atımlı lazerle çökeltme (PLD) metodu ile üretilen YBCO filmlerinin yüzey direnci ve çökeltici oksijen basıncı arasındaki korelasyon incelenmiştir. Deneysel sonuçlar; yüzey direncinin oksijen basıncından oldukça etkilendiğini göstermiştir. Çökelme boyunca oksijen basıncı, filmlerin kritik sıcaklığını da etkilemiştir **[34].**

Basınç altında hazırlanan YBCO süperiletkenine orta şiddette alan uygulanarak yapılan çalışmada boşluk konsantrasyonu, kritik sıcaklık ve basınç arasındaki ilişkiler incelenmiştir. Araştırma sonunda kritik sıcaklık değişimlerinin tamamiyle etkin terimden kaynaklandığı, basıncın düzlem üzerindeki boşluk konsantrasyonunu azalttığı gözlenmiştir **[35].**

Basınç altında hazırlanan YBCO süperiletkeninde basıncın; özdirencin ve eşuyum uzunluğunun azalmasına, kritik sıcaklığın ise artmasına neden olduğu bulunmuştur **[36].**

$YBa_2Cu_3O_x$'e 400 ^oC de 72 *saat* süren tavlama boyunca *c*-ekseni yönünde 15 *MPa* büyüklüğünde bir basınç uygulanmıştır. Bu basınç uygulaması sonucunda *a-b* düzleminde çatlak oluşumundan sorumlu yerel gerilimin etkili bir şekilde telafi edildiği ve böylelikle bu düzlemdeki çatlakların yok edildiği görülmüştür Optik mikroskop sonuçları, *c* ekseni yönünde basınç uygulanmış ve uygulanmamış numuneler arasında mikro yapıda belirgin bir zıtlık olduğunu göstermiştir. *c* ekseni yönünde basınç uygulandığında tanecik sayısının arttığı ve tanecik büyüklüğünün azaldığı gözlenmiştir **[37].**

$YBa_2Cu_3O_x$ filmlerinin oksijen molekülleri ile 450-650 ^oC düşük sıcaklıklarda iyon demeti yoluyla püskürtme (IBS) metodu ile hazırlandığı çalışmada *a*-ekseni yönelimli fazın yüzeyi ve kristalliğinin oksijen molekülleri ile geliştirildiği bulunmuştur. *a* fazının büyütmesinin alttabaka sıcaklığına, kısmi oksijen basıncına ve oksijen molekülü miktarına bağlı olarak arttığı bulunmuştur **[38].**

$YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ süperiletkenlerinin değişen kalınlıklarda ve değişen oksijen basınçlarında $LaAlO_3$ (LAO) alttabakaları üzerinde PLD metodu ile hazırlandığı çalışmada basınç arttıkça çökeltme oranının ve süperiletkenlik geçiş sıcaklıklarının arttığı bulunmuştur. Basınç sabit tutulduğunda; film kalınlığı arttıkça kritik akım yoğunluğunun azaldığı bulunmuştur. Taramalı elektron mikroskobu görüntülerinden basınç arttıkça tanecik sayısının ve büyüklüğünün de arttığı gözlenmiştir **[39].**

Farklı oksijen bileşimli $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ tek kristallerinde hidrostatik basıncın direnç ve süperiletkenlik geçiş sıcaklığı üzerindeki etkisinin incelendiği çalışmada süperiletkenlik geçiş sıcaklığının basınçtan oldukça etkilendiği ve basınç uygulaması ile direncin azalıp denge değerine ulaştığı bulunmuştur. Dirençteki azalmanın Cu-O düzlemindeki oksijen düzeniyle ilgili olduğu anlaşılmıştır **[40].**

Farklı kalınlıktaki YBCO filmleri $SrTiO_3$ alttabakaları üzerinde büyütülmüştür. Deneysel kısımda oksijen, nitrojen ve su buharı karışımı olan bir gaz kullanılmıştır. Çalışma sonunda film büyütme oranının; film kalınlığından bağımsız olduğu ve su buharı basıncının karekökü ile orantılı olduğu bulunmuştur **[41]**.

Ba-Cu-O çözücüsünde farklı kısmi oksijen basınçlarının faz geçiş sıcaklığına ve itriyum çözünürlüğüne etkisi araştırılmıştır. Oluşan $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$'nın faz geçiş sıcaklığının azalan kısmi oksijen basıncı ile azaldığı, itriyum çözünürlüğünün ise kısmi oksijen basıncının artması ile arttığı bulunmuştur **[42].**

$YBa_2Cu_3O_x$ bileşiğinde değişen oksijen basınçlarında erime sıcaklığını belirlemek için diferansiyel termal analiz (DTA) ve termal gravimetrik analiz (TGA) yöntemleri kullanılmıştır. Erime sıcaklığının düşen oksijen basıncı ile azaldığı bulunmuştur **[43].**

2.4.2.1. Alçak basınçta YBCO üzerine yapılan çalışmalar

YBCO filmlerinin büyütme oranını artırmak için bu filmler üzerinde düşük basınçta tavlama süreci boyunca MOD metodu kullanılarak YBCO filmlerinin yüzeyinden HF gazı çıkışı sağlanmıştır. Bu yöntemde toplam basınç 700 *Torr* dan 1 *Torr* a değiştirilmiştir. Toplam düşük basınçta çok iyi karakterli *c*-ekseni yönelimli YBCO filmleri ve 1 MA/cm^2 üzerinde yüksek kritik akım yoğunlukları elde edilmiştir. Düşük toplam basınçta gözeneklerin büyüklüğünün ve sayısının azaldığı gözlenmiştir **[44].**

$YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ epitaxial ince filmleri düşük bir basınçta (0.95 *mTorr*) reaktif magnetron püskürtme tekniği ile büyütülmüştür. Büyütülen filmlerde soğutma boyunca farklı ortamlar (oksijen, hava ve argon) kullanılarak filmlerin hepsinin normal durumda metalik iletkenlik sergilediği gözlenmiştir. Soğutma boyunca oksijen ve hava kullanılan filmlerin süperiletken olup genel olarak ortorombik yapı sergilediği, argon kullanılan filmlerin ise süperiletken olmayıp tetragonal yapıya sahip olduğu bulunmuştur **[45].**

YBCO epitaxial filmleri düşük basınçta ($\sim 10^{-3}$ *Torr*) magnetron püskürtme tekniği ile büyütülmüştür. Sırasıyla MgO (100) ve $SrTiO_3$ (100) üzerinde büyütülen filmlerin 11.753 A^o ve 11.718 A^o büyüklüğünde *c* örgü parametresi sergilediği bulunmuştur. Farklı alttabakalar üzerinde büyütülen filmlerde katyon oranlarının (Ba:Y ve Cu:Y) yüzeyin yapısına bağlı olduğu gözlenmiştir. Araştırmada gözlenen

katyon eksikliğinin Y-Ba yerdeğiştirmesine yol açtığı düşünülmüş ve bu yerdeğiştirmenin *c* örgü parametresinde artmaya, kritik sıcaklık değerlerinde de azalmaya neden olduğu bulunmuştur **[46].**

$SrTiO_3$ alttabaka üzerinde trifloroasetatları (TFA) kullanarak MOD metodu ile düşük basınçta YBCO filmleri üretilmiştir. YBCO filmlerin büyütme oranının; kısmi su basıncının karekökü ile orantılı ve toplam basınçla ters orantılı olduğu gözlenmiştir **[47].**

Sol – gel tekniği ile büyütülen YBCO süperiletken kalın filmlerde çeşitli düşük kısmi oksijen basınçlarının etkisi incelenmiştir. Büyütülen kalın filmlerin yoğun olduğu ve çatlaklardan muaf olduğu bulunmuştur. Kısmi oksijen basıncının YBCO kalın filmlerinin yapısını etkilediği gözlenmiştir **[48].**

650 ^{o}C'de MgO(100) alttabakaları üzerinde çeşitli ozon miktarları ve çeşitli büyütme oranlarında moleküler demetli epitaksi (MBE) yöntemiyle çökeltilen $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ filmlerinde ozonun etkisi araştırılmıştır. Ozon ile metal reaksiyona girdiği için ozon kullanımı ile YBCO filmlerinin büyütmesinin kinetik olarak sınırlandırıldığı anlaşılmıştır **[49].**

2.4.2.2. Yüksek basınçta YBCO üzerine yapılan çalışmalar

Erimiş karakterli YBCO'nun yüksek basınçta ve yüksek sıcaklıkta oksidasyonu maddenin kritik akım yoğunluğunun artmasına ve makro çatlakların miktarının azalmasına neden olduğu bulunmuştur **[50].**

0.6 *GPa*'dan düşük basınçlarda $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ –$Pb(Sc_{0.5}Ta_{0.5})O_3$ karışımında katkı miktarı ile kritik sıcaklık arasındaki ilişki incelenmiştir. Araştırma sonucunda katkı miktarı arttıkça kritik sıcaklığın azaldığı gözlenmiştir **[51].**

Tavlama süresince yüksek basınçta oksijen kullanılarak eriyik haldeki malzemenin büyütülmesi ile MgO alttabakaları üzerinde $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ süperiletkeni üretilmiştir. Kritik akım yoğunluğunun tavlama ile $3.072x10^3$ A/cm^2 (77 *K*, 0 *T*) değerinden $7.008x10^3$ A/cm^2 (77 *K*, 0 *T*) değerine arttığı bulunmuştur **[52].**

Yüksek basınçta değişen kalınlıkta $Y(Nd_{0.05}Ba_{1.95})Cu_3O_{7-d}$ filmlerinin LAO alttabakaları üzerinde çökeltildiği çalışmada kritik sıcaklık ve kritik akım yoğunluğunun film kalınlığının azalmasıyla düştüğü bulunmuştur **[53].**

Değişen oksijen konsantrasyonlarına sahip $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ kristallerine 11 *Kbar'* a kadar yüksek basınç uygulandığında numunelerdeki oksijen miktarı azaldıkça *a-b* düzlemindeki direncin arttığı, kritik sıcaklığın azaldığı ve *a-b* düzlemine dikey eşuyum uzunluğunun arttığı gözlenmiştir **[54].**

3. MATERYAL VE METOD

3.1. YBCO Süperiletken Hazırlama Metodları

Oksit süperiletkenler, seramiklerin hazırlanmasında kullanılan yöntemlerin tümüyle üretilebilir. Bunun için en basit yöntem, uygun oranlarda saf oksitleri karıştırarak pota içinde sinterlemektir. $YBa_2Cu_3O_7$ süperiletkeninin sinterlenmesi için 900 ^oC'den daha fazla sıcaklık gerekir. Fakat numunenin 900 ^oC'nin üstünde bir sıcaklıkta sinterlenmesi esnasında oksijen kaybı meydana gelmektedir. Bu yüzden numunenin tercihen, yaklaşık olarak 600 ^oC'de hava veya oksijen ortamında belirli bir süre bekletilip yavaşça soğutulmak suretiyle oksijen yerleri doldurulur ve numuneye süperiletkenlik özelliği kazandırılır. Daha muntazam bir numune sol – gel çökelmesiyle veya püskürterek kurutmakla elde edilmiş toz karışımlardan üretilebilir. Seramik $YBa_2Cu_3O_7$ süperiletkeni genellikle tozların sinterlenmesiyle hazırlanmaktadır. Farklı sinterleme yöntemleriyle farklı yoğunlukta ve farklı gözenekte seramik numuneler üretilebilir. Kritik akım yoğunluğu ve oksijen stokiyometrisi, seramiğin hacimce yoğunluğu ile ilişkilidir. Düşük yoğunluklu seramiklerde taneler arası temas zayıf olduğu için kritik akım yoğunluğu düşüktür. Diğer taraftan, teorik yoğunluğa yakın yoğunluklu numunelerde, taneler içine oksijen difüzyonu engellendiği için kritik akım yoğunluğu yine düşüktür. Optimum akım yoğunluğunun teorik yoğunluğun %85'i ile %95'i arasında olduğu belirtilmektedir**.** Seramik süperiletken malzemelerin üretilmesinde kullanılan tekniklerin bazıları aşağıda verilmiştir.

Katıhal Tepkime Metodu

Eritme Yöntemi

Bölgesel Eritme Yöntemi

Eritme Büyütme Yöntemi

Eritme-Yönlendirme-Büyütme Yöntemi

Eritme-Hızlı Soğutma Yöntemi

Eritme-Hızlı Soğutma-Büyütme Yöntemi

Eritme-Döküm Yöntemi

3.2. Numunelerin Hazırlanması

İlk olarak, saf $YBa_2Cu_3O_{6.5}$ bileşiğini hazırlamak için aşağıdaki kimyasal tepkimeye göre Y_2O_3, $BaCO_3$, CuO tozlarından katıhal tepkime yöntemiyle başlangıç karışımı hazırlanmıştır.

$$0.5(Y_2O_3) + 2(BaCO_3) + 3(CuO) \rightarrow YBa_2Cu_3O_{6.5} + 2CO_2 \qquad (3.1)$$

Daha sonra, Y_2O_3, Lu_2O_3, $BaCO_3$, CuO ve Ag_2O tozlarından yukarıdaki kimyasal bağıntıya göre $Y_{0.5}Lu_{0.5}Ba_2Cu_{3-x}Ag_xO_{7-\delta}$ bileşiğini elde etmek için hazırlanmış karışımlar (x = 0.1, 0.2, 0.3) bir öğütücüde 2 *saat* süreyle karıştırılmıştır.

Başlangıç aşamasındaki bileşiklerin saflık dereceleri ve molekül ağırlıkları tablo 3.1'de, hesaplanan malzeme miktarları da tablo 3.2'de verilmiştir.

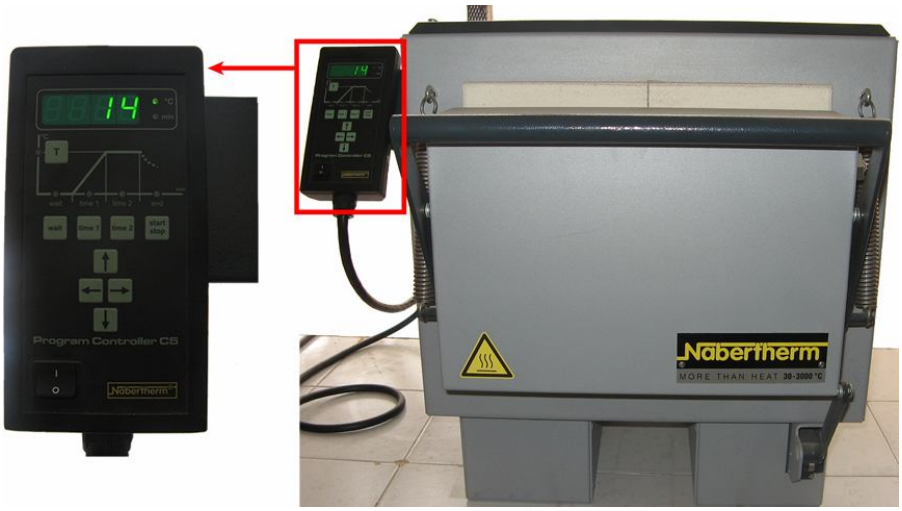
Tablo 3.1. Bileşiklerin saflık dereceleri ve molekül ağırlıkları

Bileşik	**Saflık (%)**	**Molekül Ağırlığı (*g*)**
Y_2O_3	99.99	225.81
Lu_2O_3	99.99	397.93
$BaCO_3$	99.99	197.35
CuO	99.99	79.54
Ag_2O	99.99	231.74

Tablo 3.2. x = 0.1, 0.2 ve 0.3 katkı miktarları için hesaplanan malzeme miktarları

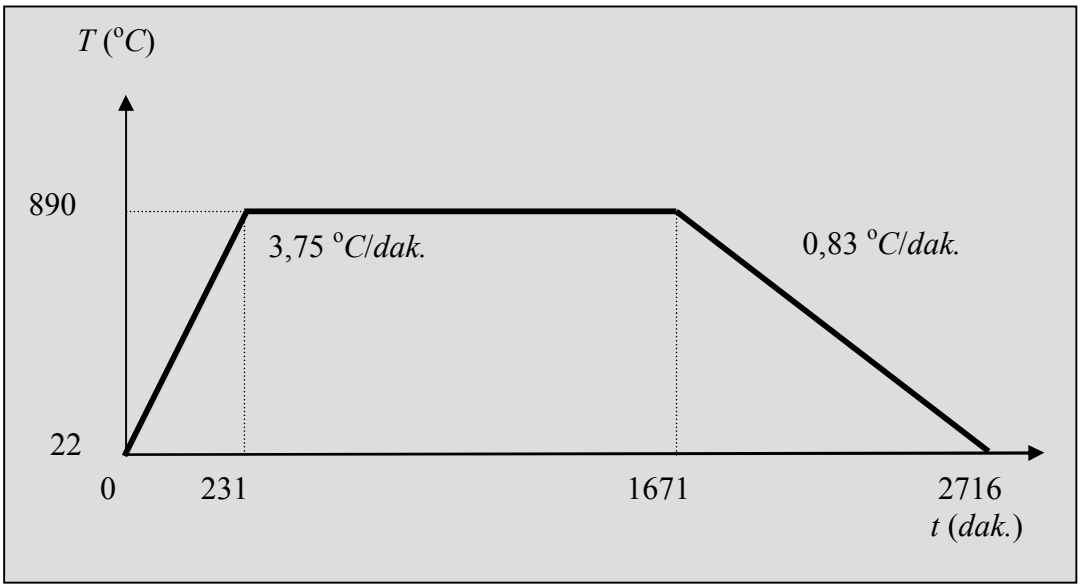
x = 0.1		x = 0.2		x = 0.3	
Bileşik	**Malzeme Miktarı**	**Bileşik**	**Malzeme Miktarı**	**Bileşik**	**Malzeme Miktarı**
Y_2O_3	0.5646	Y_2O_3	0.5646	Y_2O_3	0.5646
Lu_2O_3	0.995	Lu_2O_3	0.995	Lu_2O_3	0.995
$BaCO_3$	3.9469	$BaCO_3$	3.9469	$BaCO_3$	3.9469
CuO	2.3071	CuO	2.2275	CuO	2.148
Ag_2O	0.2318	Ag_2O	0.4635	Ag_2O	0.6953

Karıştırıldıktan sonra gri bir renk aldığı gözlenen toz karışımlar, birinci kalsinasyon işlemi için bir alümina (Al_2O_3) pota içinde, oda sıcaklığındaki C5 kontrol üniteli N 11\R Nabertherm marka kül fırına konulmuştur (Şekil 3.1).



Şekil 3.1. C5 kontrol üniteli N 11/R Nabertherm marka kül fırını ve kontrol paneli

Fırın, oda sıcaklığından itibaren 890 ^oC'ye 3.75 $^oC/dakika$ hızla ısıtılmıştır. Fırın, bu sıcaklıkta 24 *saat* süreyle bekletilmiştir. Daha sonra oda sıcaklığına kadar 0.83 $^oC/dakika$ hızla soğutulmuştur (Şekil 3.2).



Şekil 3.2. Kalsinasyon işleminde sıcaklık zaman grafiği

Oda sıcaklığına kadar soğutulup fırından çıkarılan karışımların siyah renkli olduğu ve külçeleştiği gözlenmiştir. Fırından çıkartılan karışımlar agat havanda iki *saat* süreyle ezilerek (pulversing) öğütme işlemine tabi tutulmuştur. Aynı şartlar altında beş kez kalsine edilen karışımlar, fırından çıkartıldıktan sonra iki *saat* süreyle tekrar öğütülmüştür. Son kez öğütülerek elde edilen toz karışımlar, bir press (Şekil 3.3) yardımı ile 15 *MPa*, 30 *MPa* ve 45 *MPa* basınçlar altında yaklaşık 2 *mm* kalınlığında ve *9 mm* çapında tabletler halinde preslenmiştir. $x = 0.1$ için elde edilen tabletler A serisi, (15 *MPa* için A1, 30 *MPa* için A2, 45 *MPa* için A3), $x = 0.2$ için elde edilen tabletler B serisi (15 *MPa* için B1, 30 *MPa* için B2, 45 *MPa* için B3)ve $x = 0.3$ için elde edilen tabletler ise C serisi (15 *MPa* için C1, 30 *MPa* için C2, 45 *MPa* için C3) olarak adlandırılmıştır (Tablo 3.3).





Şekil 3.3. Crystal Lab marka pres ve 9 *mm* çaplı KBr die seti

Tablo 3.3. Seri numunelerin basınç ve katkı miktarları

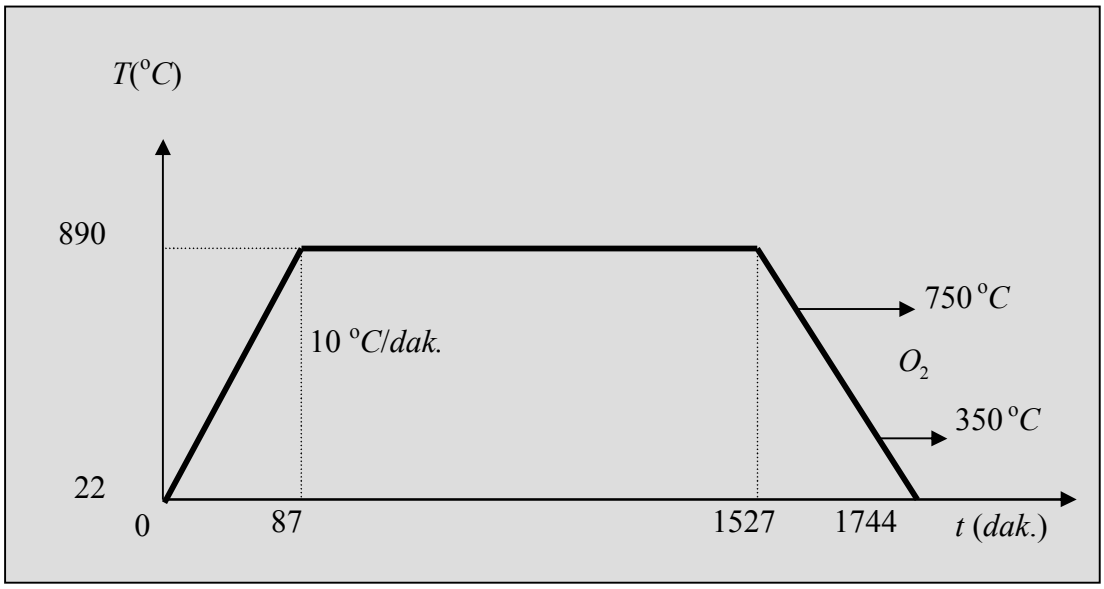
Seri	**Alt Seriler**	**Basınç (*MPa*)**	**Katkı Miktarı (*x*)**
A Serisi	A1	15	0.1
	A2	30	
	A3	45	
B Serisi	B1	15	0.2
	B2	30	
	B3	45	
C Serisi	C1	15	0.3
	C2	30	
	C3	45	

Tablet haline getirilen numuneler sinterlenmek üzere alümina potaya yerleştirilerek oda sıcaklığındaki CARBOLITE marka 201 model tüp fırına konulmuştur (Şekil 3.4).



Şekil 3.4. CARBOLITE-201 modeli ve Eurotherm-2132 modelli kontrol paneli

Fırının sıcaklığı 10 $^{o}C/dakika$ hızla 890 ^{o}C'ye kadar çıkartılmıştır. Tabletler, bu sıcaklıkta 24 *saat* bekletildikten sonra 4 $^{o}C/dakika$ hızla oda sıcaklığına kadar soğutulmuştur. Soğutma işlemi esnasında tabletlere 750 ^{o}C ile 350 ^{o}C arasında oksijen verilmiştir (Şekil 3.5). Sinterleme işlemi sonunda tabletlerin siyah renklerini korudukları gözlenmiştir.



Şekil 3.5. Sinterleme işleminde sıcaklık zaman grafiği

3.3. X-ışını Kırınım Ölçümleri

X-ışınları kırınım desenlerinden yararlanarak bir malzemenin kristal yapısı hakkında bilgi edinilebilir ve örgü parametreleri tayin edilebilir.

Üretilen $YBa_2Cu_3O_{6.5}$ numunelerinin x-ışını kırınım desenleri Rigaku D/Max-IIIC difraktometresinde (Şekil 3.6) ölçülmüştür. Ölçümler esnasında difraktometredeki bakır hedefe 30 *kV*'luk gerilim ve 30 *mA*'lik akım uygulanarak elde edilen Cu K_α x-ışınları kullanılmıştır. Difraktometre, $10^o \leq 2\theta \leq 60^o$ aralığı için 2.4 ^{o}/*dakika* tarama hızına ve 0.1^o örnekleme aralığına sahiptir. *a, b, c* örgü parametrelerini hesaplamak için,

$$\frac{1}{d^2} = \frac{h^2}{a^2} + \frac{k^2}{b^2} + \frac{l^2}{c^2} \tag{3.2}$$

bağıntısından faydalanılmıştır. Burada *d*; düzlemler arası mesafeyi, *h, k, l* ise örgü düzlemlerini göstermektedir. Bu deneylerde *a, b, c* örgü parametreleri ± 0.004 A^o hassasiyetle ölçülmüştür.



Şekil 3.6. Rigaku D/Max-IIIC marka x-ışını difraktometresi

3.4. Optik Fotoğraf Analizleri

Numunelerin yüzey mikroyapıları, polarize ışıklı bir optik mikroskop kullanılarak resmedilmiştir. Bütün numuneler 10 μm ve 0.25 μm'lik elmas pastalar kullanılarak parlatılmıştır. Nikon ECLIPSE ME600 polarize optik mikroskopta (Şekil 3.7) 20X büyütme, 5X göz büyütmesi ve fotoğraf makinesinin (5,1) dijital büyütme özelliğinden faydalanılarak optik mikroyapı çekimleri yapılmıştır.



