

**DOKUZ EYLÜL ÜNİVERSİTESİ**  
**FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

**MANYETİK ALINGANLIK ÖLÇÜMLERİ**  
**İLE BİZMUT TABANLI SERAMİK**  
**SÜPERİLETKENLERİN**  
**KARAKTERİZASYONU**

**Özlem BİLGİLİ**

**Eylül, 2013**  
**İZMİR**

**MANYETİK ALINGANLIK ÖLÇÜMLERİ  
İLE BİZMUT TABANLI SERAMİK  
SÜPERİLETKENLERİN  
KARAKTERİZASYONU**

**Dokuz Eylül Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü**

**Doktora Tezi**

**Fizik Anabilim Dalı**

**Özlem BİLGİLİ**

**Eylül, 2013**

**İZMİR**

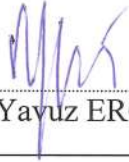
## DOKTORA TEZİ SINAV SONUÇ FORMU

**ÖZLEM BİLGİLİ**, tarafından **PROF. DR. KEMAL KOCABAŞ** yönetiminde hazırlanan “**MANYETİK ALINGANLIK ÖLÇÜMLERİ İLE BİZMUT TABANLI SERAMİK SÜPERİLETKENLERİN KARAKTERİZASYONU**” başlıklı tez tarafımızdan okunmuş, kapsamı ve niteliği açısından bir doktora tezi olarak kabul edilmiştir.



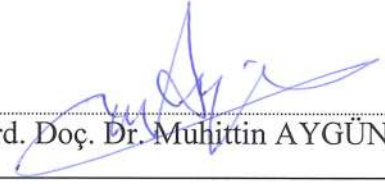
Prof. Dr. Kemal KOCABAŞ

Yönetici



Prof. Dr. M. Yavuz ERGÜN

Tez İzleme Komitesi Üyesi



Yrd. Doç. Dr. Muhittin AYGÜN

Tez İzleme Komitesi Üyesi



Yrd. Doç. Görkem OYLUMLUOĞLU

Jüri Üyesi



Prof. Dr. İsmail SÖKMEN

Jüri Üyesi



Prof. Dr. Ayşe OKUR

Müdür

Fen Bilimleri Enstitüsü

## TEŞEKKÜR

Doktora tez çalışmam süresince değerli bilgi birikimi ve tecrübelerini benimle paylaşan danışman hocam Sayın Prof. Dr. Kemal KOCABAŞ' a teşekkür ederim.

Çalışmalarım süresince bana vermiş oldukları desteklerden dolayı DEÜ Fizik Bölümü' ndeki arkadaşlarıma teşekkür ederim.

Doktora eğitimim süresince bana sağladıkları her türlü maddi ve manevi desteklerinden dolayı, annem Münire BİLGİLİ, babam Mürteza BİLGİLİ' ye teşekkür ederim. Her zaman yanımda olan canım kardeşim Öznur BİLGİLİ' ye çok teşekkür ederim.

Özlem BİLGİLİ

# MANYETİK ALINGANLIK ÖLÇÜMLERİ İLE BİZMUT TABANLI SERAMİK SÜPERİLETKENLERİN KARAKTERİZASYONU

## ÖZ

$\text{Bi}_{1,7-x}\text{Pb}_{0,3}\text{Gd}_x\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  ve  $\text{Bi}_{1,7-x}\text{Pb}_{0,3}\text{Nb}_x\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  süperiletken örnekler Niyobyum ve Gadolinyum eklenmesinin yapısal, manyetik ve süperiletken özellikler üzerindeki etkileri incelenmiştir. Süperiletken örnekler geleneksel katıhal reaksiyon yöntemi ile hazırlanmıştır. Niyobyum ve Gadolinyum katkılı süperiletken örneklerin geçiş sıcaklığını, kritik akım yoğunluğunu ve boşluk konsantrasyonunu belirlemek için ac alınganlık ölçümleri ve örneklerin yapısal karakterizasyonu, yüzey morfolojisi ve faz analizi için X-ışını kırınımı (XRD), taramalı elektron mikroskobu (SEM) ve yoğunluk ölçümleri yapılmıştır.