Şekil 3.7. Nikon ECLIPSE ME600 Polarize Optik Mikroskop

Optik mikroskop, çok küçük cisimlerin görüntülerinin bir mercek ya da ayna sistemiyle yansıtılması, kırılması ya da kırınıma uğrayan ışık dalgalarıyla yeniden oluşturulmasına dayanan bir mikroskoptur. Optik mikroskoplarda merceklerin odak uzaklıkları sabittir. Odaklama yapabilmek için incelenen cisim objektife yaklaştırılıp uzaklaştırılır.

Optik mikroskop ile numunedeki fazların özellikleri, dağılımları, tane sınırları, kayma bantları, gözenekler, kalıntı ve çatlaklar kolayca ayırt edilebilmektedir.

3.5. SEM Analizleri

Numunelerin tanecik büyüklükleri, tanecikler arası boşluklar, taneciklerin yönelimleri, tanecik sınırları gibi özellikleri, JEOL JSM-6400 marka taramalı elektron mikroskobu kullanılarak elde edilen SEM görüntülerinin analizleri ile incelenmiştir (Şekil 3.8).



Şekil 3.8. Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM)

Taramalı Elektron Mikroskobunda görüntü, yüksek voltaj ile hızlandırılmış elektronların numune üzerine odaklanması, bu elektron demetinin numune yüzeyinde taratılması sırasında elektron ve numune atomları arasında oluşan çeşitli girişimler sonucunda meydana gelen etkilerin uygun algılayıcılarda toplanması ve sinyal güçlendiricilerinden geçirildikten sonra bir katot ışınları tüpünün ekranına aktarılmasıyla elde edilir. Modern sistemlerde bu algılayıcılardan gelen sinyaller dijital sinyallere çevrilip bilgisayar monitörüne verilmektedir.

Taramalı Elektron Mikroskobu; Optik Kolon, Numune Hücresi ve Görüntüleme Sistemi olmak üzere üç temel kısımdan oluşmaktadır. Optik kolon kısmında; elektron demetinin kaynağı olan elektron tabancası, elektronları numuneye doğru hızlandırmak için yüksek gerilimin uygulandığı anot plakası, ince elektron demeti elde etmek için kondenser mercekleri, demeti numune üzerinde odaklamak için objektif merceği, bu merceğe bağlı çeşitli çapta apatürler ve elektron demetinin numune yüzeyini taraması için tarama bobinleri yer almaktadır. Mercek sistemleri elektromanyetik alan ile elektron demetini inceltmekte veya numune üzerine odaklamaktadır. Tüm optik kolon ve numune 10^{-4} *Pa* gibi bir vakumda tutulmaktadır.

Görüntü sisteminde, elektron demeti ile numune girişimi sonucunda oluşan çeşitli elektron ve ışımaları toplayan dedektörler, bunların sinyal çoğaltıcıları ve numune yüzeyinde elektron demetini görüntü ekranıyla senkronize tarayan manyetik bobinler bulunmaktadır.

Taramalı Elektron Mikroskobu'nda sıvı olmayan ve sıvı özellik taşımayan her türlü numune incelenebilir. Hazırlık basamaklarından geçtikten sonra numune Elektron Mikroskobunda incelenmeye hazır hale gelir. Numunenin yapısına göre değişmekte olan vakum süresi beklenilmelidir; bu süre ortalama 30 *dakika*dır. Vakum süresi tamamlandıktan sonra numunenin yüzey şeklinin resmi alınabilir. Numunenin basit bir analizini yapmak için 3 *dakika*lık bir süre yeterli olabilmekle birlikte, bu süre tamamen numunenin yapısına bağlıdır.

3.6. Yoğunluk Tayini

Yoğunluk ölçümü için numunelerin havadaki kütlesi ölçülmüştür. Numunelerin hacimleri, geometrik yapılarından hesaplanmıştır. Bu şekilde hacim hesaplamada taneler arası boşluklardan dolayı, numunelerin hacimlerinde bir miktar hata meydana gelecektir. Archimedes terazisi yardımıyla da numunelerin yoğunlukları daha hassas bir şekilde hesaplanabilir. Numunelerin yeniden kullanılmalarını sağlamak amacıyla bu yöntem tercih edilmiştir.

4. DENEYSEL BULGULAR

4.1. Giriş

Bu bölümde; hazırlanan numunelerin x-ışını kırınımı (XRD) desenleri, optik fotoğrafları, taramalı elektron mikroskobu (SEM) fotoğraflarından elde edilen bulguları ile yoğunluk analizleri sonucu elde edilen bulgular verilmiştir.

4.2. XRD Analizleri

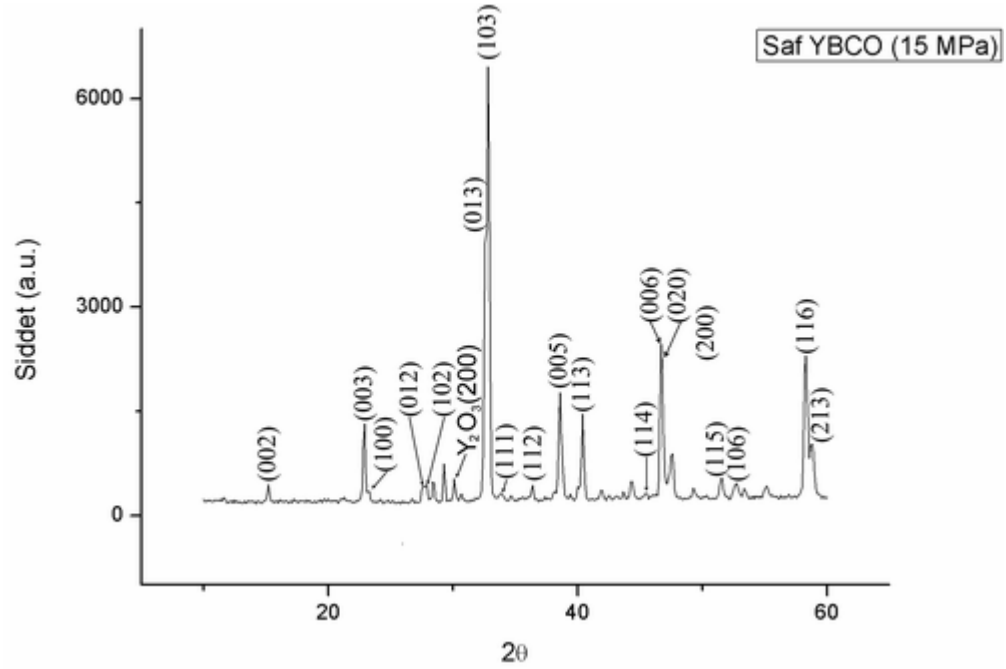
Katıhal tepkime yöntemiyle hazırlanan malzemelerin polikristal difraktometresinde elde edilen x-ışını kırınım desenleri, $10^o \leq 2\theta \leq 60^o$ aralığında alınmıştır.

15, 30, 45 *MPa* altındaki saf YBCO için elde edilen x-ışını kırınım desenleri şekil 4.1-4'te gösterilmektedir. Bu basınçlardaki saf YBCO için elde edilen kırınım desenlerinde, (002), (003), (100), (012), (102), Y_2O_3 (200), (013), (103), (111), (112), (005), (113), (114), (006), (020), (200), (115), (106), (116), (213) pikleri görülmüştür. 211 yarıiletken yapısına ait yalnızca 30.52^o'de (211) piki saf YBCO numunesinde çok düşük şiddette görülmüştür. Bu piklerin YBCO süperiletkeninden ileri geldiği ve süperiletkenin ortorombik yapısına uygun olduğu görülmüştür. Ayrıca x-ışını kırınım ölçümünde basınç değişimi ile birlikte (013) ve (103) piklerinin şiddetlerindeki değişim dışında belirgin bir fark görülmemiştir.

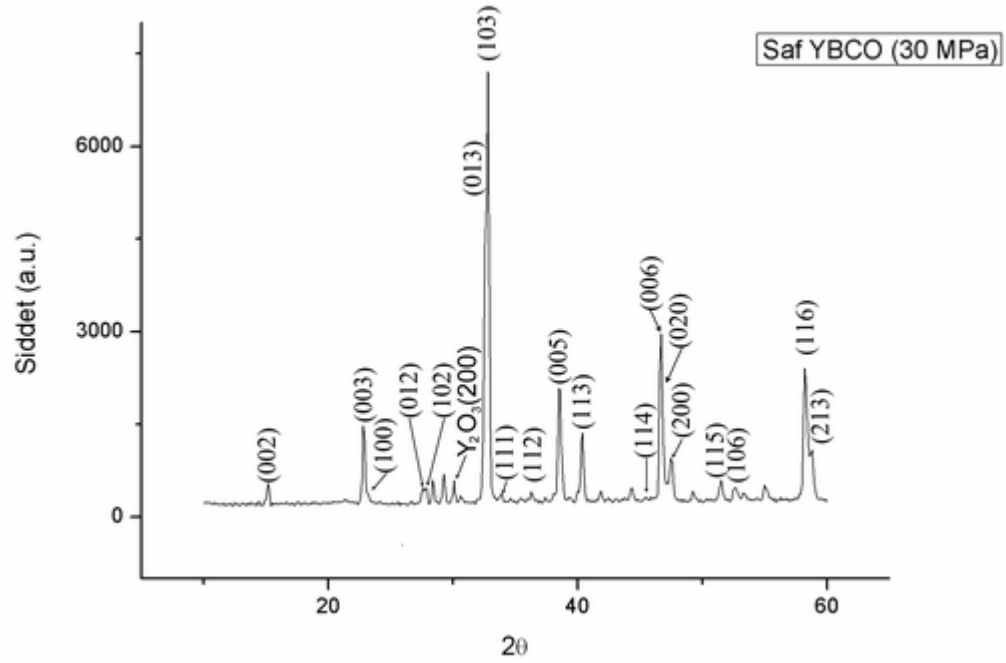
A, B, C serileri için x-ışını kırınım desenleri şekil 4.5-10'da verilmiştir. A1-B1-C1 (15 *MPa*), A2-B2-C2 (30 *MPa*), A3-B3-C3 (45 *MPa*) numuneleri için x-ışını kırınım desenleri ise şekil 4.11-13'te gösterilmiştir.

Elde edilen kırınım desenlerindeki ilgili düzlemlerin (*hkl*) Miller indisleri belirlenip indisler ve düzlemler arası mesafe kullanılarak örgü parametreleri *a, b, c* ve

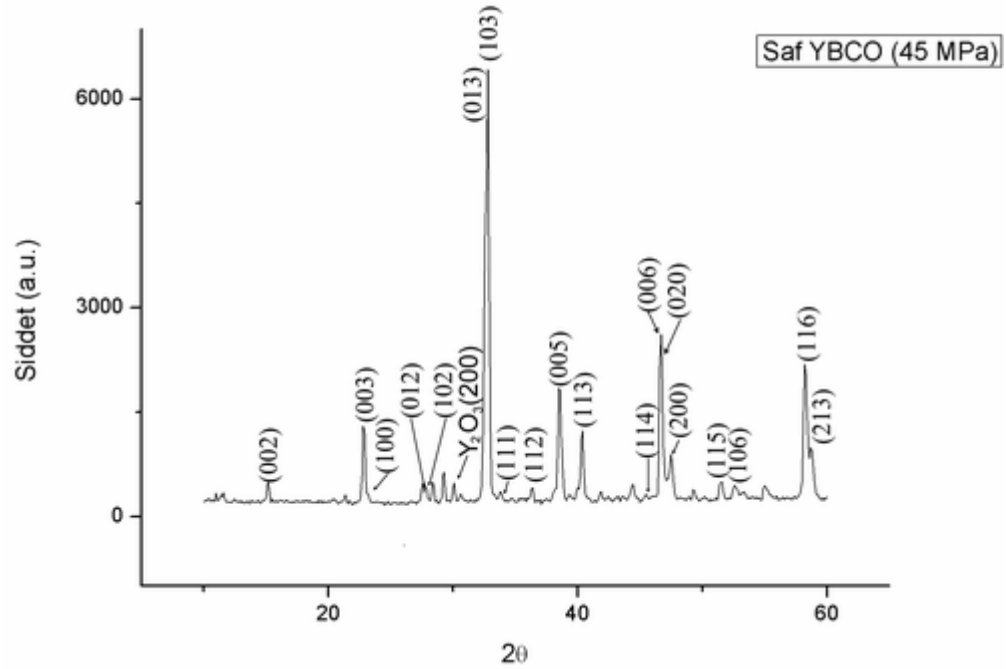
hacim *V* hesaplanmıştır. Elde edilen değerler tablo 4.1'de verilmiştir. Hesaplamalarda en küçük kareler metodu kullanılarak geliştirilen bilgisayar programından faydalanılmıştır. Saf YBCO ve A, B, C serileri için hesaplanan *a, b, c* örgü parametrelerinin ve *V* hacim değerinin basınca göre değişimleri şekil 4.14-17'de verilmiştir. 15, 30 ve 45 *MPa*'daki *a, b, c* örgü parametrelerinin ve *V* değerinin katkı miktarı *x*'e göre değişimleri sırasıyla şekil 4.18, şekil 4.19 ve şekil 4.20'de gösterilmiştir. Tablo 4.1'den saf YBCO'ya ait örgü parametrelerinin basınç değişimiyle önemli miktarda değişmediği görülmektedir. A, B, C serilerinde ise basınç değişimi örgü parametrelerinde önemli bir değişmeye sebep olmazken, katkı miktarı *x*'in artmasıyla *a* ve *b* örgü parametrelerinde azalma olurken, *c* örgü parametresinde artma olduğu görülmektedir.



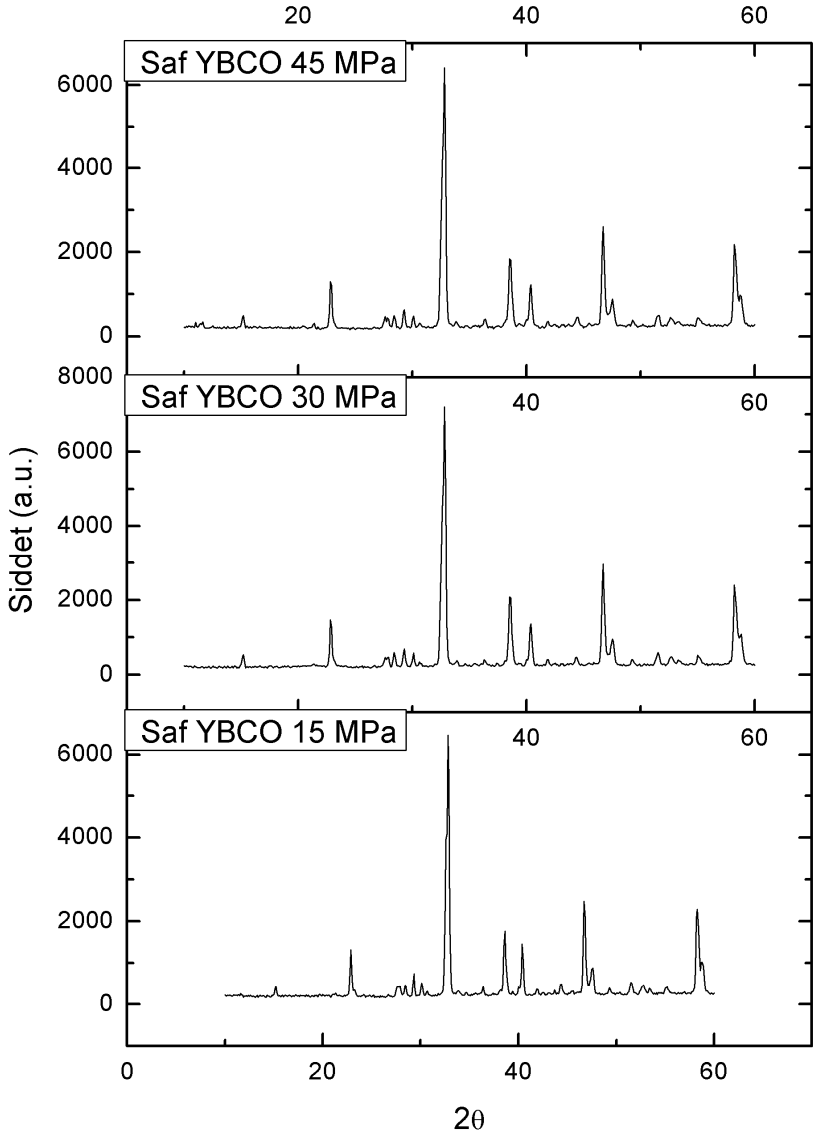
Şekil 4.1. 15 *MPa* basınç altındaki saf YBCO'ya ait x-ışını kırınım deseni



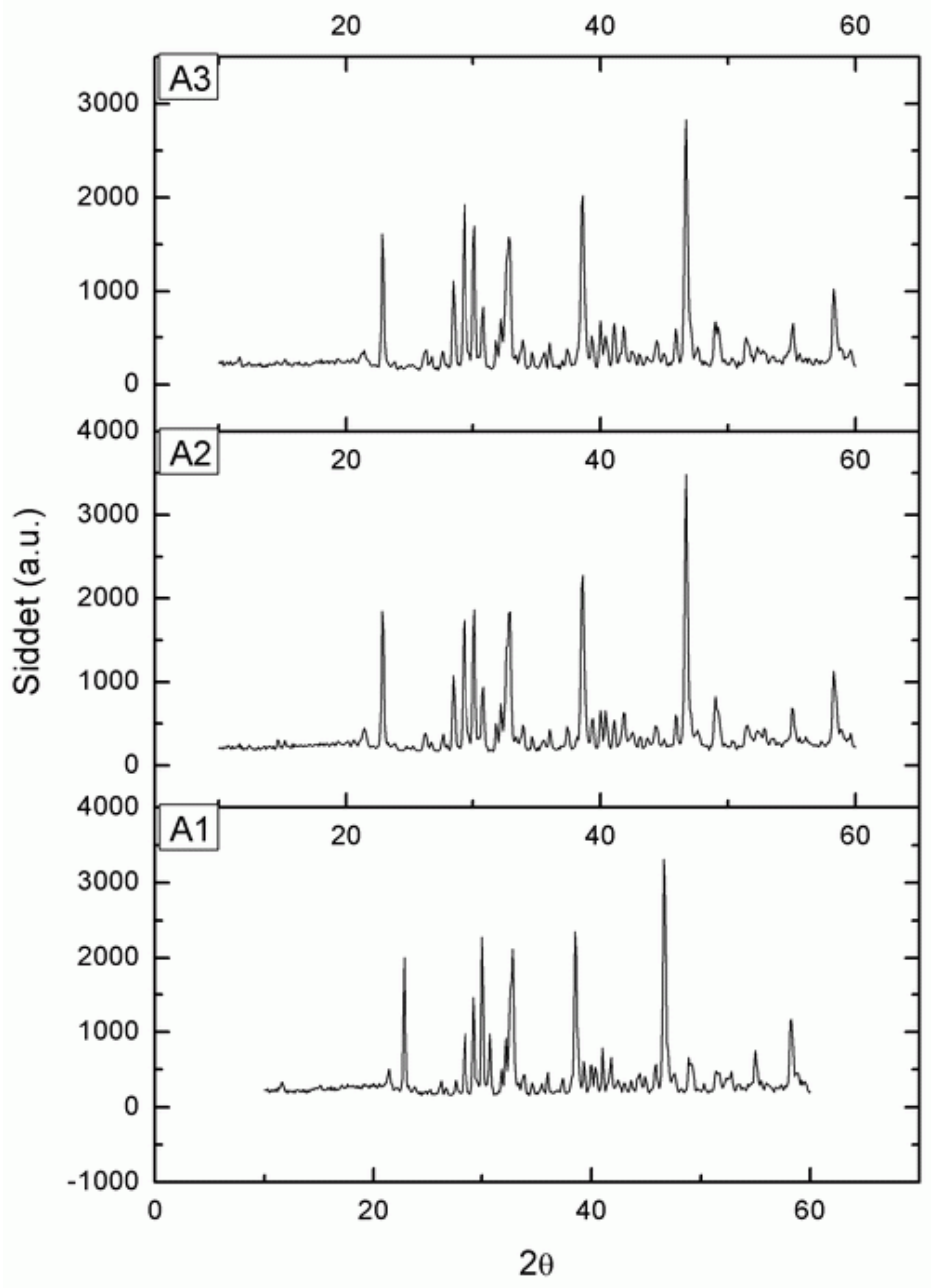
Şekil 4.2. 30 *MPa* basınç altındaki saf YBCO'ya ait x-ışını kırınım deseni



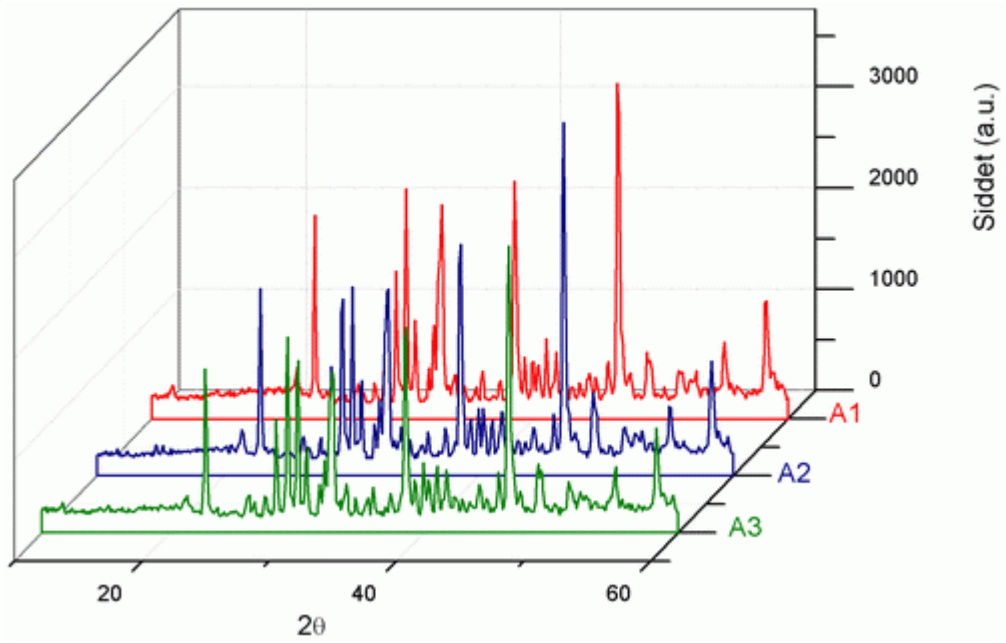
Şekil 4.3. 45 *MPa* basınç altındaki saf YBCO'ya ait x-ışını kırınım deseni



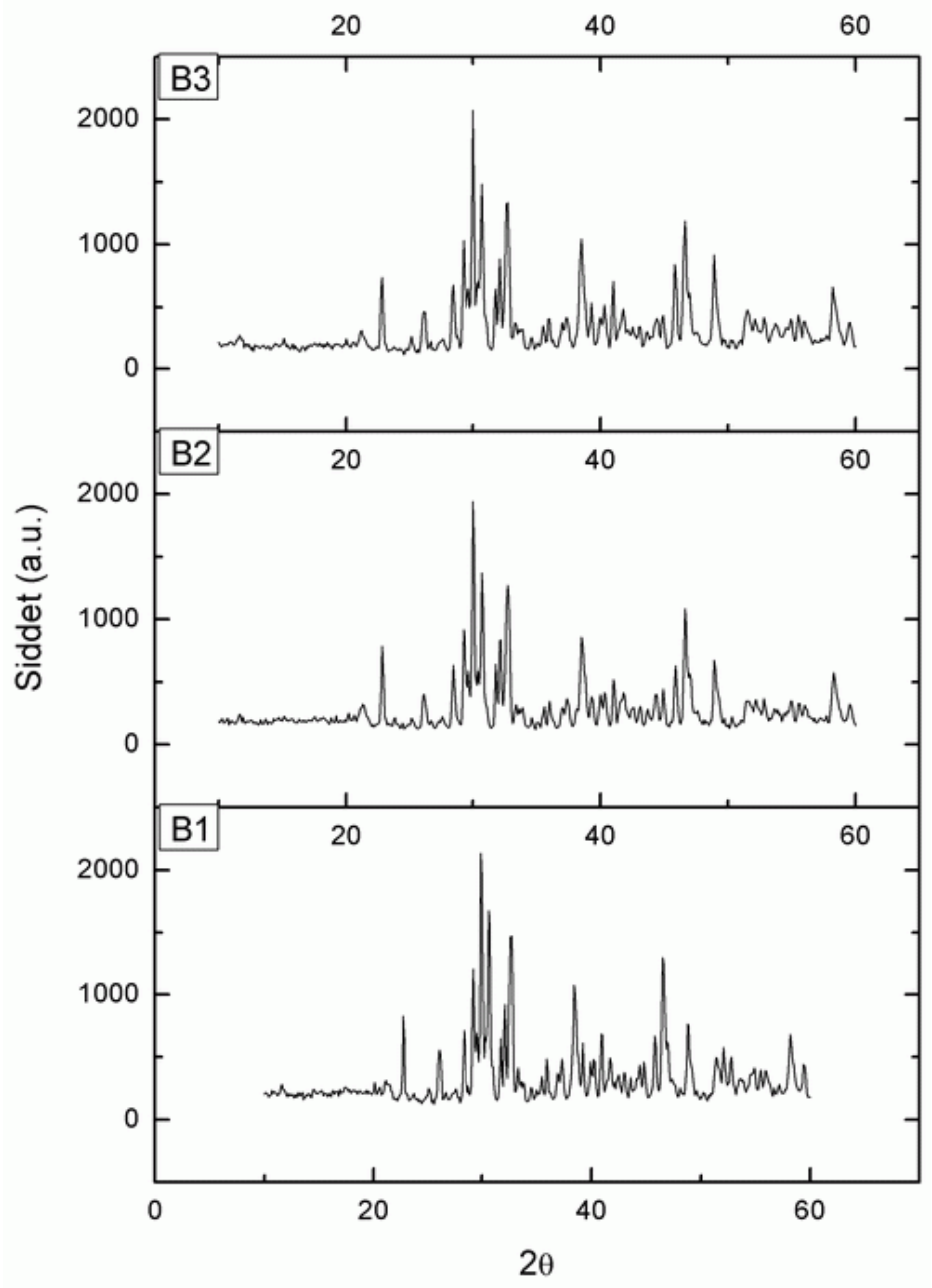
Şekil 4.4. 15, 30 ve 45 *MPa* basınç altındaki saf YBCO'ya ait x-ışını kırınım desenleri



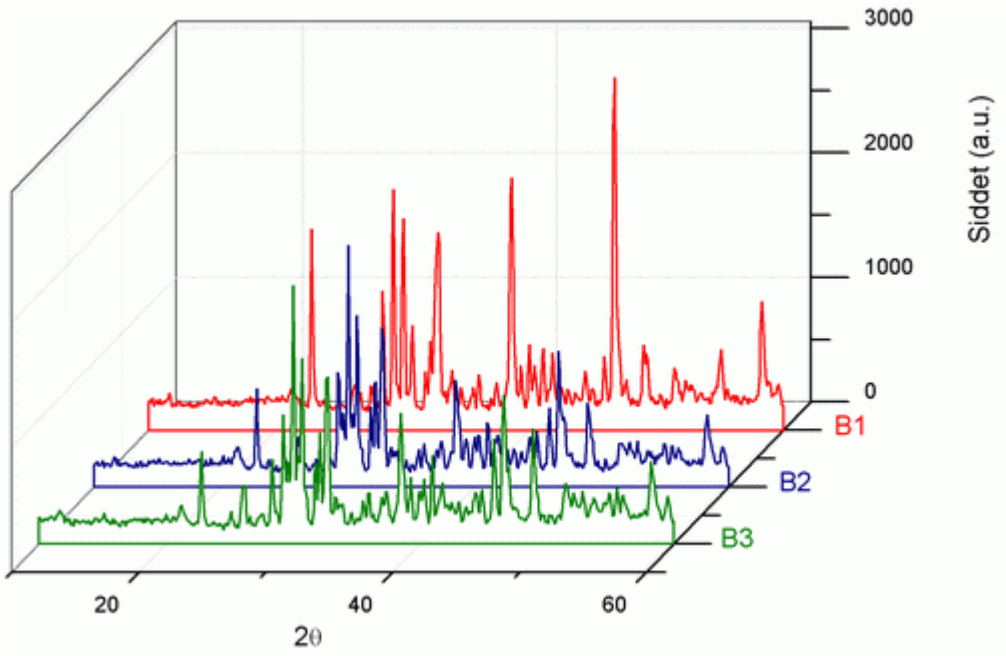
Şekil 4.5. A1, A2 ve A3 numunelerine ait x-ışını kırınım desenleri



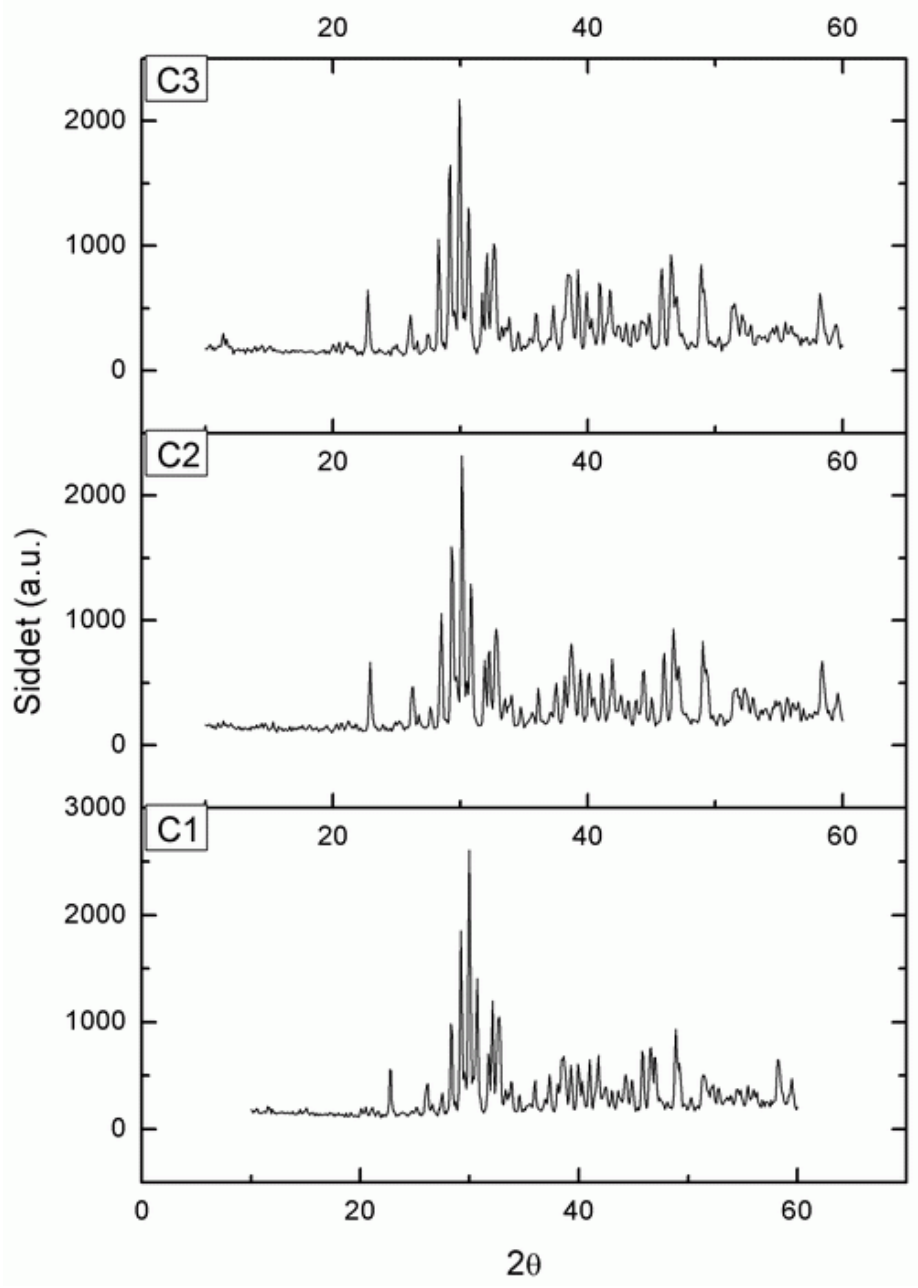
Şekil 4.6. A1, A2 ve A3 numunelerine ait x-ışını kırınım desenlerinin üç boyutlu gösterimi



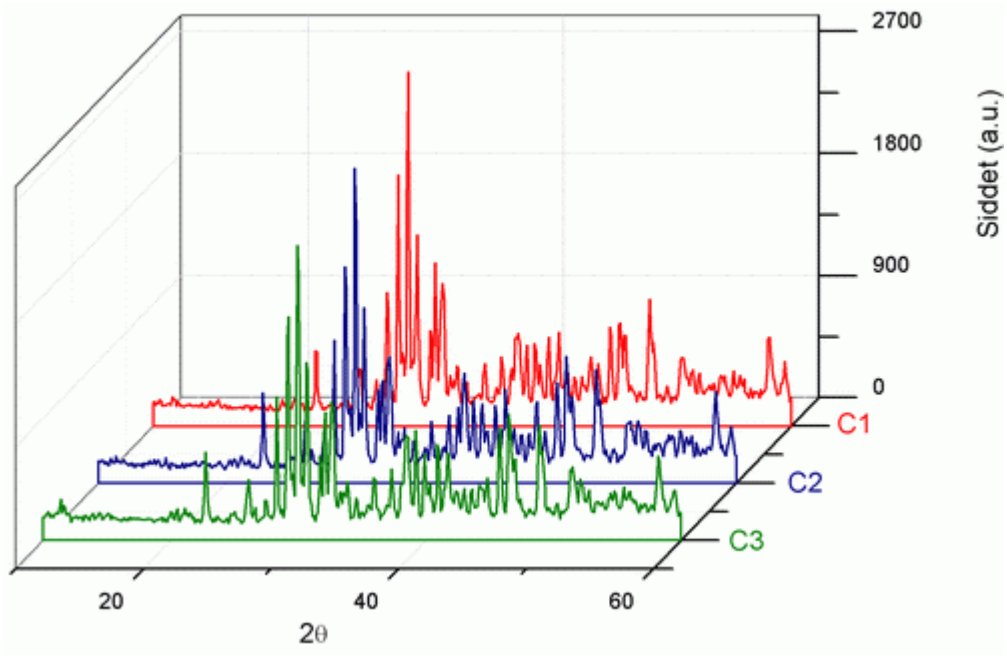
Şekil 4.7. B1, B2 ve B3 numunelerine ait x-ışını kırınım desenleri



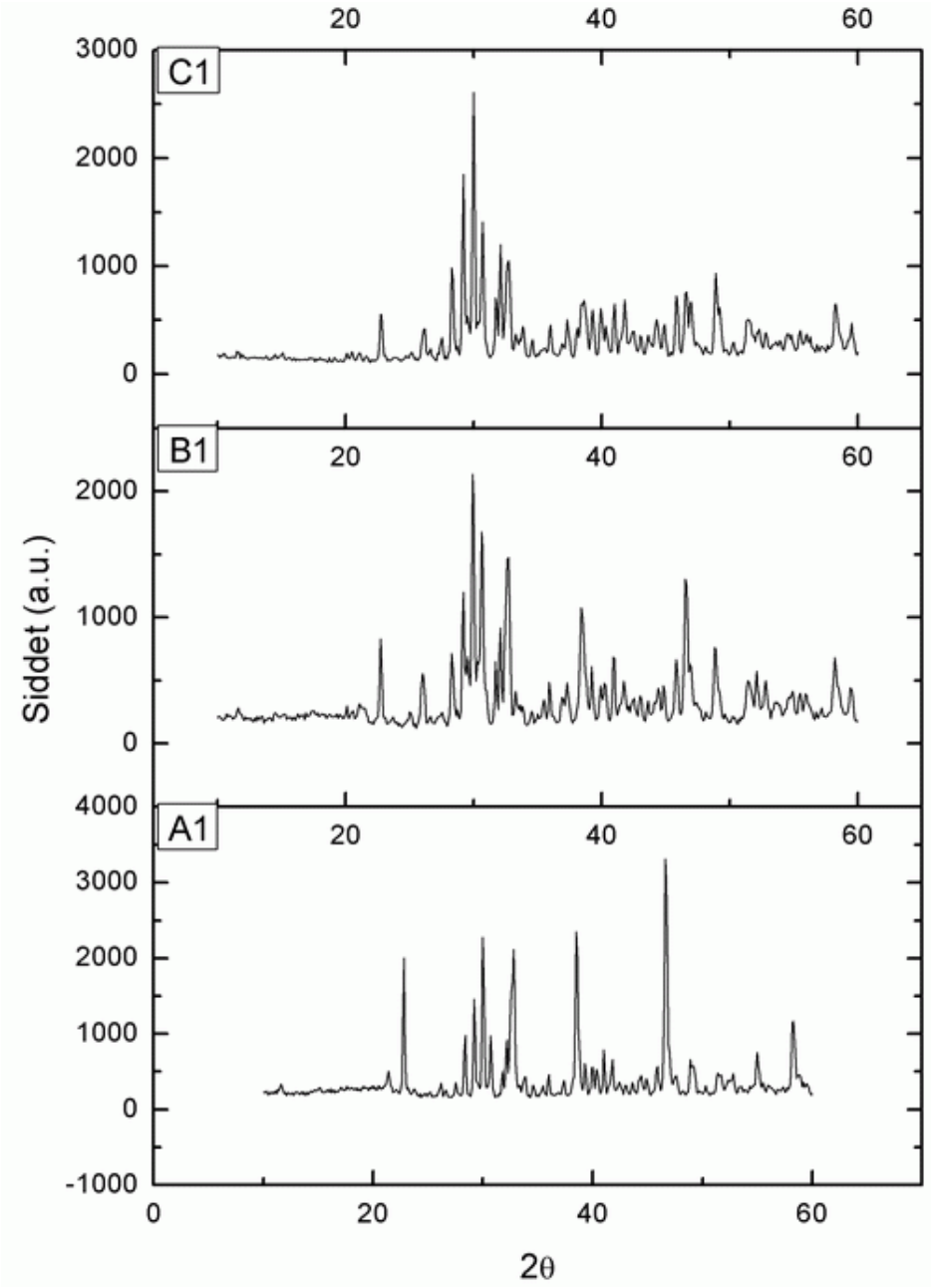
Şekil 4.8. B1, B2 ve B3 numunelerine ait x-ışını kırınım desenlerinin üç boyutlu gösterimi



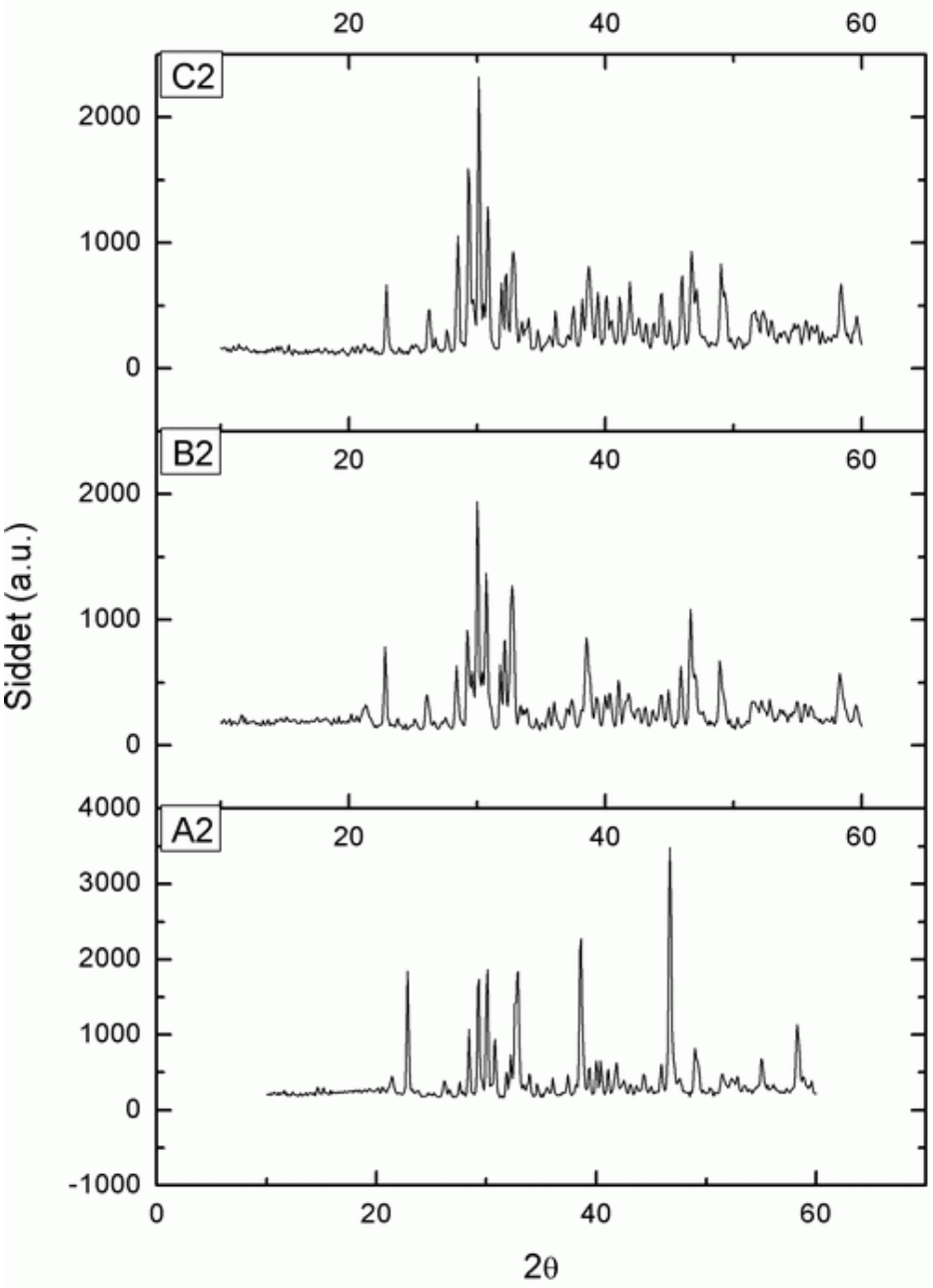
Şekil 4.9. C1, C2 ve C3 numunelerine ait x-ışını kırınım desenleri



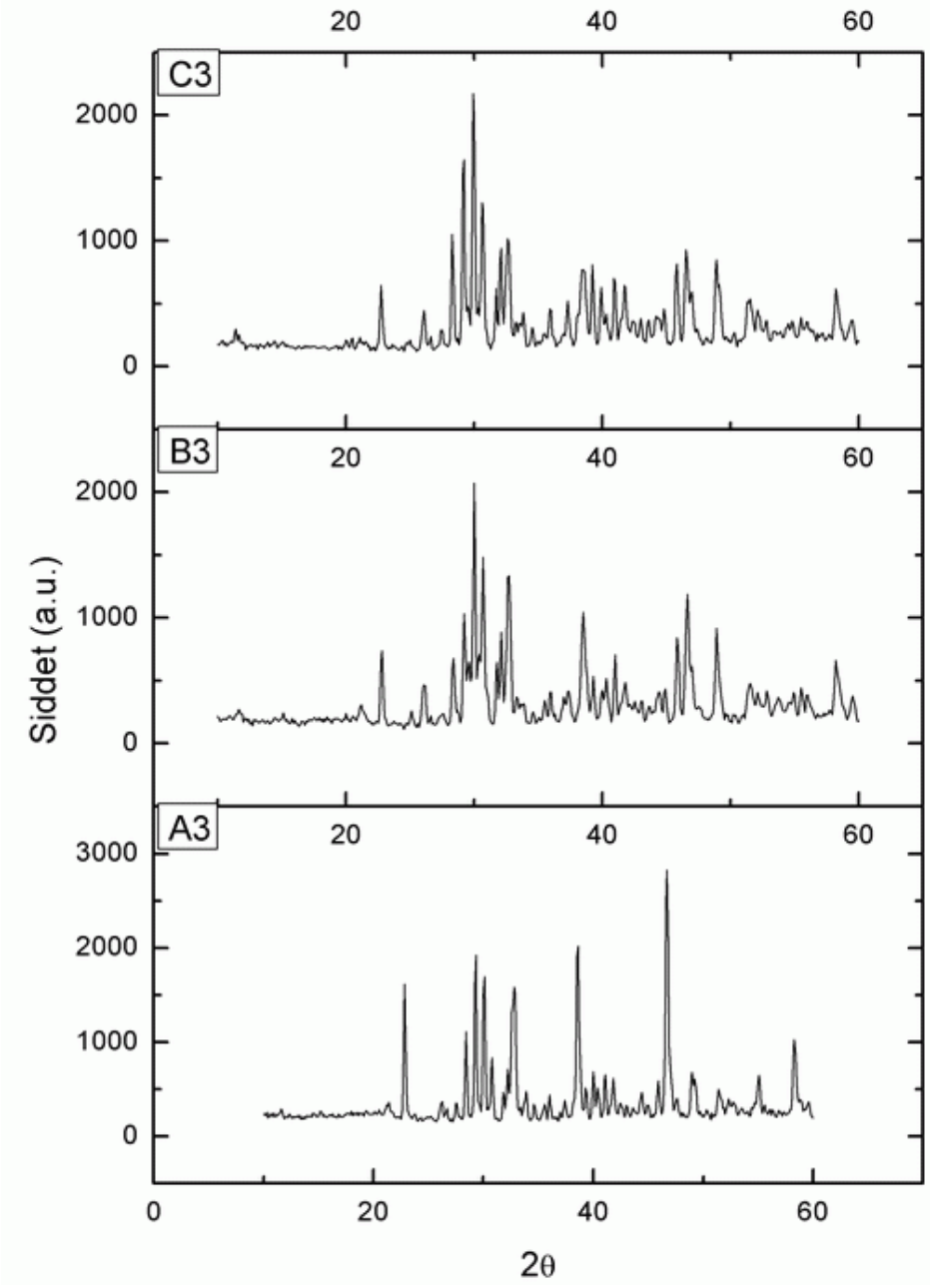
Şekil 4.10. C1, C2 ve C3 numunelerine ait x-ışını kırınım desenlerinin üç boyutlu gösterimi



Şekil 4.11. A1, B1 ve C1 numunelerine ait x-ışını kırınım desenleri



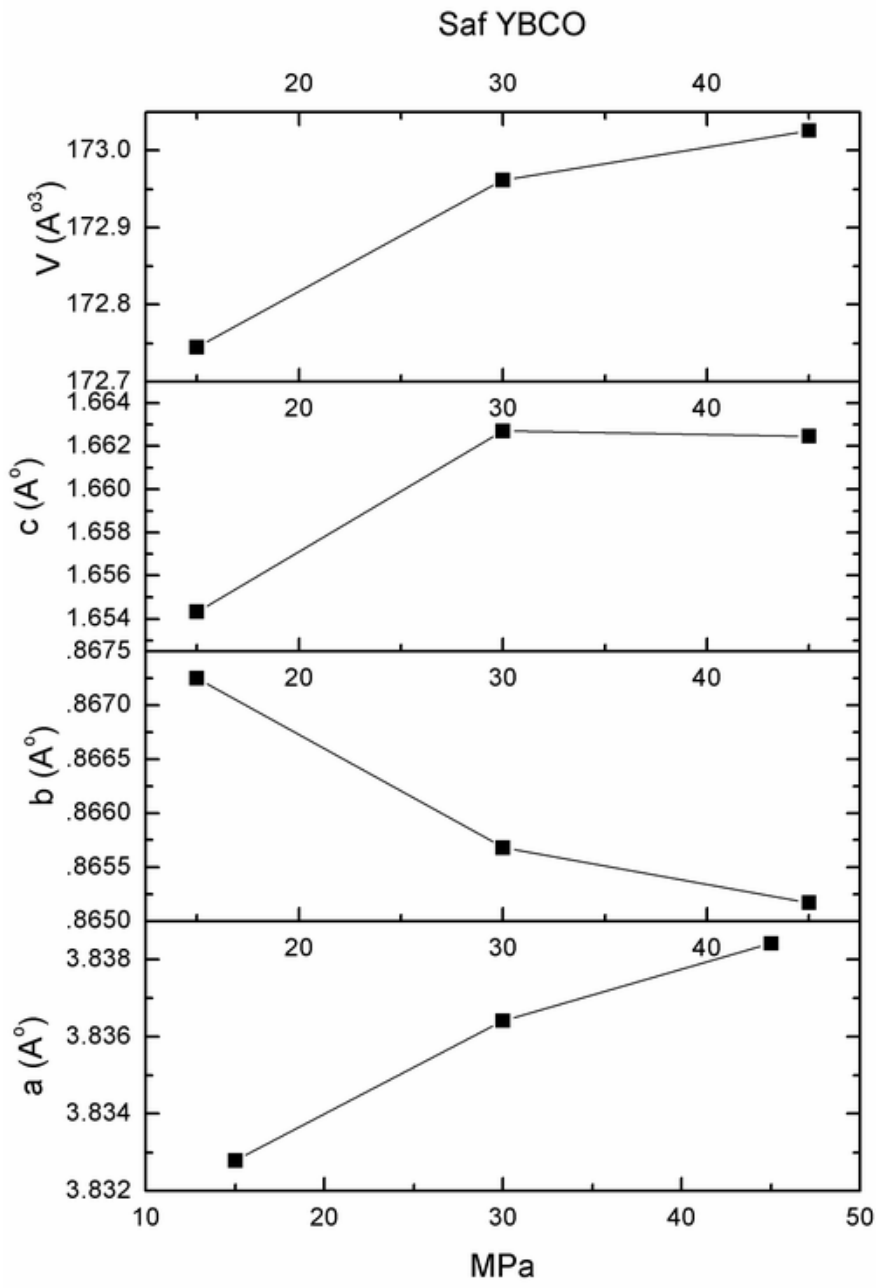
Şekil 4.12. A2, B2 ve C2 numunelerine ait x-ışını kırınım desenleri