AC alınganlık ölçümlerinden Niyobyum katkısı ile kritik başlangıç sıcaklıklarının  $\text{Nb}_0$ ,  $\text{Nb}_1$ ,  $\text{Nb}_2$ ,  $\text{Nb}_3$ ,  $\text{Nb}_4$  örnekleri için sırasıyla 108, 105, 104, 105, 100 K ve Gadolinyum katkısı ile kritik başlangıç sıcaklıklarının  $\text{Gd}_0$ ,  $\text{Gd}_1$ ,  $\text{Gd}_2$ ,  $\text{Gd}_3$ ,  $\text{Gd}_4$  örnekleri için sırasıyla 108, 77, 77, 72, 70 K olduğu gözlenmiştir. XRD ölçümleri, Niyobyum katkısı ile yüksek- $T_c$  fazının hacim kesri artarken düşük- $T_c$  fazının hacim kesrinin azaldığını ve Gd katkısının artmasıyla ise yüksek- $T_c$  fazının hacim kesrinin azaldığını ve düşük- $T_c$  fazının hacim kesrinin sisteme hakim olduğunu göstermektedir. SEM fotoğraflarından Niyobyum katkı miktarı arttıkça porozitenin azaldığı ve tanecikler arası bağlantıların iyileştiği, Gd katkı oranı arttırıldığında ise, örneklerin yüzey morfolojisinin ve tanecik bağlılığının bozulduğu gözlenmiştir. Yoğunluk ölçümleri de SEM sonuçlarını desteklemektedir.

**Anahtar sözcükler:** AC alınganlık, XRD, SEM

# **THE CHARACTERIZATION OF Bi-BASED CERAMIC SUPERCONDUCTORS BY MAGNETIC SUSCEPTIBILITY MEASUREMENTS**

## **ABSTRACT**

The effects of addition of Niobium and Gadolinium on structural, magnetic and superconducting properties in  $\text{Bi}_{1,7-x}\text{Pb}_{0,3}\text{Gd}_x\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  and  $\text{Bi}_{1,7-x}\text{Pb}_{0,3}\text{Nb}_x\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  superconducting samples were investigated. The superconducting samples were prepared by conventional solid state reaction method. The investigation consisted of X-ray diffraction (XRD), scanning electron microscope (SEM), density measurements for structural characterization, surface morphology and phase analysis and ac susceptibility to determine the critical current density and hole concentration of the samples.

In ac susceptibility measurements with Niobium addition, the critical onset temperatures were observed to be about 108, 105, 104, 105 and 100 K for samples Nb0, Nb1, Nb2, Nb3 and Nb4, and with Gadolinium addition, the critical onset temperatures were observed to be about 108, 77, 77, 72, and 70 K for samples Gd0, Gd1, Gd2, Gd3 and Gd4, respectively. XRD measurements show that high- $T_c$  phase increases and low- $T_c$  phase decreases with the Niobium substitution whereas high- $T_c$  phase volume fraction decreases and low- $T_c$  phase volume fraction dominates the system with increasing Gd addition. When Niobium addition was increased, the porosity decreases and grain connectivity of the samples were observed to improve and when Gd addition ratio was increased, surface morphology and grain connectivity of the samples were observed to degrade from SEM investigations. Density measurements are in line with SEM results.

**Keywords:** AC susceptibility, XRD, SEM

## İÇİNDEKİLER

### Sayfa

|                        |      |
|------------------------|------|
| TEZ SONUÇ FORMU.....   | ii   |
| TEŞEKKÜR.....          | iii  |
| ÖZ .....               | iv   |
| ABSTRACT.....          | v    |
| ŞEKİLLER LİSTESİ. .... | viii |
| TABLolar LİSTESİ.....  | xi   |

## **BÖLÜM BİR – GİRİŞ.....1**

|                                                  |    |
|--------------------------------------------------|----|
| 1.1 Süperiletkenliğin Keşfi.....                 | 1  |
| 1.2 Mükemmel Diyamanyetizma .....                | 4  |
| 1.3 Meissner Etkisi .....                        | 5  |
| 1.4 Süperiletkenlerin Manyetik Özellikleri ..... | 7  |
| 1.4.1 I. Tip Süperiletkenler .....               | 8  |
| 1.4.2 II. Tip Süperiletkenler.....               | 9  |
| 1.4.3 Nüfuz Derinliği.....                       | 12 |
| 1.4.4 Eşyuyum Uzunluğu .....                     | 13 |
| 1.4.5 Akı Sürüklenmesi ve Ak Akışı .....         | 14 |
| 1.4.6 Akı İğnelenmesi.....                       | 15 |
| 1.5 Manyetik Alınganlık.....                     | 18 |
| 1.5.1 AC Manyetik Alınganlık Ölçüm Yöntemi ..... | 21 |
| 1.5.2 AC Manyetik Alınganlık Ölçüm Sistemi ..... | 24 |
| 1.6 Kritik Durum Bean Modeli .....               | 27 |