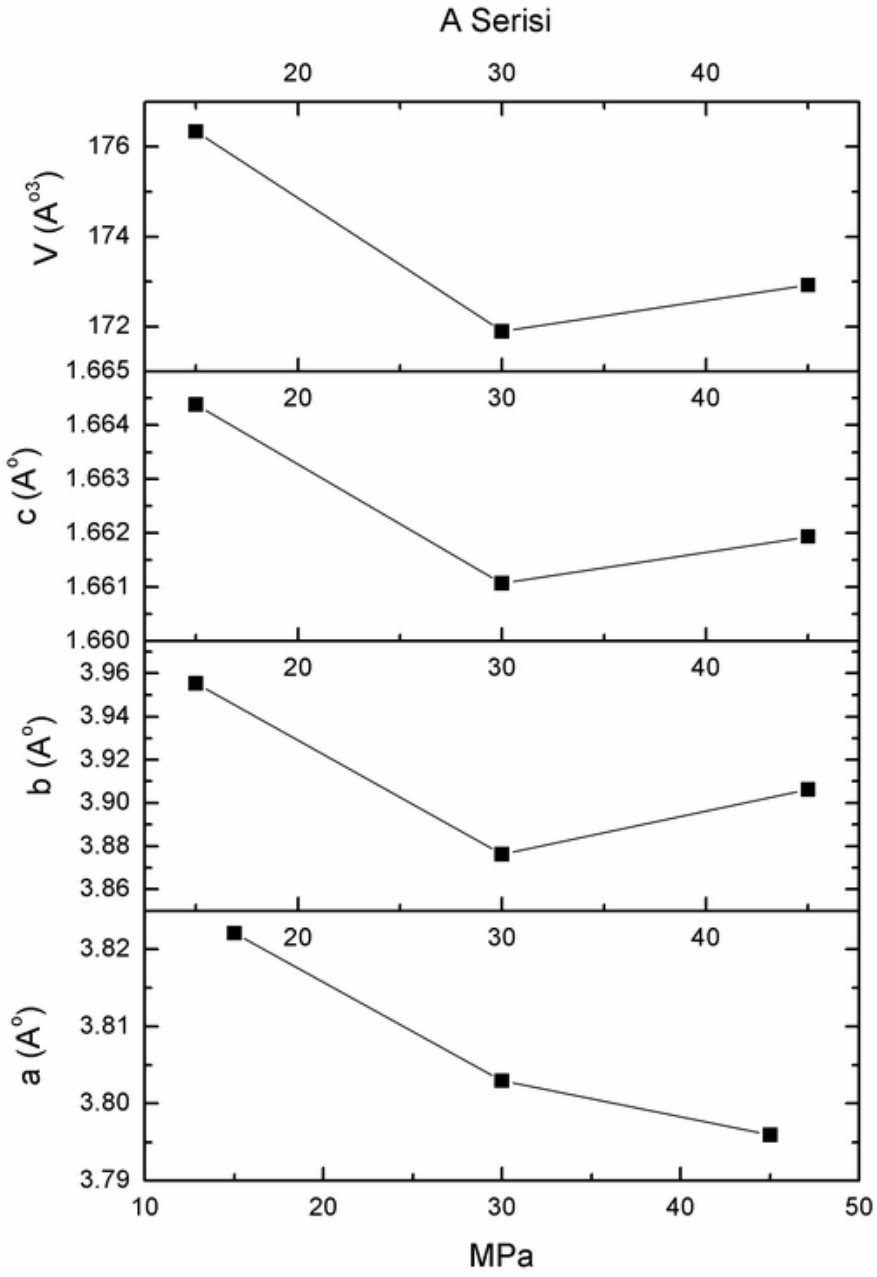
Şekil 4.13. A3, B3 ve C3 numunelerine ait x-ışını kırınım desenleri

Tablo 4.1. Numunelerin *a, b, c* ve *V* değerleri

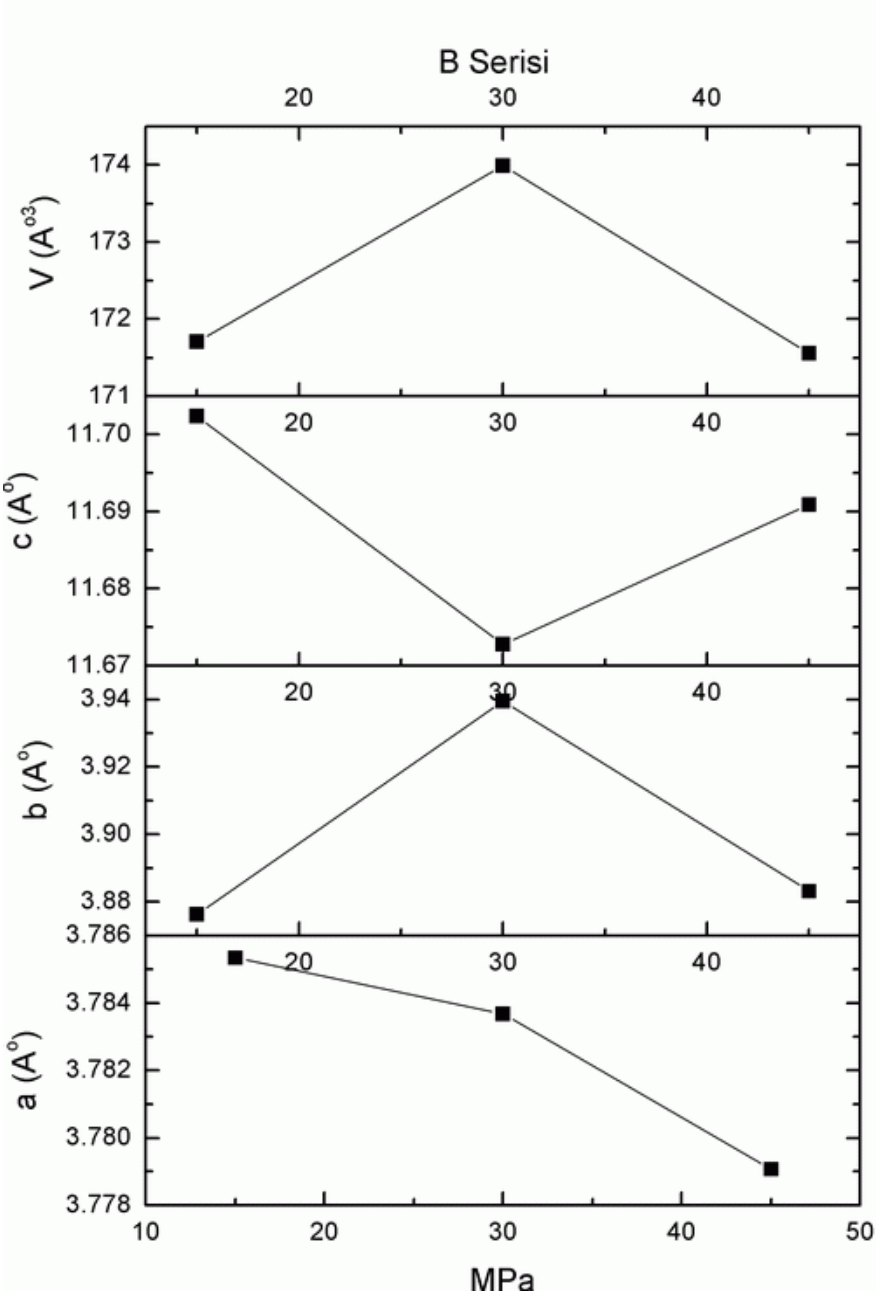
Numune	***a*** **(*A*^{o})**	***b*** **(*A*^{o})**	***c*** **(*A*^{o})**	***V*** **(*A*^{o3})**
Saf YBCO (15 *MPa*)	3.83279	3.86725	11.65433	172.745
Saf YBCO (30 *MPa*)	3.83642	3.86568	11.66270	172.962
Saf YBCO (45 *MPa*)	3.83842	3.86517	11.66248	173.026
A1	3.82212	3.95544	11.66438	176.344
A2	3.80296	3.87619	11.66107	171.896
A3	3.79595	3.90633	11.66194	172.926
B1	3.78534	3.87625	11.70238	171.708
B2	3.78367	3.93949	11.67278	173.991
B3	3.77907	3.88310	11.69090	171.558
C1	3.75602	3.92595	11.69411	172.441
C2	3.75390	3.96099	11.64503	173.152
C3	3.76296	3.90267	11.70313	171.868



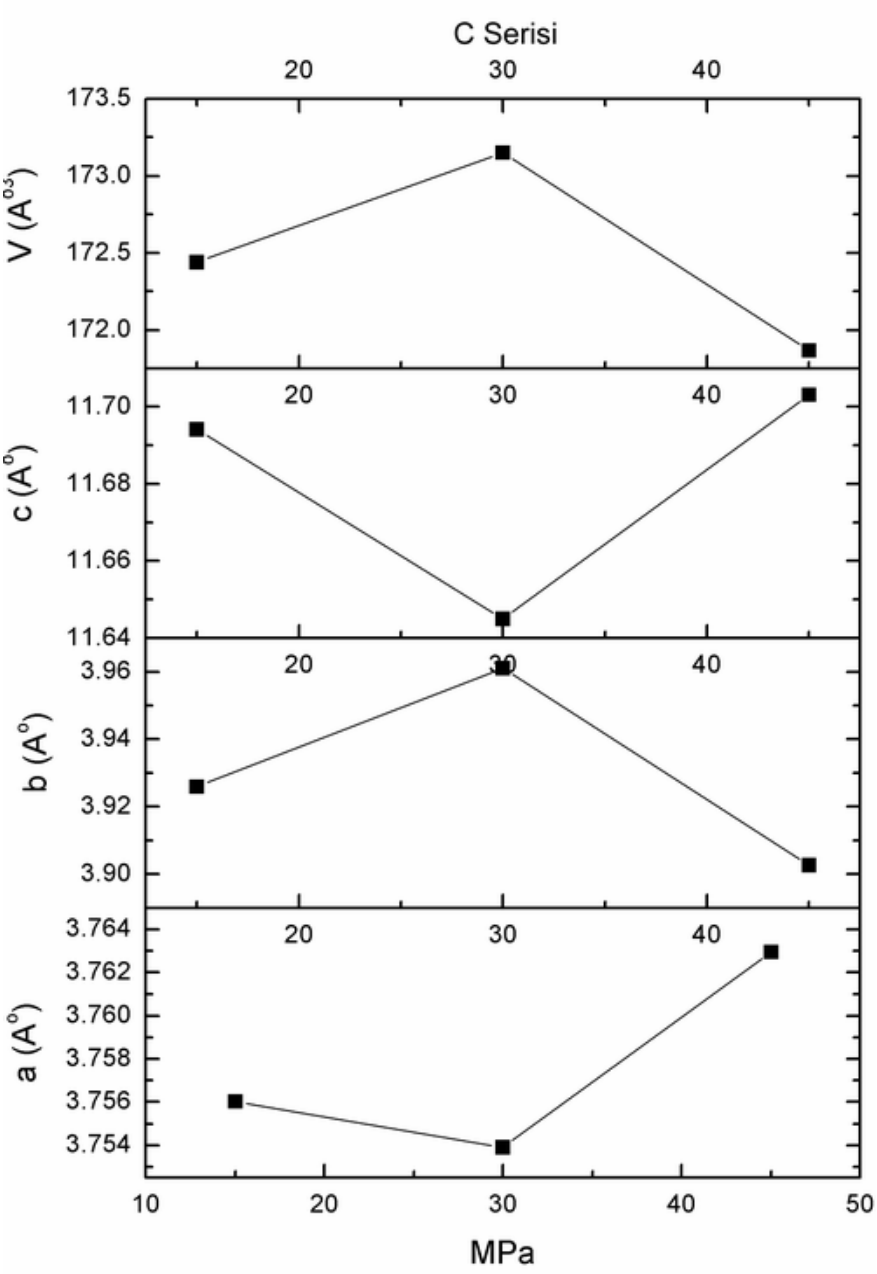
Şekil 4.14. Saf YBCO'ya ait *a, b, c* ve *V* değerlerinin basınca bağlı değişimi



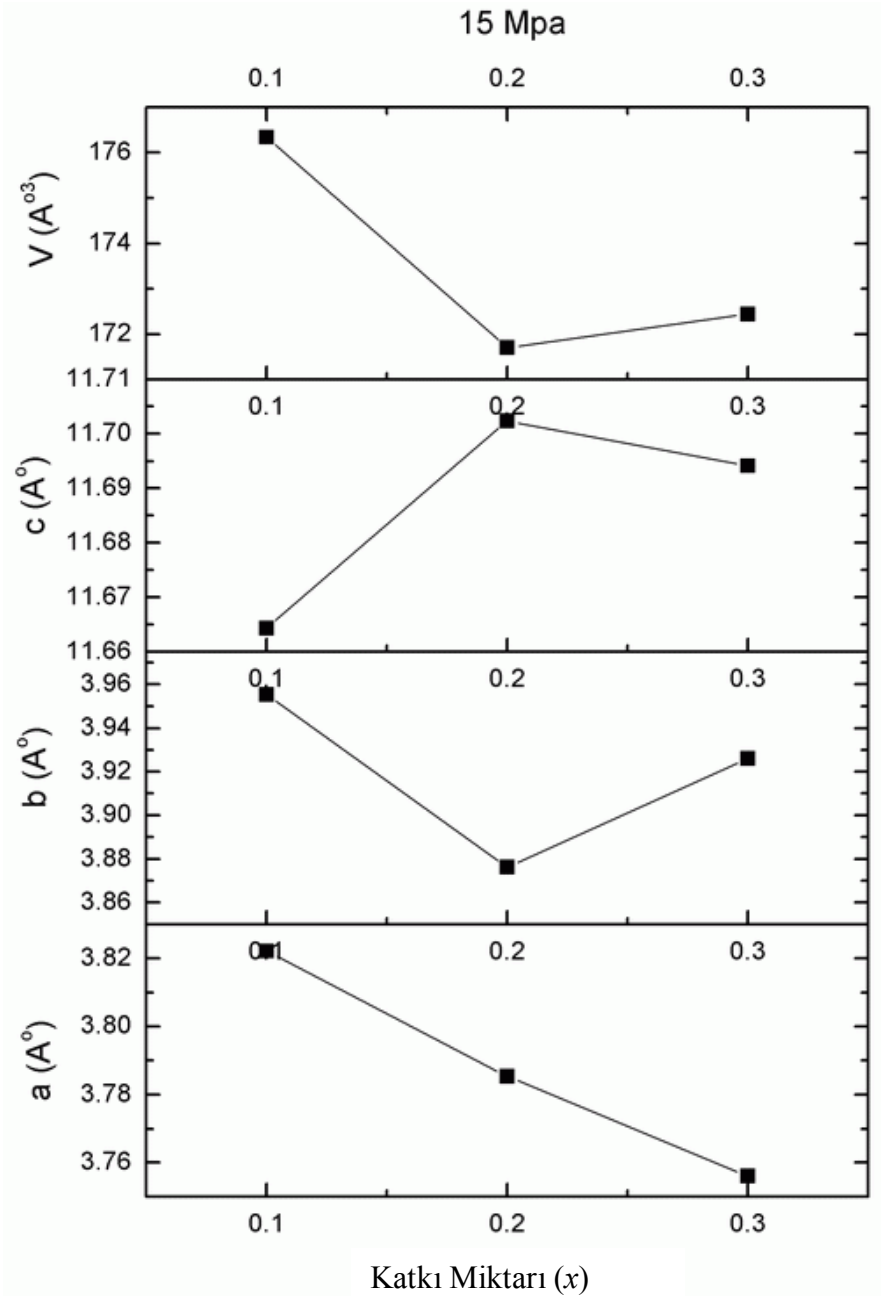
Şekil 4.15. A Serisine ait numunelerin *a, b, c* ve *V* değerlerinin basınca bağlı değişimi



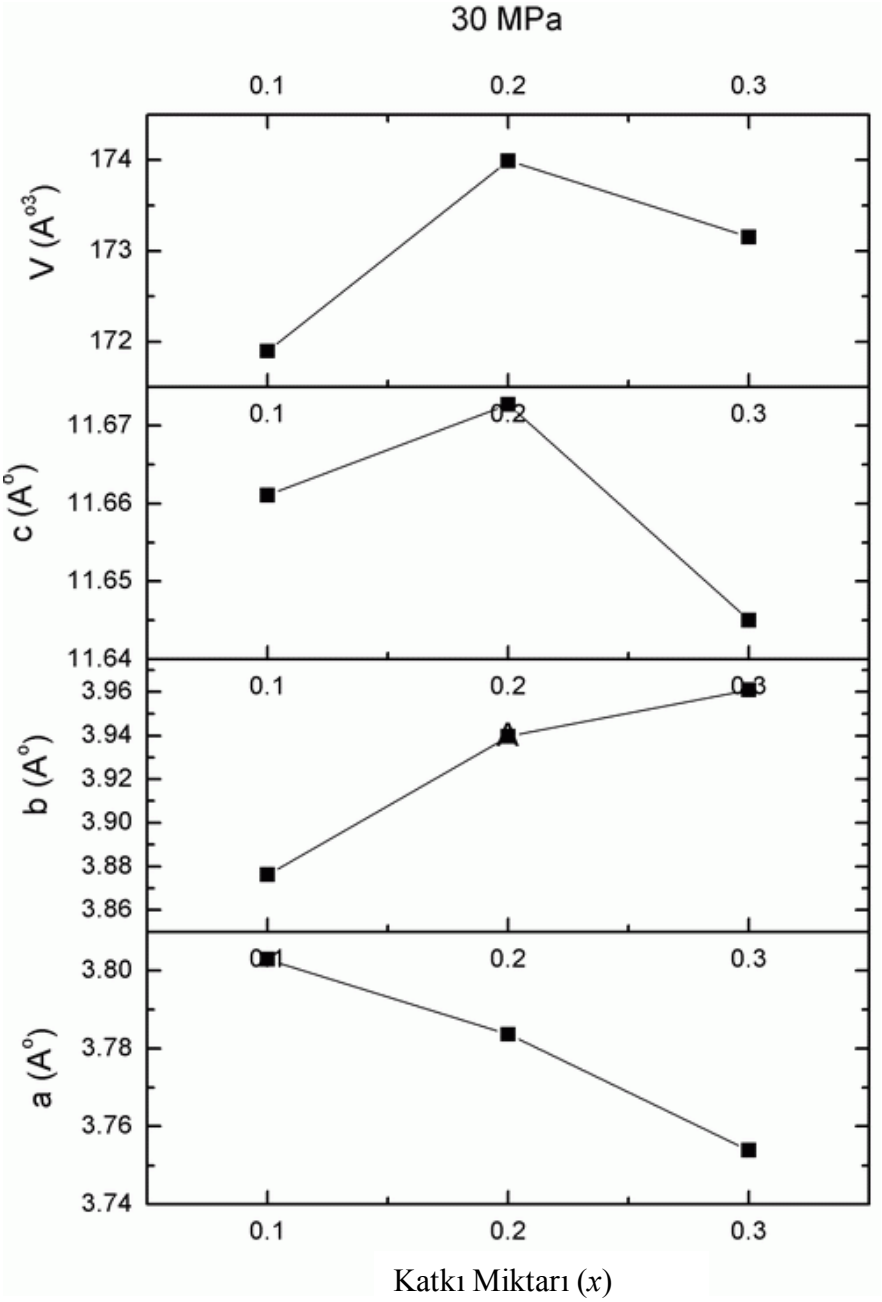
Şekil 4.16. B Serisine ait numunelerin *a, b, c* ve *V* değerlerinin basınca bağlı değişimi



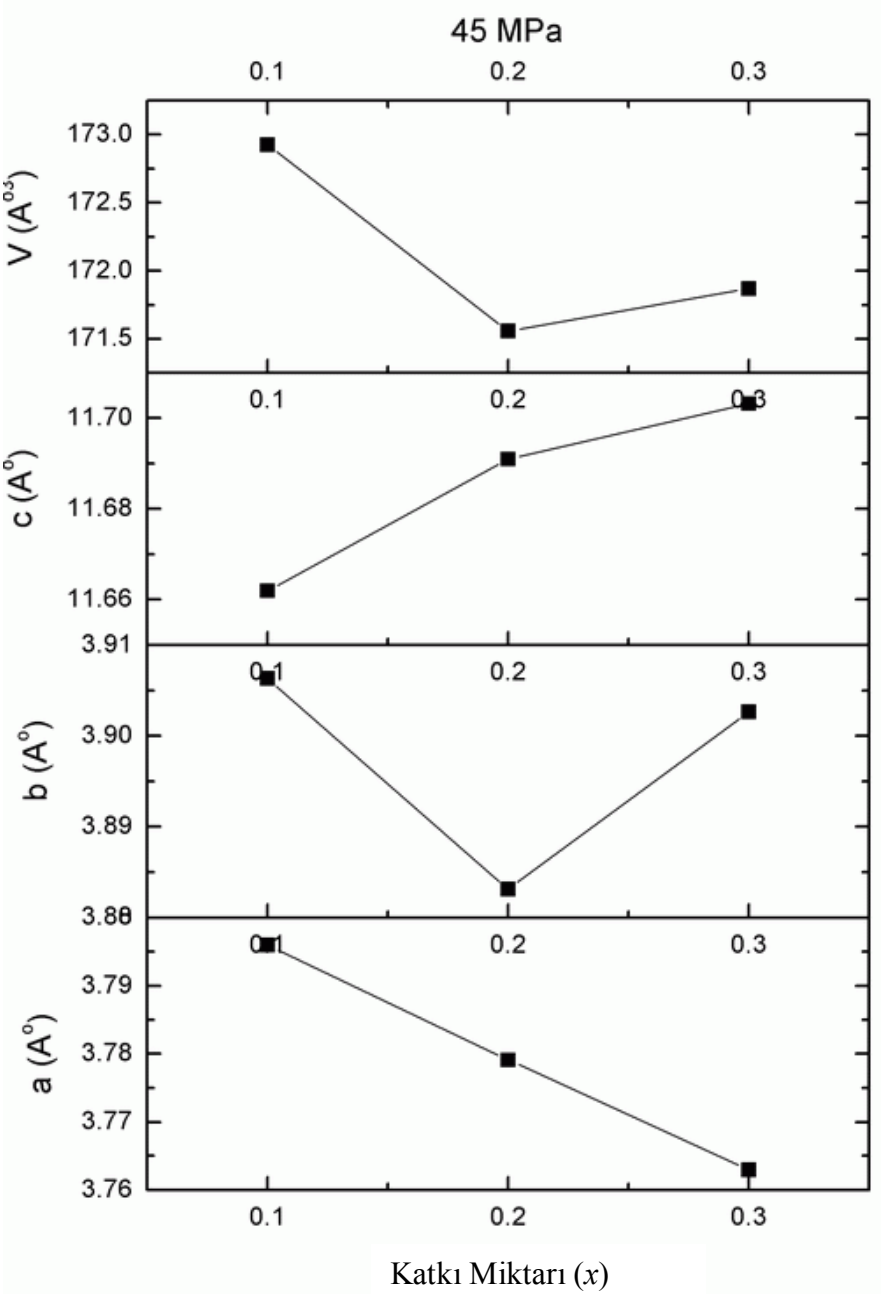
Şekil 4.17. C Serisine ait numunelerin *a, b, c* ve *V* değerlerinin basınca bağlı değişimi



Şekil 4.18. 15 *MPa* altında *a, b, c* ve *V* değerlerinin katkı miktarı *x*'e bağlı değişimi



Şekil 4.19. 30 *MPa* altında *a, b, c* ve *V* değerlerinin katkı miktarı *x*'e bağlı değişimi



Şekil 4.20. 45 *MPa* altında *a, b, c* ve *V* değerlerinin katkı miktarı *x*'e bağlı değişimi

4.3. Optik Fotoğraf Analizleri

Polarize ışık demeti altında sırasıyla saf YBCO, A, B ve C serisi malzemelerine ait çekilen fotoğraflar şekil 4.21-32'de verilmiştir. Optik görüntüler 500 kez büyütme ile elde edilmişlerdir. Polarize optik mikroskop ile çekilen fotoğrafların incelenmesinden süperiletken kristallerin oluştuğu, tanecik boyutlarının ve taneciklerin yönelimlerinin farklı olduğu açıkça görülmektedir. Mikrograflardaki siyah bölgeler boşlukları temsil etmektedir. Boşluk miktarının azalması kütlesel yoğunluğun artmasına neden olmaktadır. Ayrıca boşluk miktarının azalması sonucunda süperiletken özelliklerin iyileştiği bilinmektedir.

Şekil 4.21'de 15 *MPa* altındaki saf YBCO ya ait optik fotoğrafta, genel olarak küçük taneciklerden oluşmuş bir yapı göze çarpmaktadır. Taneciklerdeki farklı renk tonları tanecik yönelimlerinin keyfi olduğunu göstermektedir. Tanecik büyüklüklerinin aynı oldukları ve homojen sayılabilecek bir dağılıma sahip oldukları, tanecikler arası boşlukların ise büyük olduğu görülmektedir.

Şekil 4.22'de 30 *MPa* altındaki saf YBCO'ya ait optik fotoğrafta, şekil 4.21'e göre, tanecik büyüklüklerinde bir miktar küçülme, tanecikler arası boşluklarda ise azalmalar görülmektedir. Taneciklerdeki farklı renk tonları tanecik yönelimlerinin keyfi olduğunu göstermektedir.

Şekil 4.23'te 45 *MPa* altındaki saf YBCO'ya ait optik fotoğrafta, tanecik büyüklüklerinde bir miktar büyüme, tanecikler arası boşluklarda ise azalmalar görülmektedir. Taneciklerdeki farklı renk tonları tanecik yönelimlerinin keyfi olduğunu göstermektedir. Ayrıca meydana gelen kristallenmelerin şekil 4.21 ve şekil 4.22'ye göre daha fazla olduğu görülmektedir.

Şekil 4.24'te A1 numunesine ait optik fotoğrafta, tanecik boyutlarının saf YBCO'dan daha büyük olduğu ve tanecik yönelimlerinin keyfi olduğu göze çarpmaktadır.

Şekil 4.25'te A2 numunesine ait optik fotoğrafta, taneciklerin iri, tanecikler arası boşlukların az ve tanecik yönelimlerinin keyfi olduğu görülmektedir. Taneciklerin ortalama homojen sayılabilecek bir dağılım gösterdiği dikkat

çekmektedir. Ayrıca meydana gelen kristallenmelerin şekil 4.24 ve şekil 4.26'ya göre daha fazla olduğu görülmektedir.

Şekil 4.26'da A3 numunesine ait optik fotoğrafta, iri tanecikler arasında küçük tanecikler yerleştiği, tanecikler arası boşlukların küçük taneciklerle doldurulduğu, tanecik yönelimlerinin keyfi olduğu görülmektedir.

Şekil 4.27'de B1 numunesine ait optik fotoğrafta, taneciklerin iri olduğu, iri taneciklerin arasının küçük taneciklerle doldurulduğu, dağılımın homojen olmadığı ve tanecik yönelimlerinin keyfi olduğu görülmektedir.

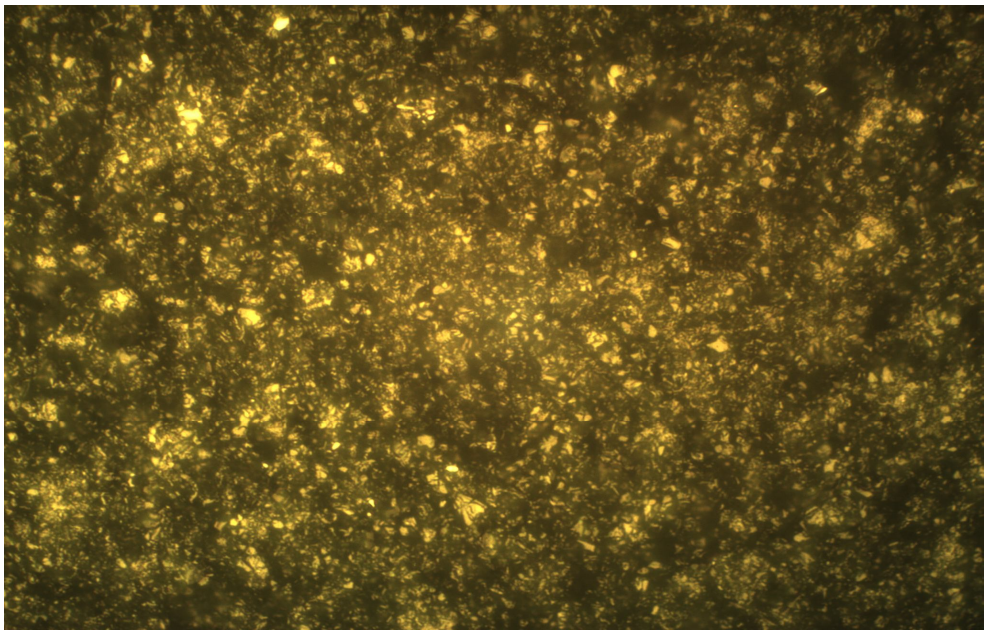
Şekil 4.28'de B2 numunesine ait optik fotoğrafta, taneciklerin iri olduğu, iri taneciklerin arasının küçük taneciklerle doldurulduğu, dağılımın genel anlamda homojen olduğu ve tanecik yönelimlerinin keyfi olduğu görülmektedir. Ayrıca meydana gelen kristallenmelerin şekil 4.27 ve şekil 4.29'a göre daha fazla olduğu görülmektedir.

Şekil 4.29'da B3 numunesine ait optik fotoğrafta, tanecik boyutlarının oldukça küçük, tanecik yönelimlerinin keyfi ve dağılımın genel anlamda homojen olduğu görülmektedir.

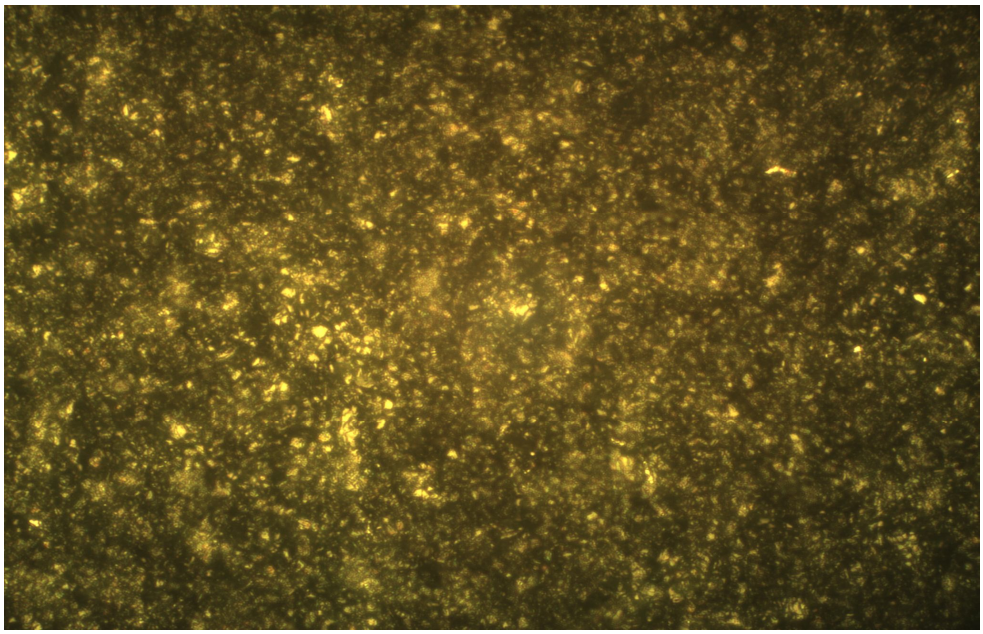
Şekil 4.30'da C1 numunesine ait optik fotoğrafta, taneciklerin iri, tanecik yönelimlerinin keyfi olduğu ve dağılımın homojen olmadığı görülmektedir.

Şekil 4.31'de C2 numunesine ait optik fotoğrafta, tanecik boyutlarının şekil 4.30'daki tanecik boyutlarına göre biraz küçüldüğü, tanecikler arası boşluğa daha küçük boyutlu taneciklerin yerleşerek homojen sayılabilecek bir dağılımın meydana geldiği ve tanecik yönelimlerinin keyfi olduğu görülmektedir.

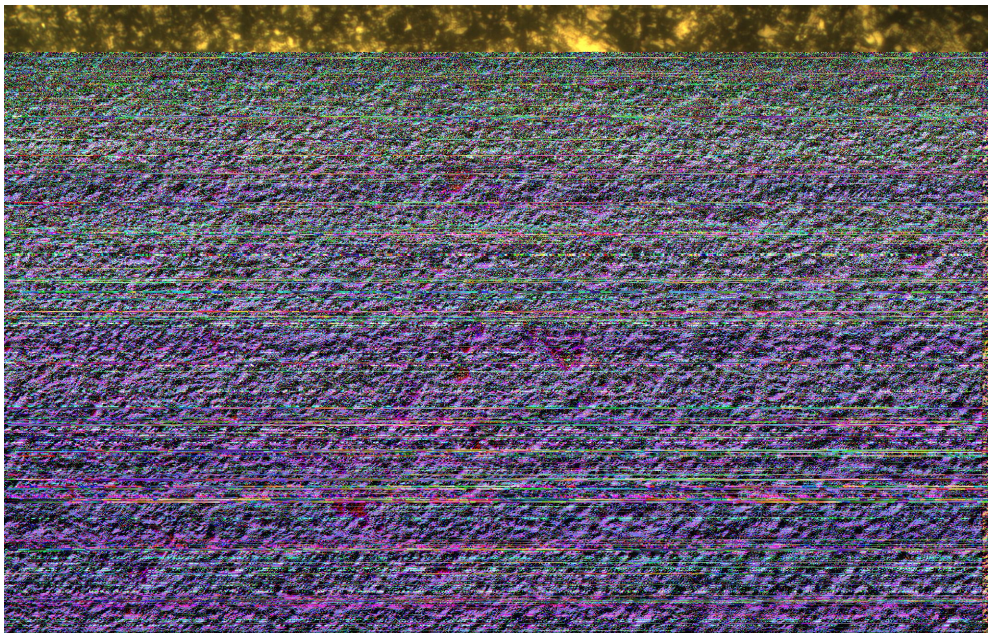
Şekil 4.32'de C3 numunesine ait optik fotoğrafta, belirgin iri taneciklerin arasına küçük boyutlu taneciklerin yerleşerek homojen olmayan bir dağılımın oluştuğu ve tanecikler arası boşlukların küçük olduğu görülmektedir. Ayrıca meydana gelen kristallenmelerin şekil 4.30 ve şekil 4.31'e göre daha fazla olduğu görülmektedir.



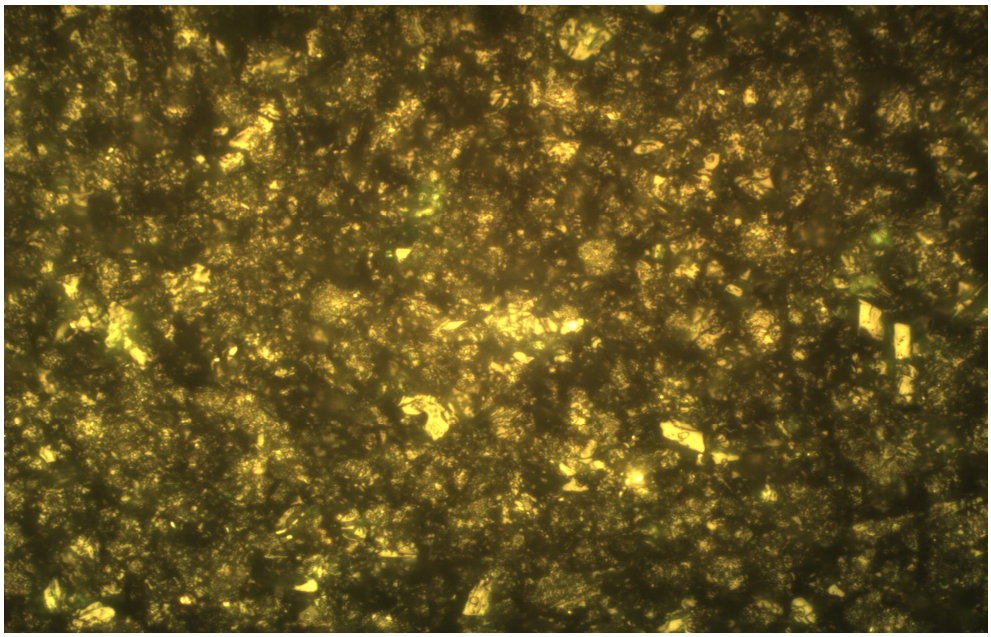
Şekil 4.21. 15 *MPa* altındaki saf YBCO'nun polarize optik mikroskopla çekilmiş fotoğrafı



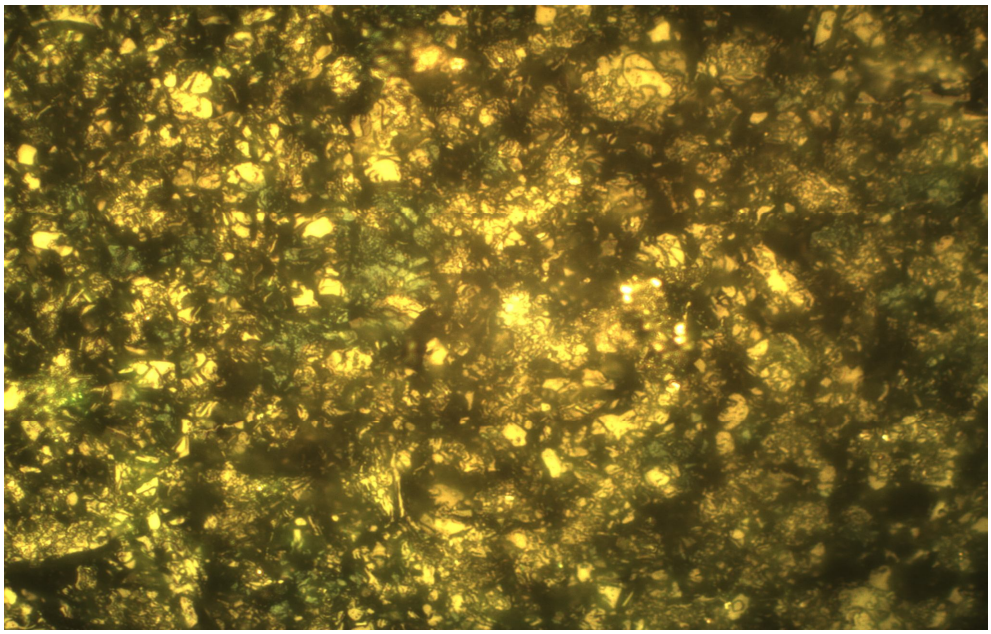
Şekil 4.22. 30 *MPa* altındaki saf YBCO'nun polarize optik mikroskopla çekilmiş fotoğrafı



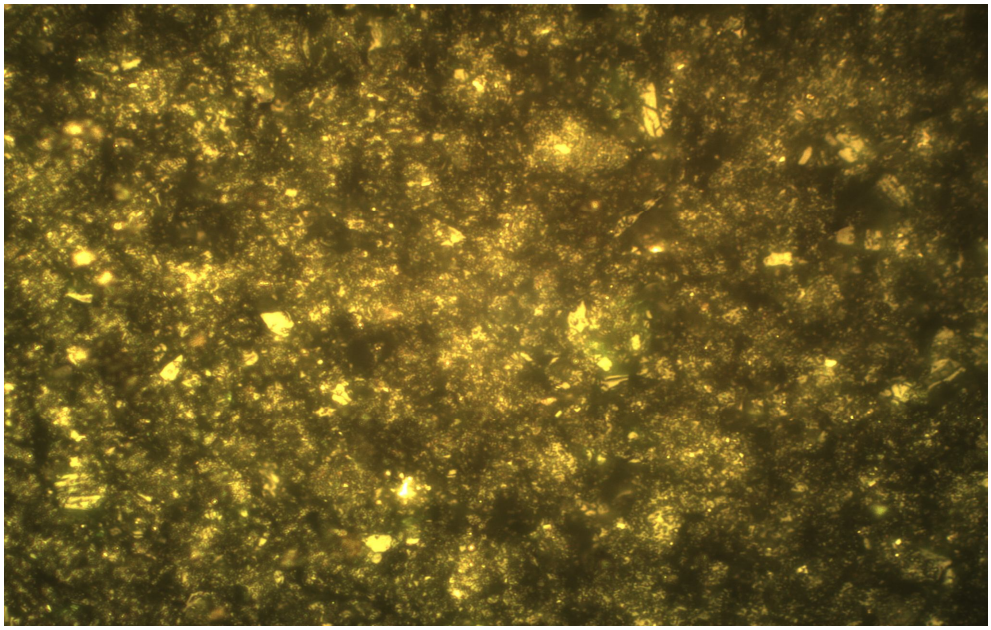
Şekil 4.23. 45 *MPa* altındaki saf YBCO'nun polarize optik mikroskopla çekilmiş fotoğrafı



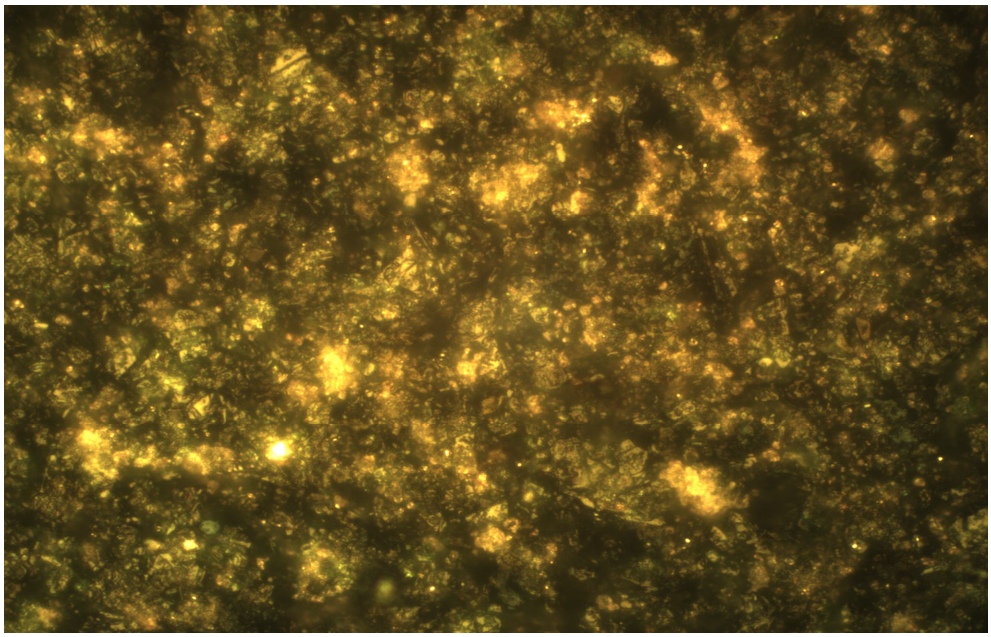
Şekil 4.24. A1 numunesinin polarize optik mikroskopla çekilmiş fotoğrafı



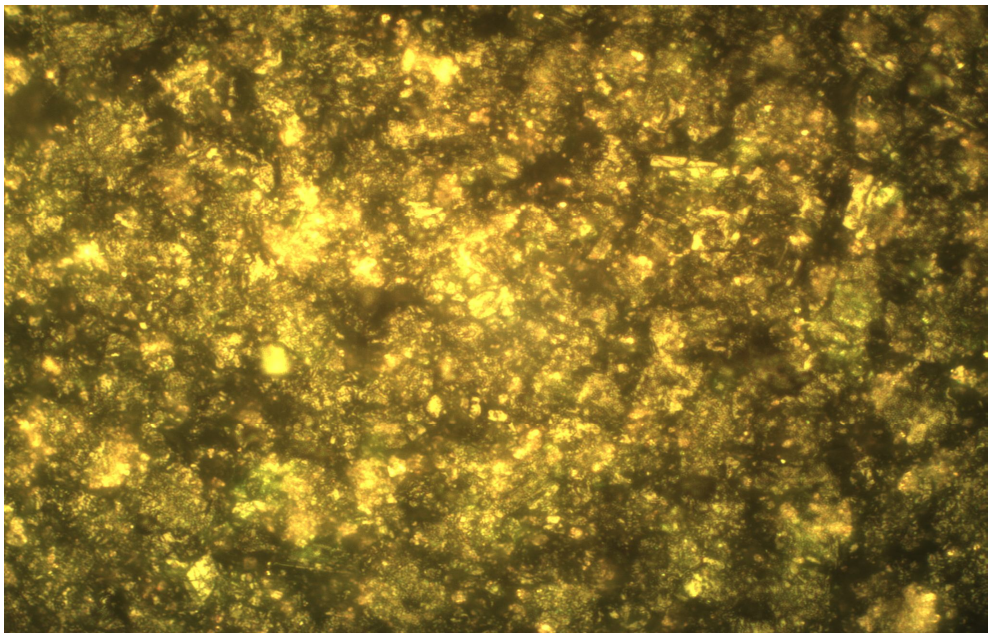
Şekil 4.25. A2 numunesinin polarize optik mikroskopla çekilmiş fotoğrafı



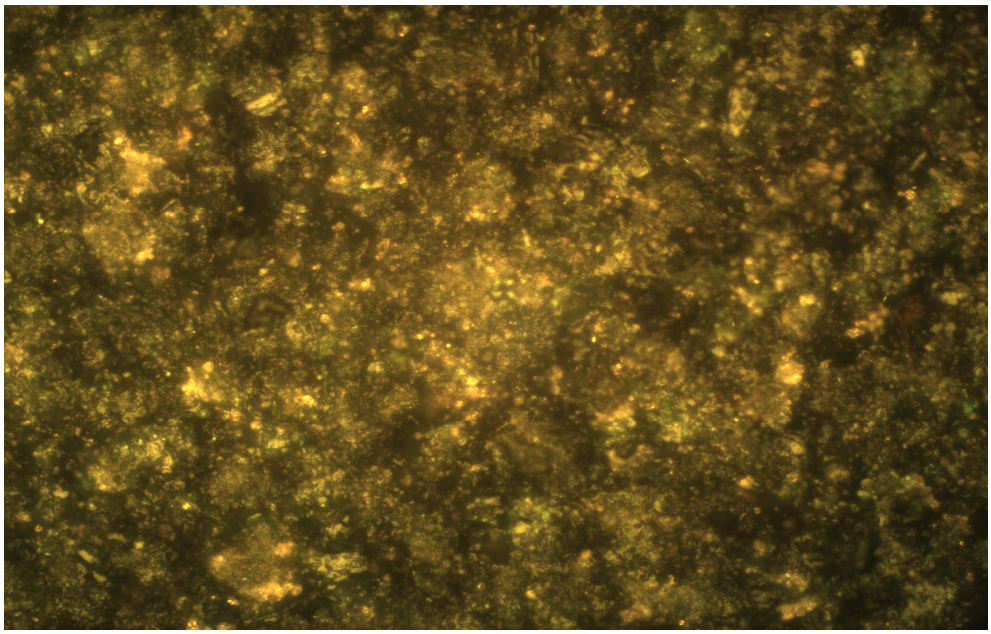
Şekil 4.26. A3 numunesinin polarize optik mikroskopla çekilmiş fotoğrafı



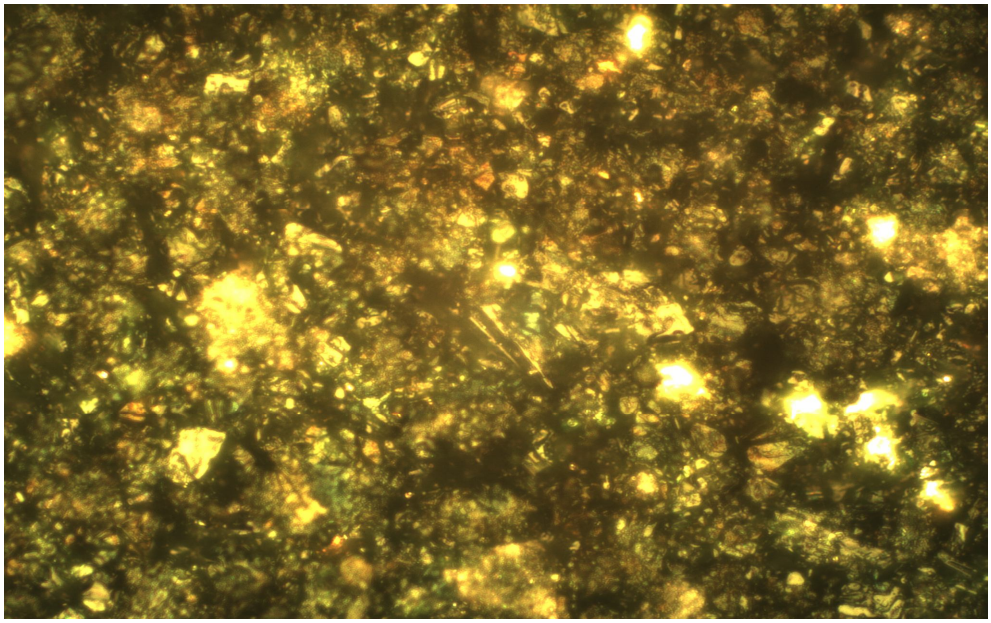
Şekil 4.27. B1 numunesinin polarize optik mikroskopla çekilmiş fotoğrafı



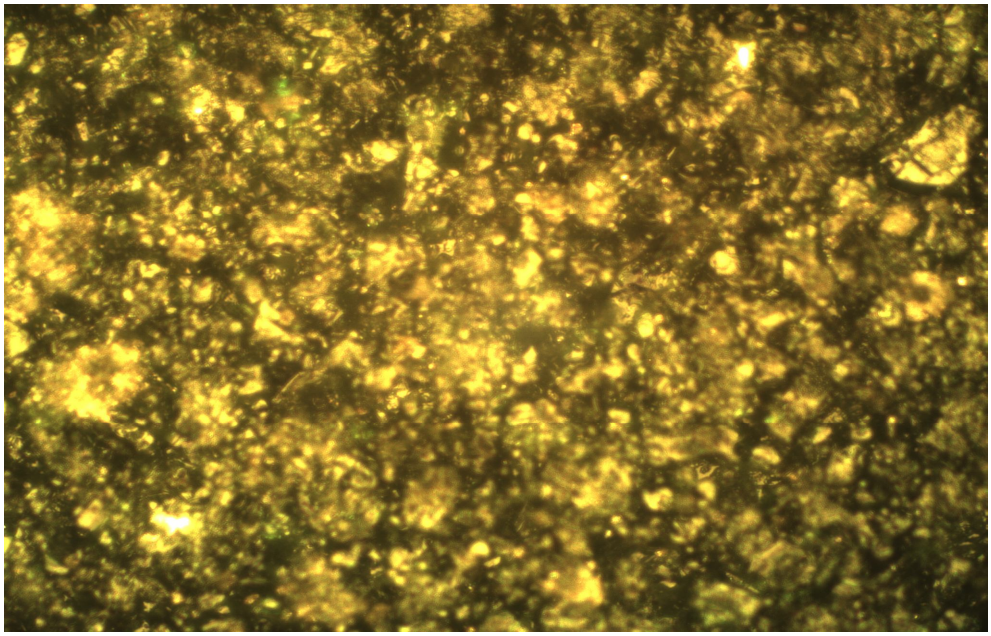
Şekil 4.28. B2 numunesinin polarize optik mikroskopla çekilmiş fotoğrafı



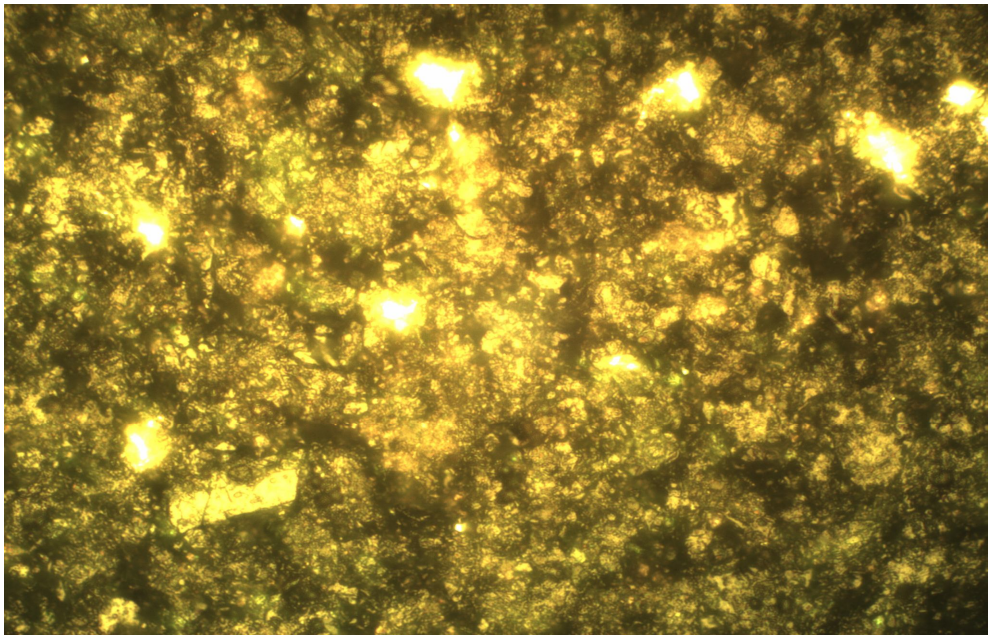
Şekil 4.29. B3 numunesinin polarize optik mikroskopla çekilmiş fotoğrafı



Şekil 4.30. C1 numunesinin polarize optik mikroskopla çekilmiş fotoğrafı



Şekil 4.31. C2 numunesinin polarize optik mikroskopla çekilmiş fotoğrafı



Şekil 4.32. C3 numunesinin polarize optik mikroskopla çekilmiş fotoğrafı

4.4. SEM Analizleri

Bazı kristal yapılar içinde değişik nedenlerle yönelimi çevresinden farklı bölgeler vardır ki bu bölgeler; tanecik (grain) olarak tanımlanmaktadır. Seramik süperiletkenlerdeki yüksek geçiş sıcaklığı ve düşük kritik akım yoğunluğunun başlıca sebebi tanecikli yapılarıdır. Bu çok küçük tanecikli yapılar SEM mikrofotoğrafları ile açık bir şekilde gözlenebilmektedir.