## **BÖLÜM İKİ – SÜPERİLETKENLİK TEORİLERİ.....31**

|                                   |    |
|-----------------------------------|----|
| 2.1 London Teorisi .....          | 31 |
| 2.2 Ginzburg-Landau Teorisi ..... | 35 |

|                                                                                                                                                         |           |
|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------|
| 2.3 BCS Teorisi .....                                                                                                                                   | 40        |
| <b>BÖLÜM ÜÇ – YÜKSEK SICAKLIK SÜPERİLETKENLERİ.....</b>                                                                                                 | <b>44</b> |
| 3.1 Yüksek Sıcaklık Süperiletkenlerinin Özellikleri .....                                                                                               | 44        |
| 3.2 Bi-Tabanlı Yüksek Sıcaklık Süperiletkenleri .....                                                                                                   | 47        |
| 3.3 Bi-Tabanlı Yüksek Sıcaklık Süperiletkenlerine Katkılamanın Etkisi .....                                                                             | 49        |
| <b>BÖLÜM DÖRT – ÖRNEKLERİN HAZIRLANMASI.....</b>                                                                                                        | <b>52</b> |
| 4.1 Katıhal Reaksiyon Yöntemi .....                                                                                                                     | 52        |
| 4.2 $\text{Bi}_{1,7-x}\text{Pb}_{0,3}\text{Nb}_x\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ Bileşiğinin Hazırlanması .....                             | 52        |
| 4.3 $\text{Bi}_{1,7-x}\text{Pb}_{0,3}\text{Gd}_x\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ Bileşiğinin Hazırlanması .....                             | 53        |
| <b>BÖLÜM BEŞ – DENEYSEL ÖLÇÜMLER.....</b>                                                                                                               | <b>55</b> |
| 5.1 AC Manyetik Alınganlık Ölçüm Sonuçları .....                                                                                                        | 55        |
| 5.1.1 $\text{Bi}_{1,7-x}\text{Pb}_{0,3}\text{Nb}_x\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ Bileşiğinin AC Manyetik Alınganlık Ölçüm Sonuçları ..... | 55        |
| 5.1.2 $\text{Bi}_{1,7-x}\text{Pb}_{0,3}\text{Gd}_x\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ Bileşiğinin AC Manyetik Alınganlık Ölçüm Sonuçları ..... | 64        |
| 5.2 X-Işını Kırınımı (XRD) Sonuçları .....                                                                                                              | 73        |
| 5.2.1 $\text{Bi}_{1,7-x}\text{Pb}_{0,3}\text{Nb}_x\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ Bileşiğinin XRD Sonuçları .....                          | 73        |
| 5.2.2 $\text{Bi}_{1,7-x}\text{Pb}_{0,3}\text{Gd}_x\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ Bileşiğinin XRD Sonuçları .....                          | 78        |
| 5.3 Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM) Sonuçları .....                                                                                                  | 82        |
| 5.3.1 $\text{Bi}_{1,7-x}\text{Pb}_{0,3}\text{Nb}_x\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ Bileşiğinin SEM Sonuçları .....                          | 82        |
| 5.3.2 $\text{Bi}_{1,7-x}\text{Pb}_{0,3}\text{Gd}_x\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ Bileşiğinin SEM Sonuçları .....                          | 85        |
| 5.4 Yoğunluk Ölçüm Sonuçları .....                                                                                                                      | 89        |
| <b>BÖLÜM ALTI – SONUÇLAR.....</b>                                                                                                                       | <b>92</b> |
| <b>KAYNAKLAR.....</b>                                                                                                                                   | <b>95</b> |