Y bölgesine Lu ve Cu bölgesine Ag katkılı $Y_{0.5}Lu_{0.5}Ba_2Cu_{3-x}Ag_xO_{7-\delta}$ bileşiklerinde tablet basıncının yapıda meydana getirdiği değişiklikleri analiz etmede SEM görüntülerinden faydalanılmıştır. Malzemelerin görüntüleri 3500 kez büyütme sonucu elde edilmiştir. SEM ile elde edilen fotoğraflardan tanecik büyüklükleri, tanecik yönelimleri, tanecik sınırları, tanecikler arası boşluklar, uygulanan ısıl işlemlerin tanecikte meydana getirdiği değişiklikler incelenmiştir. Ancak SEM fotoğraflarından elde edilen görüntülerde, arka kısımdaki tanecikler daha küçük, ön kısımdaki tanecikler ise daha büyük görüneceği için, tanecik büyüklüklerini nitel olarak ifade etmek daha doğru olur. Gerçek tanecik büyüklükleri XRD analizlerinden elde edilebilir. SEM görüntülerine bakıldığında tanecikler ve tanecikler arası boşluklar açıkça görülmektedir.

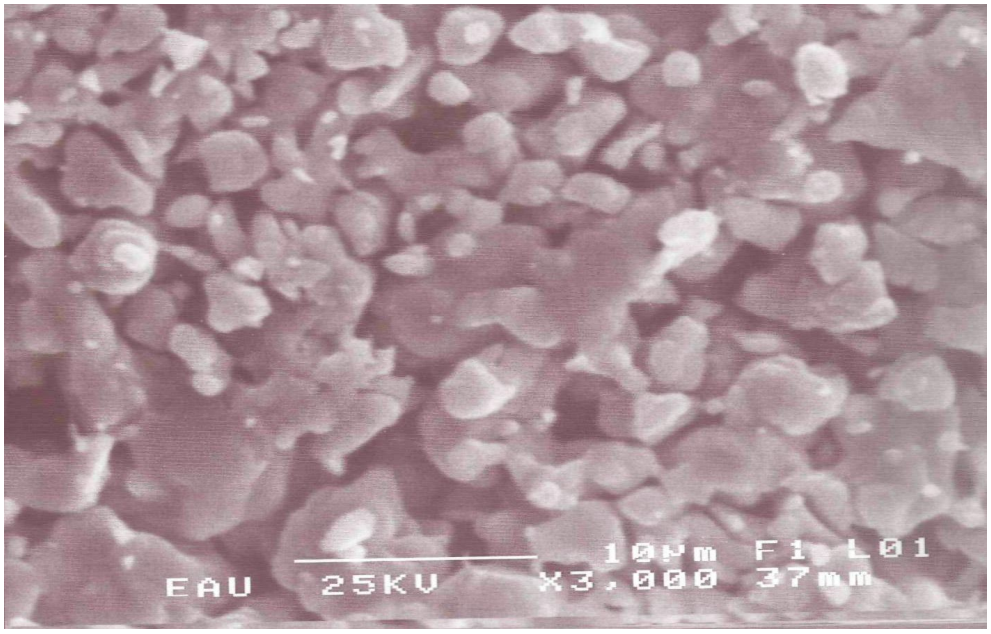
Sırasıyla saf YBCO, A, B ve C serisi malzemelerinden çekilen SEM görüntüleri şekil 4.33-44'te verilmiştir. Şekil 4.33-35'te saf YBCO'da taneciklerin genel olarak homojen sayılabilecek bir dağılım sergiledikleri ve tanecik yönelimlerinin keyfi olduğu görülmektedir. Artan basınç ile birlikte taneciklerin boyutlarında küçülmelerin olduğu, küçük tanecikli yapıların boşlukları doldurması ile tanecikler arası boşluklarda azalmaların olduğu görülmektedir.

Şekil 4.36-38'de A serisine ait SEM görüntülerinde, taneciklerin şekil 4.33-35'teki saf YBCO malzemesine oranla daha büyük olduğu ve artan basıncın etkisiyle küçüldükleri, katkılanan gümüş ve lutesyum atomlarının tanecikler arası boşluklara ve tanecik kıyılarına yerleştikleri görülmektedir. Taneciklerin birbirlerinden bağımsız olduğu, tanecikler arası boşlukların basınç artıkça azaldığı ve tanecikler için tercih edilebilir bir yönelim olmadığı anlaşılmaktadır.

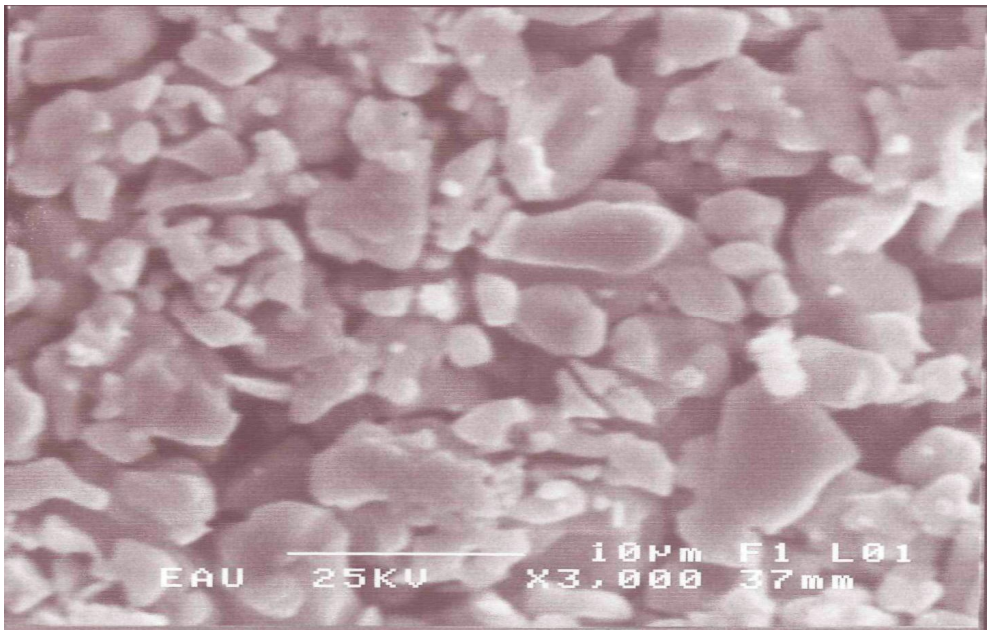
Şekil 4.39-41'de B serisine ait SEM görüntülerinde, tanecik boyutlarının artan basıncın etkisiyle azaldığı, tanecikler arası boşlukların katkılanan gümüş ve lutesyum atomlarının tanecikler arası boşluğa yerleşmesi sonucu azaldığı ve tanecikler için tercih edilebilir bir yönelimin olmadığı görülmektedir.

Şekil 4.42-44'te C serisine ait SEM görüntülerinde, tanecikler için tercih edilebilir bir yönelimin olmadığı görülmektedir. Şekil 4.43'te C serisine ait C2 numunesinin SEM görüntüsünde şekil 4.42'ye göre; tenecik boyutlarının daha büyük olduğu, katkı miktarının artması sonucunda gümüş ve lutesyum atomlarının daha fazla olduğu ve kümelendikleri görülmektedir. Şekil 4.44'te C serisine ait C3 numunesinin SEM görüntüsünde şekil 4.43'e göre; tenecik boyutlarının bazı bölgelerde daha büyük bazı bölgelerde de daha küçük olduğu, katkı miktarının artmasına rağmen gümüş ve lutesyum atomlarının daha seyrek olduğu görülmektedir.

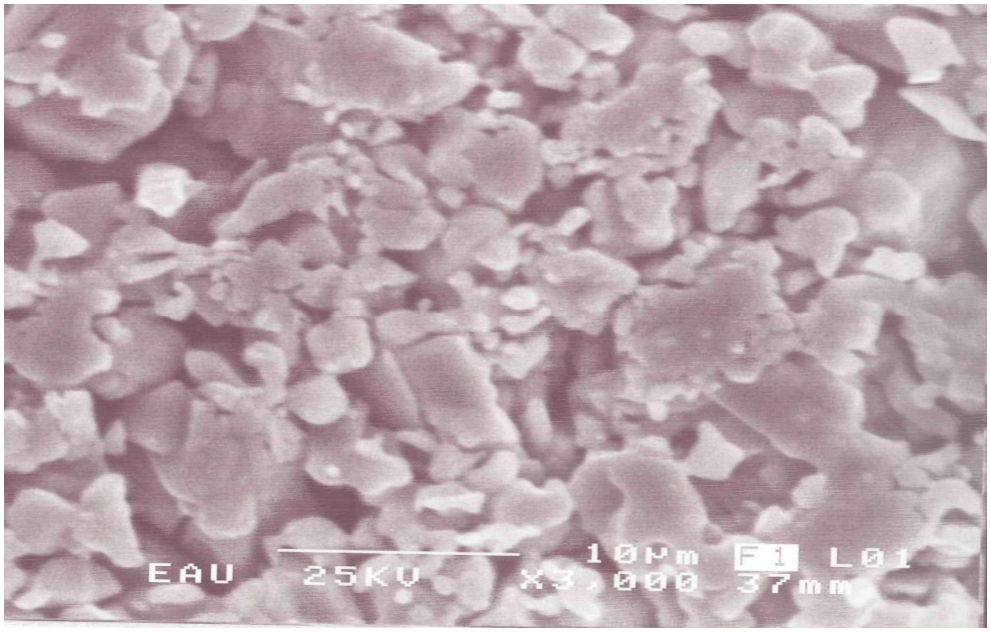
Bütün malzemelerde taneciklerin küçük ve birbirlerinden bağımsız olması uygulanan ısıl işlem için seçilen sıcaklığın az olduğunu göstermektedir.



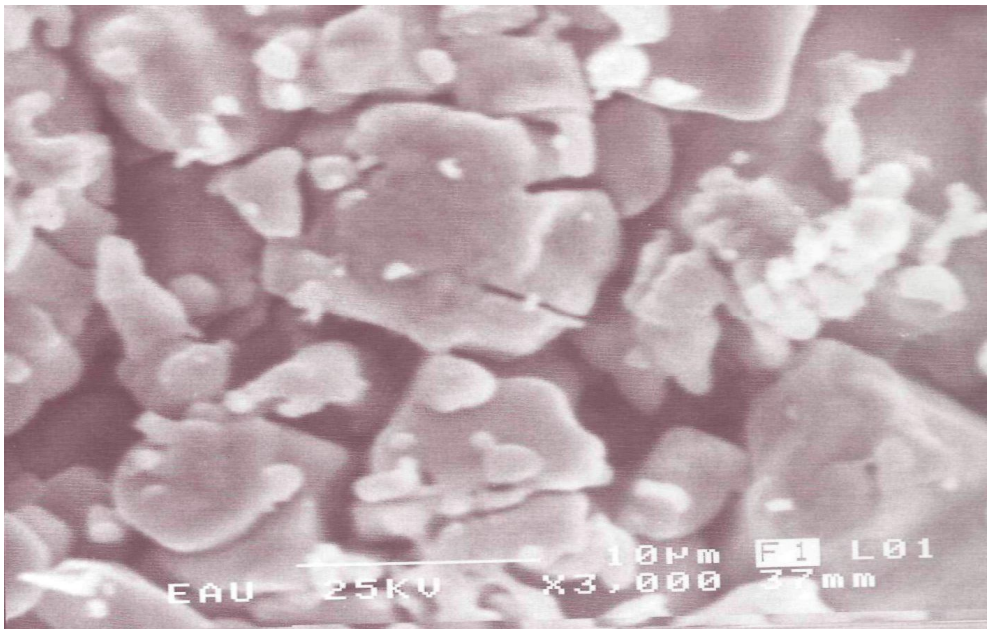
Şekil 4.33. 15 *MPa* altındaki saf YBCO'nun SEM görüntüsü



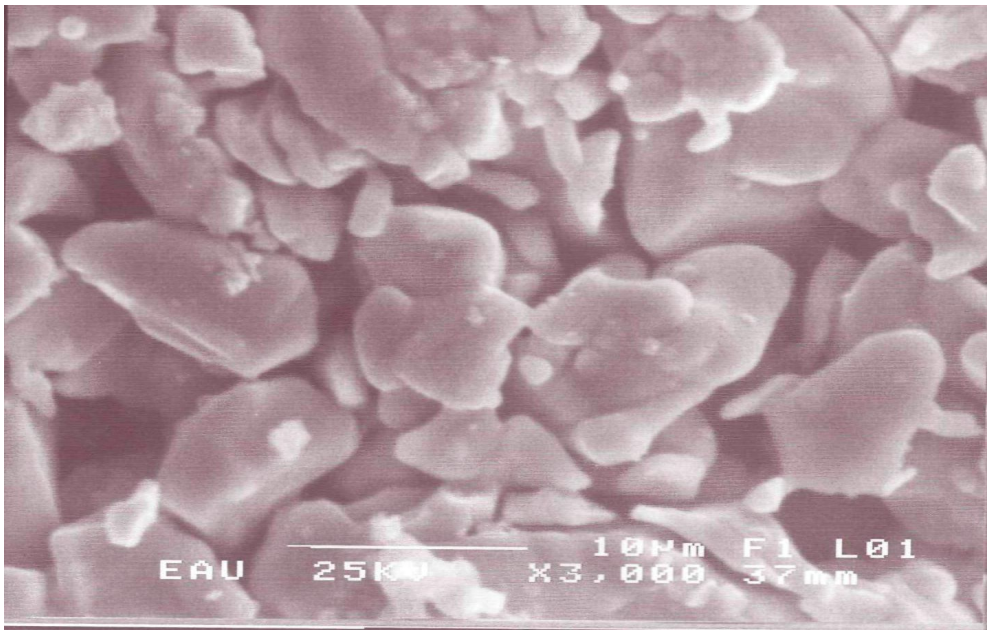
Şekil 4.34. 30 *MPa* altındaki saf YBCO'nun SEM görüntüsü



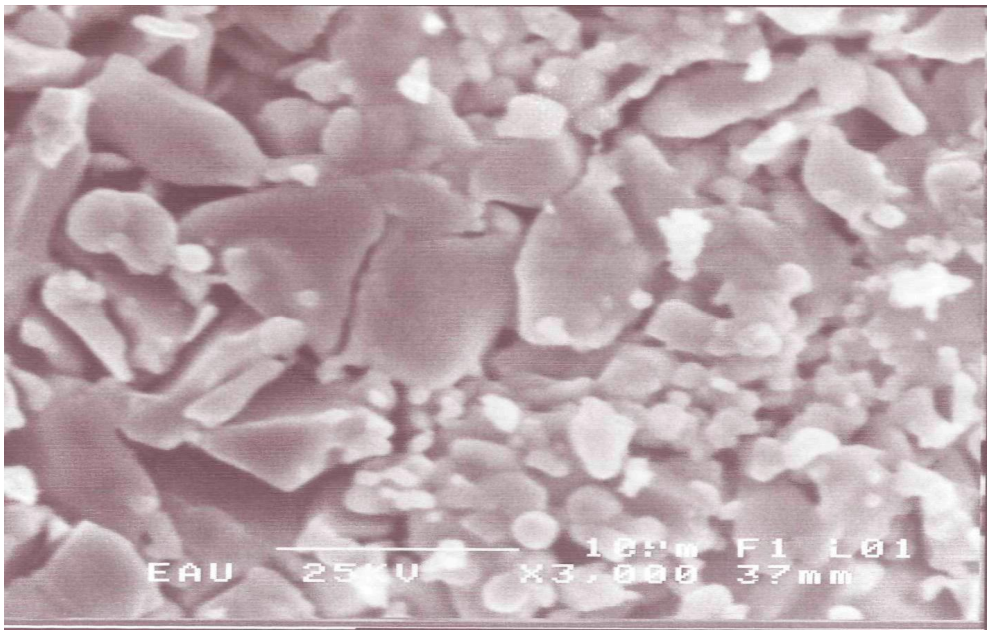
Şekil 4.35. 45 *MPa* altındaki saf YBCO'nun SEM görüntüsü



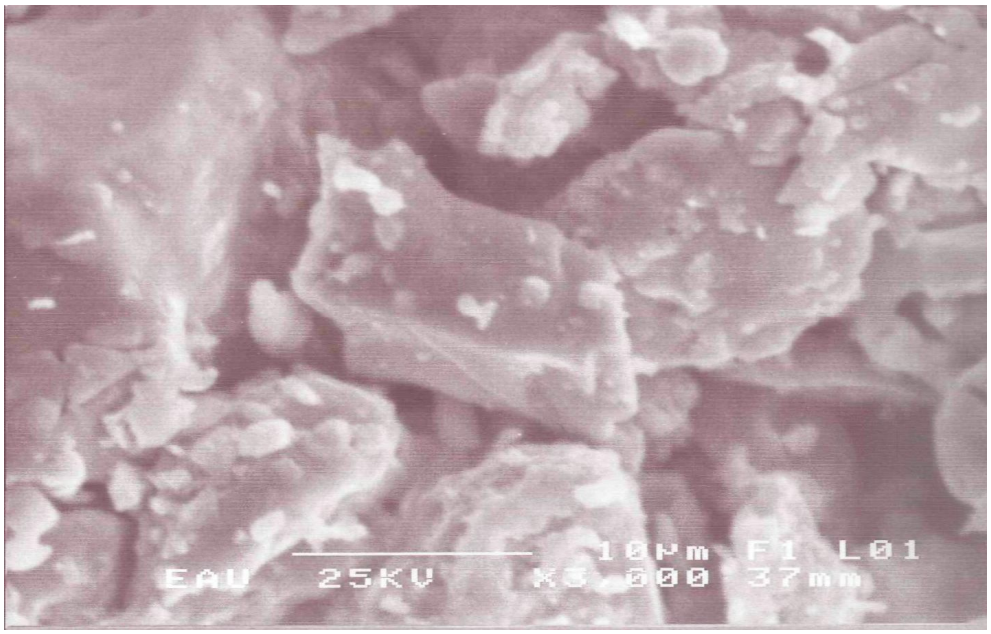
Şekil 4.36. A1 numunesinin SEM görüntüsü



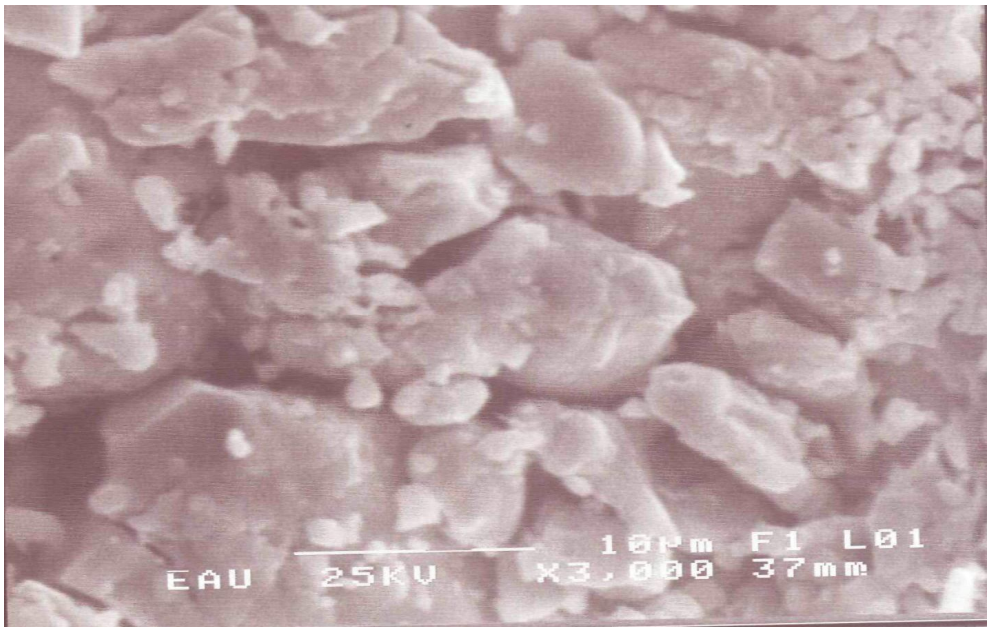
Şekil 4.37. A2 numunesinin SEM görüntüsü



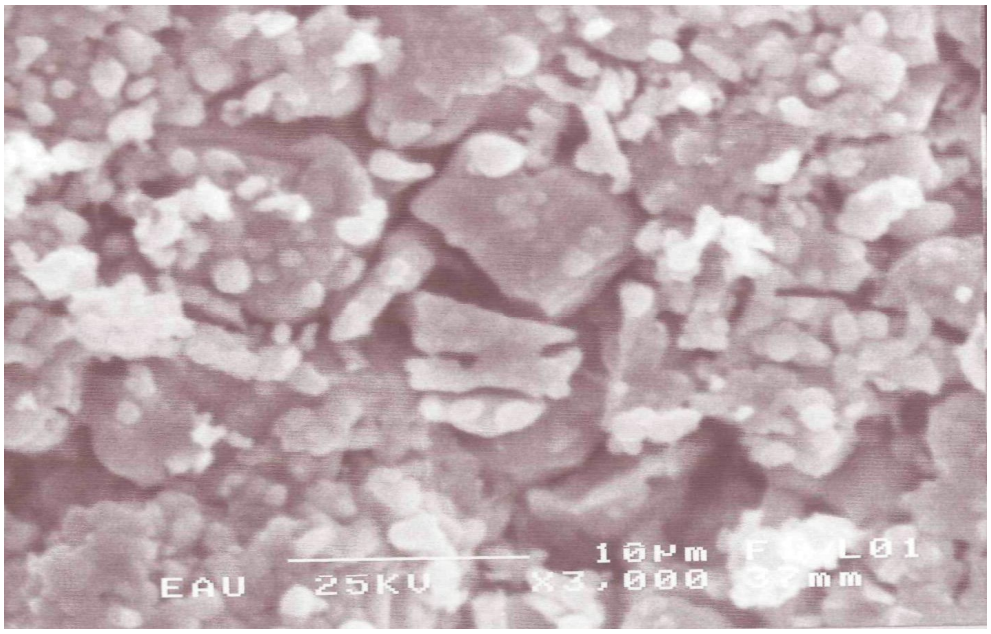
Şekil 4.38. A3 numunesinin SEM görüntüsü



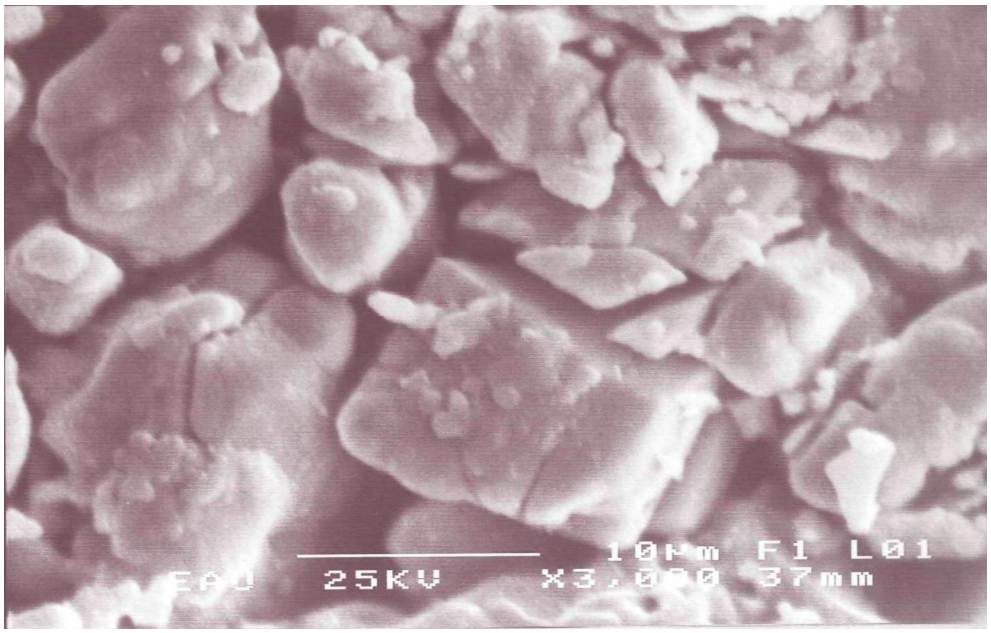
Şekil 4.39. B1 numunesinin SEM görüntüsü



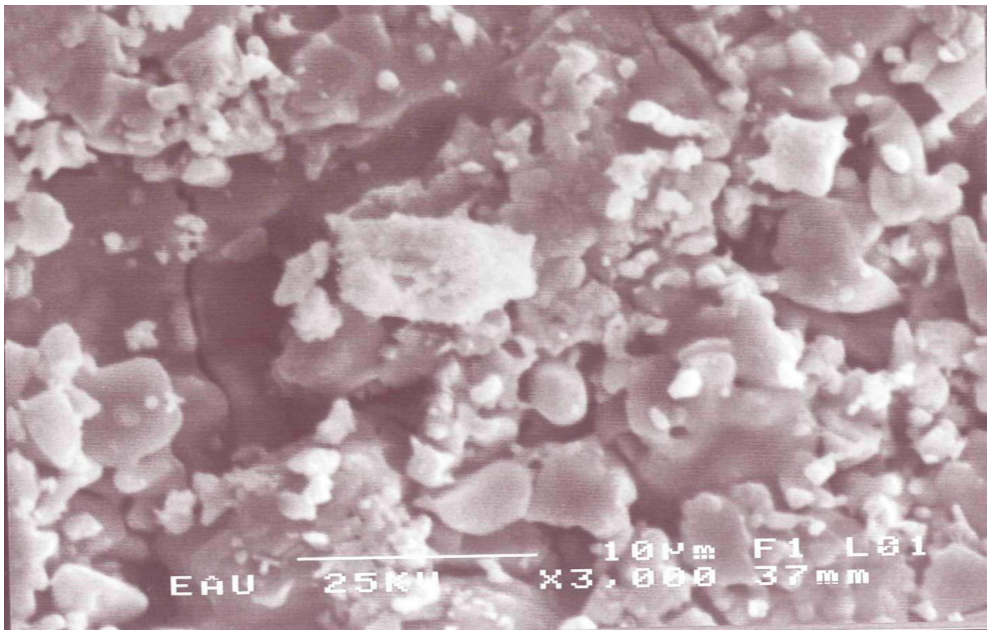
Şekil 4.40. B2 numunesinin SEM görüntüsü



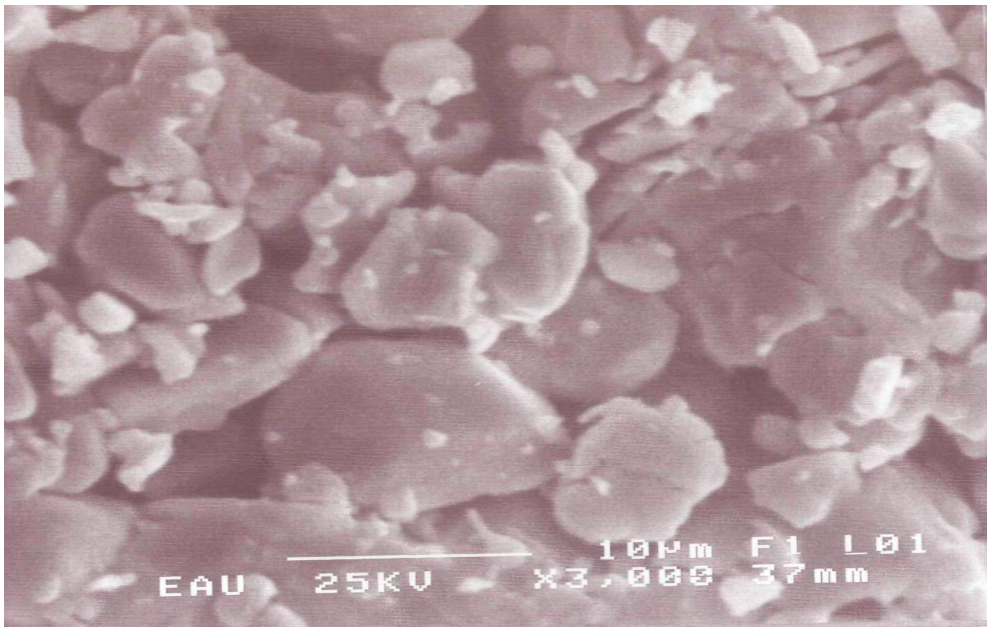
Şekil 4.41. B3 numunesinin SEM görüntüsü



Şekil 4.42. C1 numunesinin SEM görüntüsü



Şekil 4.43. C2 numunesinin SEM görüntüsü



Şekil 4.44. C3 numunesinin SEM görüntüsü

4.5. Yoğunluk Analizi

Sentezlenen bütün numunelerin yoğunlukları tablo 4.2'de verilmiştir. 15, 30, 45 *MPa* sabit basınçlarda numunelerin belirlenen yoğunluklarının katkı miktarına (x) bağlı değişimleri şekil 4.45-47'de, saf YBCO'ya ve A, B, C serilerine ait numunelerin yoğunluklarının basınca bağlı değişimleri de şekil 4.48-51'de verilmiştir.

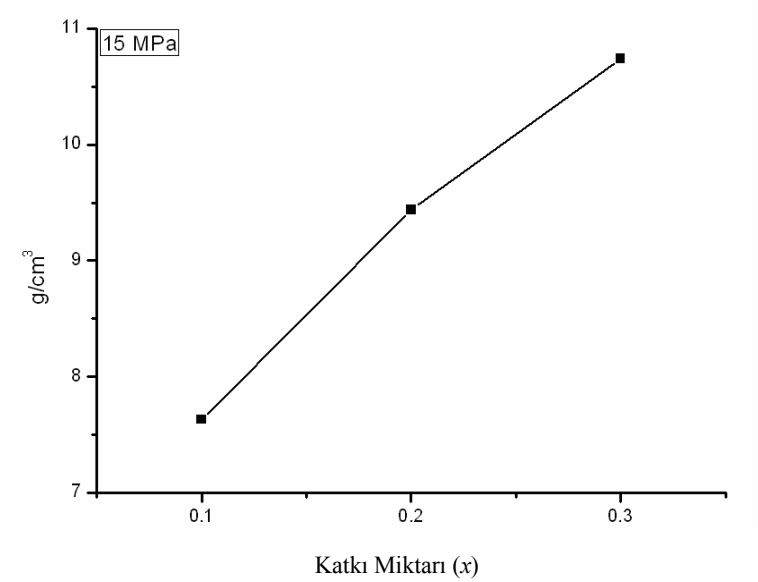
15 *MPa* sabit basınçta gümüş katkısı x arttıkça numunelerin yoğunlukları da artmaktadır (Şekil 4.45). 30 *MPa* sabit basınçta gümüş katkısı arttıkça numunelerin yoğunlukları azalmaktadır (Şekil 4.46). 45 *MPa* sabit basınçta gümüş miktarı x ile numune yoğunluğu arasında düzgün bir ilişki bulunmamaktadır. Numune yoğunluğunda $x = 0.2$'de artma gözlenirken $x = 0.3$'te azalma gözlenmiştir (Şekil 4.47).

Saf YBCO'da basınç 15 *MPa*'dan 30 *MPa*'a arttırıldığında numune yoğunluğu artmaktadır. Basınç 30 *MPa*'dan 45 *MPa*'a arttırıldığında ise numune yoğunluğu azalmaktadır (Şekil 4.48).

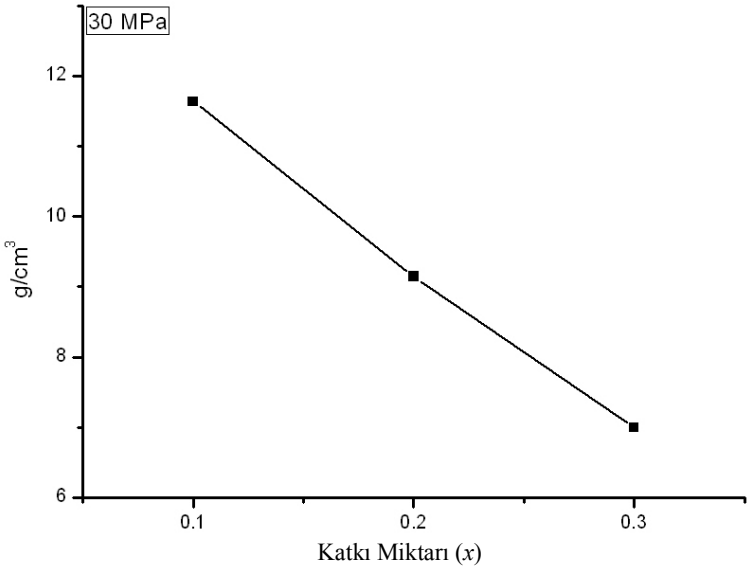
A serisine ait numunelerin yoğunlukları; basınç 15 *MPa*'dan 30 *MPa*'a arttırıldığında artmış, basınç 30 *MPa*'dan 45 *MPa*'a artırıldığında ise azalmıştır (Şekil 4.49). B serisine ait numunelerin yoğunlukları; basınç 15 *MPa*'dan 30 *MPa*'a arttırıldığında azalmış, basınç 30 *MPa*'dan 45 *MPa*'a artırıldığında ise artmıştır (Şekil 4.50). C serisine ait numunelerin yoğunlukları da basınç 15 *MPa*'dan 30 *MPa*'a arttırıldığında azalmış, basınç 30 *MPa*'dan 45 *MPa*'a artırıldığında artmıştır (Şekil 4.51).

Tablo 4.2. Numunelerin yoğunlukları (*d*)

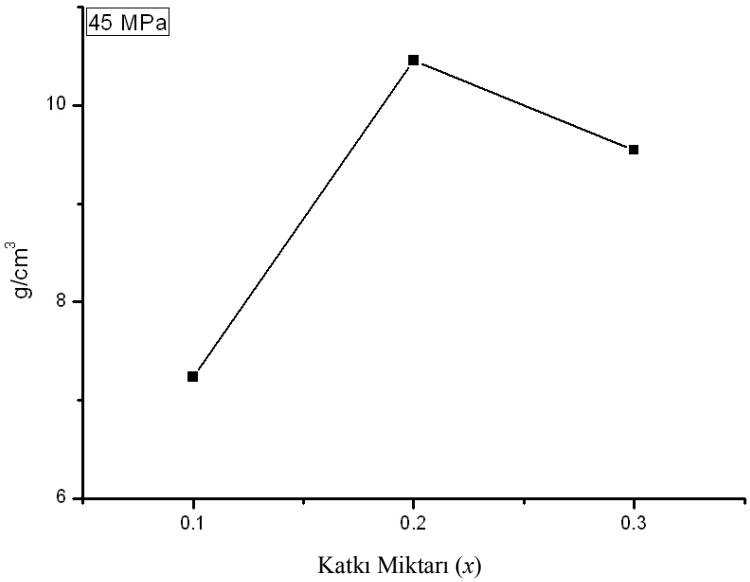
Numune	**Yoğunluk** ***d* (*g* / *cm*^{3})**
Saf YBCO (15 *MPa*)	9.4975
Saf YBCO (30 *MPa*)	11.685
Saf YBCO (45 *MPa*)	6.6866
A1	7.63
A2	11.64
A3	7.2366
B1	9.4375
B2	9.1475
B3	10.455
C1	10.74
C2	6.995
C3	9.5425



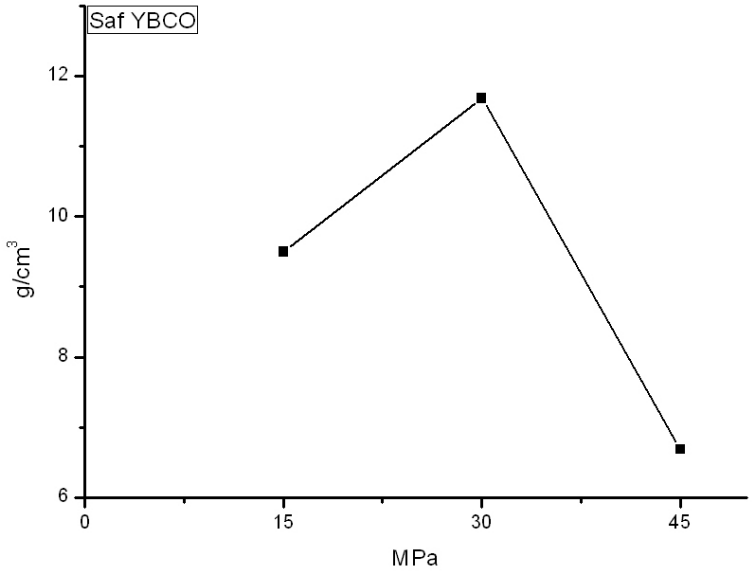
Şekil 4.45. 15 *MPa* basınçta numunelerin yoğunluklarının katkı miktarına (*x*) bağlı değişimi



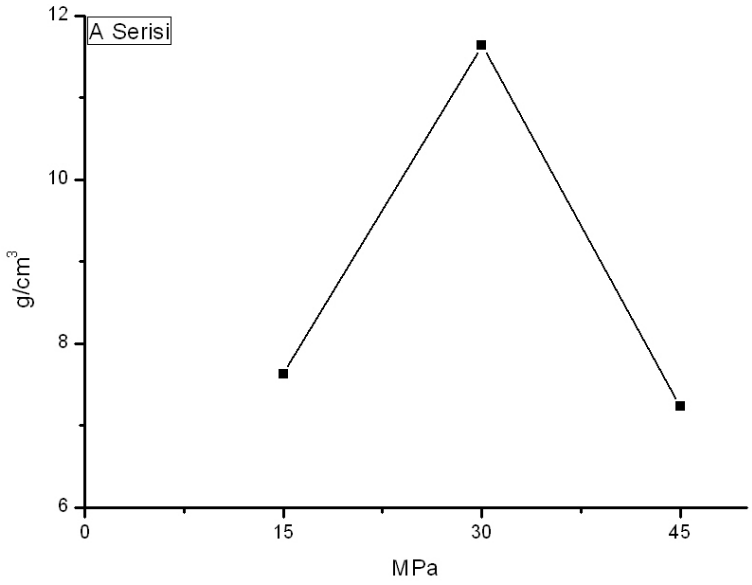
Şekil 4.46. 30 *MPa* basınçta numunelerin yoğunluklarının katkı miktarına (x) bağlı değişimi



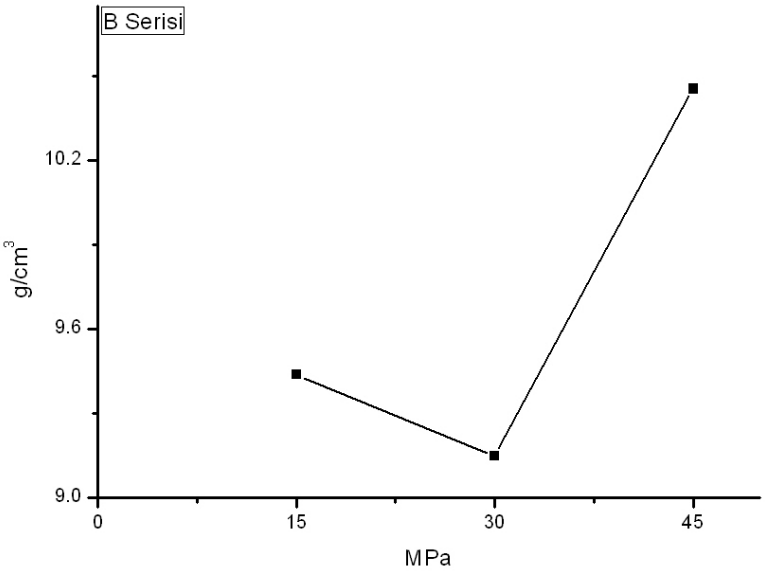
Şekil 4.47. 45 *MPa* basınçta numunelerin yoğunluklarının katkı miktarına (x) bağlı değişimi



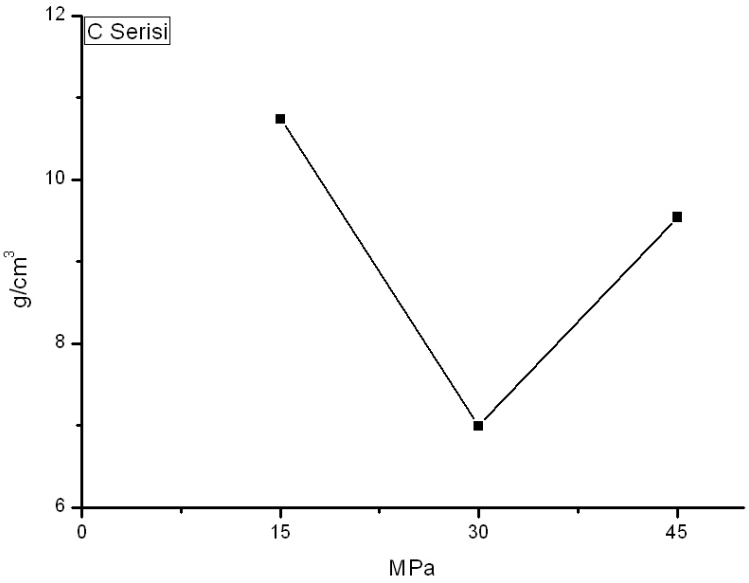
Şekil 4.48. Saf YBCO'da yoğunluğun basınca bağlı değişimi



Şekil 4.49. A serisine ait numunelerin yoğunluklarının basınca bağlı değişimi



Şekil 4.50. B serisine ait numunelerin yoğunluklarının basınca bağlı değişimi



Şekil 4.51. C serisine ait numunelerin yoğunluklarının basınca bağlı değişimi

5. SONUÇ VE TARTIŞMA

Yüksek sıcaklık süperiletkenliğin keşfinden günümüze kadar süperiletkenlik üzerine çok sayıda çalışma yapılmıştır. Bu çalışmaların birçoğu süperiletken bileşikteki bir element yerine başka bir elementin katkılanması şeklinde olmuştur. İyi bilinen bir süperiletken bileşik olan YBCO bileşiğinin yapısal ve süperiletkenlik özellikleri üzerine element katkılanmasının etkisi yoğun bir şekilde incelenmiştir. Bu çalışmada; YBCO süperiletken malzemesinde Y bölgesine Lu ve Cu bölgesine de Ag atomu katkılanmıştır. Nadir toprak elementlerinden olan Lu'nun Y ile yerdeğiştirmesinin atomik büyüklük gibi bazı atomik özellikler açısından müsait olduğu tesbit edilmiştir **[55-60].** Y bölgesine geçmesi muhtemel olan nadir toprak elementlerinden Lu'yu seçmesinin nedeni; Lu elementinin nadir toprak elementleri içinde en az bulunmasıdır. Bu bağlamda literatürde Y bölgesine Lu katkılamasına ait fazla veriye rastlanamayışı araştırmayı alanında önemli kılmaktadır. Cu bölgesine Ag atomu katkılanmasının nedeni ise gümüşün kristal yapı ve süperiletken özellikler üzerinde olumlu etkilere sahip olduğunun bilinmesidir. Literatürde Ag katkılı YBCO numuneleri ile katkısız numuneler karşılaştırıldığında Ag katkısının numunelerin kristallenme oranını, *c* ekseni yönünde yönelimini, *c* örgü parametresini, kritik sıcaklığını ve kritik akım yoğunluğunu artırdığı, numunelerin özdirencini ise azalttığı tesbit edilmiştir **[5, 61-78].**

Bakır oksit süperiletkenlerinin büyük bir çoğunluğu sadece yüksek basınç ve yüksek sıcaklık altında sentezlenerek hazırlanmaktadır. Özellikle yüksek basınçlarda birçok element ve bileşiklerin süperiletken özellik gösterdikleri bilinmektedir. Bu çalışmada, YBCO'nun değişik tablet basınçlarında yapısal özelliklerinin incelenmesi amaçlanmıştır. Bu nedenle numuneler sentezlendikten sonra her birine 15, 30, 45 *MPa* büyüklüğünde yüksek basınç uygulanarak tabletler haline getirilmiştir. Farklı tablet basınçlarındaki yapısal özellikler incelenmiştir.

Bu amaçla; Y bölgesine Lu ve Cu bölgesine de Ag katkılaması yapılmş ve 15, 30, 45 *MPa* basınçlar uygulanarak üç seri şeklinde dokuz adet tablet halinde numuneler elde edilmiştir. Bu seriler, A serisi ($Y_{0.5}Lu_{0.5}Ba_2Cu_{3-x}Ag_xO_{7-\delta}$ $x = 0.1$), B

serisi ($Y_{0.5}Lu_{0.5}Ba_2Cu_{3-x}Ag_xO_{7-\delta}$ x = 0.2) ve C serisinden ($Y_{0.5}Lu_{0.5}Ba_2Cu_{3-x}Ag_xO_{7-\delta}$ x = 0.3) oluşmaktadır. Üretilen bu üç seri halindeki numunelere referans teşkil etmesi amacıyla saf $YBa_2Cu_3O_{6.5}$ malzemesine 15, 30, 45 *MPa* basınç uygulanarak üç adet tablet numune daha elde edilmiştir. Böylece toplam on iki numune sentezlenmiştir. Saf $YBa_2Cu_3O_{6.5}$ malzemesinde basıncın ve $Y_{0.5}Lu_{0.5}Ba_2Cu_{3-x}Ag_xO_{7-\delta}$ malzemesinde de katkı miktarı ile basıncın kristal yapı ve süperiletken özellikler üzerinde etkisi incelenmiştir. Hazırlanan numunelerin x-ışını kırınımı (XRD) desenleri, optik fotoğrafları, taramalı elektron mikroskobu (SEM) fotoğrafları ile yoğunluk analizleri sonucu elde edilen bulgular incelenmiş ve aşağıdaki sonuçlara ulaşılmıştır:

15, 30, 45 *MPa* altındaki saf YBCO'ya ait x-ışını kırınım desenlerinde 123 yapısına ait olan (002), (003), (100), (012), (102), Y_2O_3 (200), (013), (103), (111), (112), (005), (113), (114), (006), (020), (200), (115), (106), (116), (213) pikleri görülmüştür. 211 yarı-iletken yapısına ait yalnızca 30.52^o'de (211) piki düşük şiddette görülmüştür. Basınç değişimi ile birlikte (013) ve (103) piklerinin şiddetlerindeki değişim dışında belirgin bir fark oluşmamıştır. Farklı basınçlarda piklerin şiddetlerindeki değişim, tanecik yönelimlerinin de değiştiğini göstermektedir.

Saf YBCO için hesaplanan örgü parametreleri 15 *MPa*'da, a = 3.83279 A^o, b = 3.86725 A^o ve c = 11.65433 A^o, 30 *MPa*'da, a = 3.83642 A^o, b = 3.86568 A^o ve c = 11.66270 A^o, 45 *MPa*'da ise a = 3.83842 A^o, b = 3.86517 A^o ve c = 11.66248 A^o olarak bulunmuştur. Özellikle c örgü parametresi 15-30 *MPa* aralığında artmıştır. Bu sonuçtan süperiletken özelliklerin iyileştiği söylenebilir. c örgü parametresi 30-45 *MPa* aralığında hafifçe azalmıştır. Dolayısı ile YBCO süperiletken numunelerin hazırlanmasında düşük basınç tercih edilmelidir. Yılmaz, saf YBCO'ya 6.8948 *MPa* büyüklüğünde basınç uygulayarak örgü parametrelerinin a = 3.82979 A^o, b = 3.89105 A^o ve c = 11.69979 A^o olduğunu hesaplamıştır **[79].**

Şekil 4.15-17'den görüldüğü üzere A, B ve C serisi numunelerinde 15-30 *MPa* basınç aralığında c örgü parametreleri azalırken, 30-45 *MPa* basınç aralığında c örgü parametreleri artmıştır. Dolayısı ile, Lu ve Ag katkılı A, B ve C serisi numunelerinin hazırlanması esnasında tablet basıncının bir miktar artması yapısal özellikleri iyileştirmektedir. Halbuki saf YBCO için düşük tablet basıncı yapısal özellikleri daha da iyileştirmektedir.