## ŞEKİLLER LİSTESİ

### Sayfa

|                                                                                                                                                                                                                                                                                                |    |
|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----|
| Şekil 1.1 1911 yılında Civa metalinde süperiletkenliği keşfettiğinde Kamerlingh Onnes tarafından elde edilen direnç-sıcaklık grafiği .....                                                                                                                                                     | 2  |
| Şekil 1.2 Süperiletken geçiş sıcaklığının tarihsel gelişimi.....                                                                                                                                                                                                                               | 3  |
| Şekil 1.3 Meissner etkisi: süperiletken içerisindeki manyetik alanın dışlanması (a) Normal şartlarda (süperiletkenliğe geçiş sıcaklığının üzerinde) manyetik alan uygulandığında oluşan durum. (b) Süperiletkenliğe geçiş sıcaklığının altında manyetik alan uygulandığında oluşan durum ..... | 7  |
| Şekil 1.4 Süperiletken üzerinde havada duran bir mıknatıs (Levitation).....                                                                                                                                                                                                                    | 7  |
| Şekil 1.5 I. tip ve II. tip süperiletkenlerin mıknatıslanma eğrileri .....                                                                                                                                                                                                                     | 8  |
| Şekil 1.6 I. tip süperiletkende kritik alanın sıcaklık ile değişimi .....                                                                                                                                                                                                                      | 9  |
| Şekil 1.7 $H_{c1}$ ve $H_{c2}$ arasında bulunan vorteks kristalinin faz diyagramı.....                                                                                                                                                                                                         | 11 |
| Şekil 1.8 Üçgensel vorteks dizilerinin şematik diyagramı.....                                                                                                                                                                                                                                  | 11 |
| Şekil 1.9 II. tip süperiletkenlerin vorteks durumu. Süperiletken vorteksler düzenli üçgensel örgü formundadır. Vorteks merkezleri normal durumdadır.....                                                                                                                                       | 11 |
| Şekil 1.10 Bir vorteks çekirdeğinin etrafında dönen perdeleme akımlarının çizimi..                                                                                                                                                                                                             | 12 |
| Şekil 1.11 Akı akışı mekanizması. Manyetik alanda akımın varlığı Lorentz kuvvetinin oluşmasına neden olur. Bu kuvvet merdiveni eğeri ve akı çizgilerinin iğneleme kuyularından daha kolay bir şekilde çıkmasına izin verir .....                                                               | 15 |
| Şekil 1.12 Karışık durumdaki süperiletken içerisine giren akı çizgilerinin şematik gösterimi.....                                                                                                                                                                                              | 18 |
| Şekil 1.13 Birincil ve ikincil bobin sistemi.....                                                                                                                                                                                                                                              | 23 |
| Şekil 1.14 Bobin sisteminin şematik gösterimi.....                                                                                                                                                                                                                                             | 23 |
| Şekil 1.15 AC alınganlık ölçüm sistemi (DEU Fizik Bölümü Süperiletkenlik Araştırma Laboratuvarı).....                                                                                                                                                                                          | 25 |
| Şekil 1.16 AC alınganlık ölçüm sistemindeki örnek tutucu.....                                                                                                                                                                                                                                  | 25 |
| Şekil 1.17 AC alınganlık ölçüm sisteminin şematik gösterimi .....                                                                                                                                                                                                                              | 26 |
| Şekil 1.18 Manyetizasyonun uygulanan alanla değişimi. Bean modeline göre levha şeklindeki örnek yüzeyine paralel uygulanan alanlar için manyetizasyon eğrileri,                                                                                                                                |    |