Y'nin atom çapı 2.27 A^o, Lu'nun atom çapı 2.25 A^o, Cu'nun atom çapı 1.57 A^o, Ag'nin atom çapı ise 1.75 A^o dur. Y bölgesine Lu, Cu bölgesine de Ag katkısı arttığında örgü parametrelerinde azalma beklenilmelidir. Şekil 4.18'de 15 *MPa* basınç altında *a* parametresinin beklenene uygun olarak artan konsantrasyonla orantısız azaldığı, *b* parametresinin x = 0.1-0.2 katkı aralığında azalıp, x = 0.2-0.3 katkı aralığında arttığı, *c* parametresinin x = 0.1-0.2 katkı aralığında artıp x = 0.2-0.3 katkı aralığında azaldığı görülmektedir. 15 *MPa* basınçta *a* parametresi için tüm katkılama miktarları uygundur. Şekil 4.19'da 30 *MPa* basınç altında *a* parametresinin beklenene uygun olarak konsantrasyonla orantısız azaldığı, *b* parametresinin orantısız arttığı, *c* parametresinin x = 0.1-0.2 aralığında artıp x = 0.2-0.3 aralığında azaldığı görülmektedir. 30 *MPa* basınçta *a* parametresi için tüm katkılama miktarları uygundur. Şekil 4.20'de 45 *MPa* basınç altında *a* parametresinin beklenene uygun olarak konsantrasyonla orantısız azaldığı, *b* parametresinin x = 0.1-0.2 katkı aralığında azalıp x = 0.2-0.3 katkı aralığında arttığı, *c* parametresinin orantısız arttığı görülmektedir. 45 *MPa* basınçta *a* parametresi için tüm katkılama miktarları uygundur. Her üç basınçta da yalnızca *a* parametresi için tüm katkılama miktarları uygundur.

Polarize ışık demeti altında görüntülenen optik fotoğraf incelemelerinde; saf YBCO'da basınç arttıkça (Şekil 4.21-22) taneciklerin küçüldüğü ve tanecik sayısının azaldığı göze çarpmaktadır. Literatürde de yüksek basınçlarda basınç arttırıldığında tanecik boyutlarında küçülmeler meydana gelmektedir **[37].** Saf YBCO'da tanecik büyüklükleri, taneciklerarası mesafeler ve tanecik yönelimleri dikkate alındığında düşük basınç aralığının tercih edilebilir aralık olduğu söylenebilir. Atmosfer basıncında ve 100 *Torr*'luk basınç altında YBCO filmlerinin SEM görüntülerinde basınç arttıkça tanecik büyüklüğünün arttığı ve taneciklerarası boşlukların azaldığı gözlenmiştir **[44].** Bu durum, düşük ve yüksek basınçlarda basınç değişiminin tanecik büyüklüğü üzerine ters etki yaptığını düşündürmektedir.

A serisi numunelerine ait optik fotoğraflarda (Şekil 4.24-26) tanecik boyutlarının saf YBCO'dan daha büyük olduğu göze çarpmaktadır. A Serisine ait numunelerde basınç ile tanecik büyüklükleri ve taneciklerarası mesafeler arasında lineer bir ilişki gözlenmemektedir. Bununla birlikte tanecik dağılımları homejen ve

genel olarak kristallenme artmaktadır. Özellikle A2 numunesinde kristallenmede belirgin artışın katkı miktarı *x*'ten kaynaklandığı düşünülmektedir.

B serisi numunelerine ait optik fotoğraflarda da (Şekil 4.27-29) basınç ile tanecik büyüklükleri ve tanecikler arası mesafeler arasında lineer bir ilişki gözlenmemektedir. Bununla birlikte tanecik dağılımları homojen ve kristallenme genel olarak artmaktadır. Özellikle B2 numunesinde kristallenmede belirgin artışın da katkı miktarı *x*'ten kaynaklandığı düşünülmektedir.

C serisi numunelerine ait optik fotoğraflarda (Şekil 4.30-32) basınç ile tanecik büyüklükleri arasında lineer bir ilişki olduğu görülmektedir. Aynı şekilde kristallenme ile uygulanan tablet basıncı arasında da bu lineer ilişki göze çarpmaktadır. Bu durumun yine katkı miktarı *x*'e bağlı olarak değiştiği düşünülmektedir. Basınç sabit tutulup katkı miktarı (*x*) arttırıldığında her üç basınç için de tüm numunelerin optik fotoğrafları karşılaştırıldığında genel olarak tanecik büyüklüğünün, tanecik sayısının ve kristallenmenin arttığı görülmektedir.

Üretilen malzemelerin SEM analizlerinden, malzemelerin tanecik büyüklükleri, tanecik yönelimleri, tanecik sınırları, tanecikler arası boşluklar, katkı miktarı ve basınç değişiminin tanecikte meydana getirdiği değişiklikler hakkında ayrıntılı bilgiler elde edilmiştir. Saf YBCO'ya ait SEM görüntülerinden (Şekil 4.33-35) taneciklerin homojen sayılabilecek bir dağılım sergiledikleri, tanecik yönelimlerinin keyfi olduğu, artan basınç ile birlikte taneciklerin boyutlarında küçülmelerin oluştuğu, küçük tanecikli yapıların boşlukları doldurması ile tanecikler arası boşluklarda azalmaların olduğu gözlenmiştir. 100 *Torr* çökeltme basıncında LaO üzerinde büyütülen YBCO filmlerinin SEM görüntüleri ile bizim çalışmamızdaki YBCO'ya ait SEM görüntülerini karşılaştırdığımızda artan basınç ile tanecik boyutlarının küçüldüğü göze çarpmıştır **[80]**.

A serisi numunelerine ait SEM görüntüleri (Şekil 4.36-38) taneciklerin saf YBCO malzemesine oranla daha büyük olduğunu göstermektedir. Dolayısı ile, saf YBCO'ya Lu ve Ag katkısının numunenin süperiletkenlik özelliklerini olumlu yönde etkilediği söylenebilir. A serisi numunelerine ait SEM görüntülerinde taneciklerin artan basıncın etkisiyle küçüldükleri, katkılanan gümüş ve lutesyum atomlarının tanecikler arası boşluklara ve tanecik kıyılarına yerleştikleri görülmektedir. Taneciklerin birbirlerinden bağımsız olduğu, tanecikler arası boşlukların basınç

artıkça azaldığı ve tanecikler için tercih edilebilir bir yönelim olmadığı anlaşılmaktadır.

B serisine ait SEM görüntülerinden A serisine ait sonuçlara benzer sonuçlar elde edilmiştir. Şekil 4.39-41'den artan basınçla birlikte tanecik boyutlarında azalma, tanecikler arası boşlukların katkılanan gümüş ve lutesyum atomları tarafından doldurulmaya çalışılması ve tanecikler için tercih edilebilir bir yönelimin olmadığı görülmektedir. Aynı durum C serisi numuneleri içinde geçerlidir. Ancak C2 numunesinde tanecikler arası boşlukların gittikçe küçüldüğü ve tanecik büyüklüklerinin çok fazla arttığı belirgin bir şekilde gözükmektedir.

Basınç sabit tutulup katkı miktarı değiştirildiğinde 15 *MPa*'daki saf YBCO, A1, B1 ve C1 numunelerinin SEM görüntüleri (Şekil 4.33, 36, 39, 42) karşılaştırıldığında saf YBCO'ya göre tanecik büyüklüğünün ve tanecikler arası boşlukların arttığı gözlenmiştir. B1 numunesinde bu artışın daha fazla olduğu görülmektedir.

30 *MPa*'daki saf YBCO, A2, B2 ve C2 numunelerinin SEM görüntüleri (Şekil 4.34, 37, 40, 43) karşılaştırıldığında katkı miktarı arttıkça tanecik büyüklüğünün ve tanecikler arası boşlukların kısmen arttığı gözlenmiştir. Ag katkılaması arttıkça tanecik büyüklüğünün artması numunelerin süperiletkenlik özelliklerini olumlu yönde etkilemektedir.

45 *MPa*'daki saf YBCO, A3, B3 ve C3 numunelerinin SEM görüntüleri (Şekil 4.35, 38, 41, 44) karşılaştırıldığında katkı miktarı ile tanecik büyüklükleri ve tanecikler arası boşluklar arasında lineer bir ilişki görülmemiştir.

Şekil 4.45-51 de numunelerin yoğunluklarına ilişkin grafiklere bakıldığında basınç ile yoğunluk ve katkı miktarı *x* ile yoğunluk arasında düzgün bir ilişkiye rastlanmamıştır.

Sonuç olarak; YBCO süperiletkenlerinde Y bölgesine Lu ve Cu bölgesine de Ag katkılanarak elde edilen $Y_{0.5}Lu_{0.5}Ba_2Cu_{3-x}Ag_xO_{7-\delta}$ bileşiklerinde, farklı basınçların ve katkılamaların malzemenin yapısal ve süperiletkenlik özellikleri üzerine etkisinin araştırıldığı bu çalışmada; Lu ve Ag katkısının YBCO'nun yapısal ve süperiletkenlik özelliklerinde olumlu sayılabilecek etkiler yaptığı, basıncın ise olumsuz etkiler yaptığı gözlenmiştir. Literatürde Y bölgesine Lu katkılamasına ait fazla veriye rastlanamayışı da araştırmayı alanında önemli kılmaktadır. Bu açıdan, araştırmanın bundan sonraki ilgili çalışmalara ışık tutacağını düşünüyoruz.

6. KAYNAKLAR

1. Müller, P., Ustinov, A.V., 1997, The Physics of Superconductors, Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York.

2. Cava, R.J., 1999, Oxide Superconductors, Department of Chemistry and Materials Institute, Princeton University, Princeton, New Jersey, 08544, P. 5

3. Sheahen, T.P., 1994, Introduction to High-Temperature Superconductivity, Plenum Press, New York and London, P. 6.

4. Vanderah, T.A., 1992, Chemistry of Superconductor Materials, Noyes Publication.

5. Doğan O., 2000, Doktora Tezi, Atatürk Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Erzurum.

6. Çelik Ş., 2006, Doktora Tezi, Karadeniz Teknik Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Trabzon.

7. Zhou, S.-A., 1999, Electrodynamics of Solids and Microwave Superconductivity, John Wiley&Sons, Inc.

8. Galperin, Y. M., 2001, Introduction to Modern Solid State Physics.

9. Poole, C. P., 2000, Handbok of Superconduvtivity, Academic Press, USA.

10. Barden, J., Cooper, L.N., Schrieffer, J.R., 1957, Theory of Superconductivity, Physical Review B, 108,5,1175-1204.

11. Roberts, B.W., 1976, Survey of Superconductive Materials and Critical Evolution of Selected Properties, Physical and Chemical Reference Data, 5:581-821.

12. Sullivian, M.C., 2004, The Normal Superconducting Phase Transition of YBCO in Zero Magnetic Field, Maryland University.

13. Strachan, D.R., 2002, The Superconducting Transition of YBCO, Maryland University.

14. Altshuler, E., Johansen, T.H., 2004, Colloquium: Experiments in Vortex Avalanches, Reviews of Modern Physics, Vol:76.

15. Isacsson, A., Gorelik, L.Y., Shekhter, R.I., Galperin, Y.M., Jonson1, M., 2002, Mechanical Cooper Pair Transportation as a Source of Long-Distance Superconducting Phase Coherence, Physical Review Letters, Vol:89-27.

16. Rose-Innes, A. C., Rhoderick, E. H., 1978, Introduction to Superconductivity, Pergamon Press, P. 26-30.

17. Kittel, C., 1996, Katıhal Fiziğine Giriş, 252-253.

18. Bilgeç G., 2004, Sb_2O_3 Katkılı YBCO Süperiletken Seramiklerin Karakterizasyonu, Yayınlanmamış Yüksek Lisans Tezi, Dokuz Eylül Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, İzmir.

19. Murakami, M., 1992, Processing of Bulk YBCO, Supercond. Sci. Technol. 185-203.

20. Dzhafarov, T.D., 1996, Diffusion in High-Temperature Superconductors, Review Article, Phys. Stat. Sol. (a) 158, 335.

21. Wesche, R., 1998, High-Temperature Superconductors: Materials, Properties, and Applications, Kluwer Academic Publishers, 261.

22. Laffez, P., Wu, X.J., Adachi, S., Yamauchi, H., Mori, N., 1994, Physica C 222, 303.

23. Han, P.D., Chang, L., Payne, D.A., 1994, Physica C 228, 129.

24. Kawashima, T., Takayama-Muromachi, E., 1996, Physica C 267, 106.

25. Takayama-Muromachi, E., Matsui, Y., Kosuda, K., 1995, Physica C 241, 137.

26. Kawashima, T., Matsui, Y., Takayama-Muromachi, E., 1995, Physica C 254, 131.

27. Isobe, M., Matsui, Y., Takayama-Muromachi, E., 1994, Physica C 222, 310.

28. Ramirez-Castellanos, J., Matsui, Y., Takayama-Muromachi, E., Isobe, M., 1995, Physica C 251, 279.

29. Isobe, M., Kawashima, T., Kosuda, K., Matsui, Y., Takayama-Muromachi, E., 1994, Physica C 234, 120.

30. Steiger, M., Kongmark, C., Rueckert, F., Harding, L., Torikachvili, M.S., 2007, Pressure study of superconductivity and magnetism in pure and Rh-doped $RuSr_2GdCu_2O_8$ materials, Physica C 453 , 24-30.

31. Marezio, M., Licci, F.,Gauzzi, A., 2000, Chemical pressure for optimizing T_c in a given superconducting system, Physica C 337, 195-199.

32. Yoshizumi, M., Wesolowski, D., Cima, M. J., 2005, Determination of HF partial pressure during ex situ conversion of YBCO precursors, Physica C 423, 75–82.

33. Prikhna, T., Gawalek, W., Savchuk, Y., Sergienko, N., Moshchil, V., Dub, S., Sverdun, V., Kovalev, L., Penkin, V., Zeisberger, M., Wendt, M., Fuchs, G., Habisreuther, T., Litzkendorf, D., Nagorny, P., Melnikov, V., 2007, High-pressure– high-temperature synthesis of magnesium diboride with different additions, Physica C 460–462, 595–597.

34. Wu, R.X., Yang, S.Z., Zhou, Y.L., Jin, B.B., Qian, M., Wu, P.H., Gu, J.H., Ding, D.S., 1997, Correlation between surface resistance of $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ thin films and oxygen pressure during deposition process, Physica C 282-287, 591-592.

35. Caixeiro, E.S., de Mello, E.V.L., 2002, The Hubbard model and pressure effects of $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ superconductors, Physica C 383, 89-94.

36. Ferreira, L.M., Pureur, P., Borges, H.A., Lejay, P., 2004, Pressure effects on the fluctuation conductivity of YBCO, Physica C 408-410, 694-695.

37. Shi, D., Isfort, D., Chaud, X., Odier, P., Mast, D., Tournier, R., 2004, Suppression of *ab*-plane crack formation in single domain $YBa_2Cu_3O_x$ by uniaxial *c*-axis pressure, Physica C 402, 72-79.

38. Endo, T., Itoh, K., Horie, M., Itoh, K., Hirate, N., Yamada, S., Tada, M., Sano, S., 2000, Low-temperature process and growth enhancement of *a*-oriented $YBa_2Cu_3O_x$ thin films by oxygen plasma, Physica C 333, 181-186.

39. Haugan, T., Barnes, P.N., Brunke, L., Maartense, I., Murphy, J., 2003, Effect of O_2 partial pressure on $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ thin film growth by pulsed laser deposition, Physica C: Superconductivity, Volume 397, Issues 1-2, Pages 47-57.

40. Balla, D.D., Bondarenko, A.V., Vovk, R.V., Obolenskii, M. A., Prodan, A. A., 1997, Effect of hydrostatic pressure on the resistance and critical temperature of $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ single crystals, Phys. 23, 777.

41. Solovyov, V.F., Weismann, H.J., Suenaga, M., 2001, Growth rate limiting mechanism of $YBa_2Cu_3O_7$ films manufactured by ex situ processing, Physica C 353, p. 14.

42. Nakamura, M., Krauns, C., Shiohara, Y., 1996, Oxygen partial pressure dependence of the yttrium solubility in Y–Ba–Cu–O solution, Materials Research Society, Volume: 11, p. 1076-1081.

43. Lay, K.W., Renlund, G.M., 1990, Oxygen pressure effect on the Y_2O_3-BaO-CuO liquidus, J. Am. Ceram. Soc. 73, p. 1208.

44. Chung, K., Yoo, J., Ko, J., Kim, Y., Wang, X., Dou, S., 2007, Properties of MOD- YBCO films at low pressure annealing process, Physica C: Superconductivity, Volumes 460-462, Part 2, Pages 1422-1423.

45. Chaudhary, S., Pandya, D.K., Kashyap, S.C., 2003, Study of the oxygen incorporation and structure in the low pressure sputtered YBCO films, Thin Solid Films 433, 114-118.

46. Chaudhary, S., Pandya, D.K., Kashyap, S.C., Kulkarni, V.N., 1997, Atomic disorder in low pressure rf-sputtered YBCO superconducting thin films, Physica C 280, 37-42.

47. Teranishi, R., Honjo, T., Tokunaga, Y., Fuji, H., Matsuda, J., Izumi, T., Yajimi, A., Shiohara, Y., 2004, Fabrication of YBCO film by TFA-MOD process at low-pressure atmosphere, Physica C 412–414, 920–925.

48. Aslanoğlu, Z., Akin, Y., El-Kawni, M.I., Sigmund, W., Hascicek, Y.S., 2003, Influence of the low oxygen partial pressures on thick YBCO coated conductor by sol–gel process, Physica C 384, 501–506.

49. Sawa, A., Obara, H., Kosaka, S., 1994, Effect of using pure ozone on in situ molecular beam epitaxy of $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ thin films at low pressure, Appl. Phys. Lett. 64, p. 649.

50. Prikhna, T., Chaud, X., Gawalek, W., Rabier, J., Savchuk, Y., Joulain, A., Vlasenko, A., Moshchil, V., Sergienko, N., Dub, S., Melnikov, V., Litzkendorf, D., Habisreuther, T., Sverdun, V., 2007, Oxygenation of the traditional and thin-walled MT-YBCO in flowing oxygen and under high evaluated oxygen pressure, Physica C 460-462, 392-394.

51. Krupski, M., Stankowski, J., Przybyl, S., Andrzejewski, B., Kaczmarek, A., Hilczer, B., Marfaing, J., Caranoni, C., 1999, The effect of the YBCO-PST composite composition on the superconducting carrier concentration determined by microwave studies under high pressure, Physica C 320, 120-126.

52. Zhu, Y.B., Zhou, Y.L., Liu, Z., Wang, S.F., Chen, Z.H., Lu, H.B., Yang, G.Z., Xiao, L., Ren, H.T., Jiao, Y.L., Zheng, M.H., 2004, Critical current density enhancement of electrophoretically deposited Y-Ba-Cu-O superconducting coatings by annealing in high pressure oxygen, Physica C 403, 172-176.

53. Salluzzo, M., Aruta, C., Ausanio, G., Di Uccio, S. U., Vaglio, R., 2004, The role of strain in the superconductivity of Nd-doped YBCO films deposited by diyote high pressure oxygen sputtering, Physica C 408–410, 18–19.

54. Vovk, R.V., Obolenskii, M.A., Zavgorodniy, A.A., Bondarenko, A.V., Goulatis, I.L., Samoilov, A.V., Chroneos, A., 2007, Effect of high pressure on the fluctuation conductivity and the charge transfer of $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ single crystals, Journal of Alloys and Compounds 453, 69-74.

55. Berastegui, P., Eriksson, S.-G., Johansson, L.-G., 1996, Structure and superconductivity in $Y_{1-x}Ln_xBa_{2-y}Sr_yCu_4O_8$ (Ln = Lu, Tb, Gd, Pr and Ce); the influence of ionic size and valency, Journal of Alloys and Compounds 252, 76-82.

56. Berastegui, P., Eriksson, S.-G., Johansson, L.-G., 1997, Structural changes in lanthanide doped $YBa_2Cu_4O_8$, Physica B 234-236, 26-27.

57. Kaneko, A., Matsuda, J., Teranishi, R., Nakaoka, K., Aoki, Y., Fuji, H., Murata, K., Goto, T., Yoshinaka, A., Yajima, A., Izumi, T., Shiohara, Y., 2005, Fabrication of $Y_{1-x}RE_xBa_2Cu_3O_{7-y}$ film by advanced TFA-MOD process, Physica C 426–431, 949-953.

58. Karen, P., Fjellvag, H., Braaten, O., Kjekshus, A., Bratsberg, H., 1990, Lanthanide Substitution in $YBa_2Cu_3O_{9-\delta}$, Acta Chemica Scandinavica 44, 994-1001.

59. Badri, V., Varadaraju, U.V., 1992, Structure and Superconductivity Studies on $LnBa_{2-x}Sr_xCu_3O_7$ (Ln = Yb and Lu; $0.0 \leq x \leq 0.5$), Mat. Res. Bull., Vol. 27, pp. 591-602.

60. Öztürk, K., Çelik, Ş., Çevik, U., Yanmaz, E., 2007, The effect of Gd diffusion-doped on structural and superconducting properties of $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ superconductors, Journal of Alloys and Compounds 433, 46-52.

61. Görür, O., Küçükömeroğlu, T., Terzioğlu, C., Varilci, A., Altunbaş, M., 2005, The Effect of Ag Diffusion on Properties of $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ Thin Films Produced by Electron Beam Deposition Techniques, Physica C 418, 35-42.

62. Dogan, O., 2005, The Effect of Duration of Diffusion on Ag Diffusion Coefficients in $YBa_2Cu_3O_7$, Journal of Quantitative Spectroscopy, Radiative Transfer 95, 263-269.

63. Iliescu, S., Carrillo, A.E., Bartolome, E., Granados, X., Bozzo, B., Puig, T., Obradors, X., Garcia, I., Walter, H., 2005, Melting of Ag-$YBa_2Cu_3O_7$ Interfaces: The Path to Large Area High Critical Current Welds, Supercond. Sci. Technol. 18, S168-S172.

64. Godin, T., Reich, S., 1997, Structural and Magnetic Properties of Silver Doped Melt-Textured YBCO Prepared in a Solar Furnace, Applied Superconductivity Vol. 4, No. 12, pp. 603-618.

65. Cheng, C. H., Zhao, Y., 2003, Enhancement of J_c by doping silver in grain boundaries of $YBa_2Cu_3O_y$ polycrystals with solid-state diffusion method, J. Appl. Phys. 93, 2292.

66. Pysarenko, S.V., Pan, A.V., Dou, S.X., 2007, Influence of Ag-doping and thickness on superconducting properties of $YBa_2Cu_3O_7$ films, Physica C 460–462, 1363–1364.

67. Svistunov, V.M., Tarenkov, V.Yu., D'yachenko, A.I., Chernyak, O.I., Aoki, R., 1998, Contact phenomena in Ag-YBCO composites, Physica C 303, 177–184.

68. Ding, Q., Li, C., Dong, L., Wang, M., Peng, Y., Yan, X., 2008, Preparation and properties of $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ / Ag self-lubricating composites, Volume 265, Issues 7-8, Pages 1136-1141.

69. Tepe, M., Avci, I., Kocoglu, H., Abukay, D., 2004, Investigation of the variation in weak-link profile of $YBa_2Cu_{3-x}Ag_xO_{7-\delta}$ superconductors by Ag doping concentration, Solid State Communications, Volume 131, Issue 5, Pages 319-323.

70. Harnois, C., Desgardin, G., Laffez, I., Chaud, X., Bourgault, D., 2002, High quality weld of melt textured YBCO using Ag doped YBCO junctions, Physica C: Superconductivity, Volume 383, Issue 3, Pages 269-278.

71. Bolanos, G., Prieto, P., Arias, D., Sefrioui, Z., Santamaria, J., 2000, Effect of silver doping on the transport properties of epitaxial $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ thin films, Physica C: Superconductivity, Volume 341-348, Part 2, Pages 1197-1198.

72. Kumar, D., Oktyabrsky, S., Kalyanaraman, R., Narayan, J., Apte, P. R., Pinto, R., Manoharan, S. S., Hegde, M. S., Ogale, S. B., Adhi, K. P., 1997, Role of silver doping in oxygen incorporation of oxide thin film, Materials Science and Engineering B, Volume 45, Issues 1-3, Pages 55-58.

73. Tyagi, A. K., Tyagi, S., Sharma, T. P., 1997, About the substitutions for CuO in YBCO high temperature superconductor, Materials Science and Engineering B, Volume 45, Issues 1-3, Pages 88-97.

74. Chuang, F., Y., Sue, D. J., Sun, C. Y., 1995, Effects of silver doping on the superconducting Y-Ba-Cu oxide, Materials Research Bulletin, Volume 30, Issue 10, Pages 1309-1317.

75. Misra, D. S., John, B., Pinto, R., Mombasawala, L. S., Palmer, S. B., 1995, On the role of Ag in enhancement of J_c in $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ thin films, Physica C: Superconductivity, Volume 248, Issues 3-4, Pages 276-280.

76. Harrison, J. P., Kohl, M., Salomons, G., 1993, Flux pinning in silver-doped YBCO, Cryogenics, Volume 33, Issue 5, Pages 510-513.

77. Cheng, C. H., Zhao, Y., 2007, Repair of grain boundary by preferential-doping in $YBa_2Cu_3O_{7-y}$, Physica C: Superconductivity, Volumes 463-465, Pages 174-177.

78. Yokota, H., Abell, J. S., 1994, Preparation of YBCO films on YSZ and silver substrates by the dipping pyrolysis process, Physica C: Superconductivity, Volumes 235-240, Part 1, Pages 629-630.

79. Yılmaz M., 2008, Doktora Tezi, Selçuk Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Konya.

80. Hong, S.-K., Kim, J.-G., Kim, H.-J., Cho, H.-W., Yu, S.-K., Ahn, J.-H., Joo, J.-H, Hong, G.-W., Lee, H.-G., 2007, Preparation of high J_c YBCO films on LAO by spray pyrolysis process using nitrate precursors, Physica C: Superconductivity, Volumes 463-465, Pages 536-539.