|                                                                                                                                                                                      |    |
|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----|
| akım yoğunluğu grafiği, (Kritik akım yoğunluğu $J_c$ ' nin alandan bağımsız olduğu varsayılır.....                                                                                   | 29 |
| Şekil 2.1 İki akışkan modeli.....                                                                                                                                                    | 31 |
| Şekil 2.2 Süperiletken içine manyetik alanın sızması.....                                                                                                                            | 33 |
| Şekil 2.3 a) $T > T_c$ (yani $\alpha > 0$ ) ve b) $T < T_c$ (yani $\alpha < 0$ ) için G-L serbest enerji fonksiyonları. Koyu renkli noktalar, denge konumlarını belirtmektedir ..... | 37 |
| Şekil 2.4 Daire Fermi yüzeyini belirtmek üzere, fonon değişiminin olduğu elektron çiftinin (a) başlangıçtaki ve (b) sonraki durumları.....                                           | 41 |
| Şekil 2.5 Süperiletkende, $E_F$ Fermi enerjisi civarında $g(E)$ durumların yoğunluğu ..                                                                                              | 42 |
| Şekil 3.1 Perovskit $ABO_3$ yapısı .....                                                                                                                                             | 46 |
| Şekil 3.2 Yüksek sıcaklık süperiletkenlerinin tabakalı kristal yapısı.....                                                                                                           | 46 |
| Şekil 3.3 Katkı seviyesi $p$ , birim hücre başına $CuO_2$ tabaka sayısı, birim hücre sabitleri $v_b$ . olabilen bir parametrenin fonksiyonu olarak kritik sıcaklık .....             | 47 |
| Şekil 5.1 Nb0, Nb1, Nb2, Nb3, Nb4 için $ac$ alınganlığın gerçek ve sanal kısımları ile sıcaklık grafiği.....                                                                         | 62 |
| Şekil 5.2 Nb0, Nb1, Nb2, Nb3, Nb4 için tanecikler arası pik sıcaklığı ile kritik akım yoğunluğu.....                                                                                 | 62 |
| Şekil 5.3 Nb0, Nb1, Nb2, Nb3, Nb4 için $H_{ac}$ ile $T_p$ davranışı.....                                                                                                             | 63 |
| Şekil 5.4 Nb katkılı ve katkısız süperiletken örnekleri için geçiş sıcaklığına karşı taşıyıcı konsantrasyonu .....                                                                   | 64 |
| Şekil 5.5 Gd0, Gd1, Gd2, Gd3, Gd4 için $ac$ alınganlığın gerçek ve sanal kısımları ile sıcaklık grafiği.....                                                                         | 69 |
| Şekil 5.6 Gd0, Gd1, Gd2, Gd3, Gd4 için tanecikler arası pik sıcaklığı ile kritik akım yoğunluğu.....                                                                                 | 70 |
| Şekil 5.7 Gd0, Gd1, Gd2, Gd3, Gd4 için $H_{ac}$ ile $T_p$ davranışı.....                                                                                                             | 70 |
| Şekil 5.8 Diyamanyetik geçiş sıcaklığının ( $T_c^{on}$ ) x katkı oranına göre değişimi .....                                                                                         | 71 |
| Şekil 5.9 Gd katkılı ve katkısız süperiletken örnekleri için geçiş sıcaklığına karşı taşıyıcı konsantrasyonu .....                                                                   | 73 |
| Şekil 5.10 Nb0, Nb1, Nb2, Nb3, Nb4 örneklerinin XRD desenleri.....                                                                                                                   | 77 |
| Şekil 5.11 Örgü parametresi, $c'$ nin katkı oranı $x$ ile değişimi .....                                                                                                             | 80 |
| Şekil 5.12 Gd0, Gd1, Gd2, Gd3, Gd4 örneklerinin XRD desenleri.....                                                                                                                   | 81 |
| Şekil 5.13 $Bi_{1,7-x}Pb_{0,3}Nb_xSr_2Ca_2Cu_3O_y$ örneklerine ait SEM fotoğrafları ( $\times 2000$ ) ..                                                                             | 85 |

|                                                                                                                                                                 |    |
|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----|
| Şekil 5.14 $\text{Bi}_{1,7-x}\text{Pb}_{0,3}\text{Gd}_x\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ örneklerine ait SEM fotoğrafları (x2000) ..                 | 88 |
| Şekil 5.15 $\text{Bi}_{1,7-x}\text{Pb}_{0,3}\text{Nb}_x\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ örneklerinde yoğunluğun x katkı oranına göre değişimi ..... | 90 |
| Şekil 5.16 $\text{Bi}_{1,7-x}\text{Pb}_{0,3}\text{Gd}_x\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ örneklerinde yoğunluğun x katkı oranına göre değişimi ..... | 90 |
| Şekil 5.17 Porozitenin x katkı oranına göre değişimi .....                                                                                                      | 91 |

## TABLÖLER LİSTESİ

### Sayfa

|                                                                                                                          |    |
|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----|
| Tablo 1.1 Süperiletken materyallerin sınıfları ve geçiş sıcaklıkları.....                                                | 4  |
| Tablo 1.2 Bazı I. tip süperiletkenlerin kritik sıcaklık ve kritik manyetik alan değerleri .....                          | 9  |
| Tablo 1.3 Bazı II. tip süperiletkenlerin kritik sıcaklık ve kritik manyetik alan değerleri.....                          | 10 |
| Tablo 1.4 Bazı süperiletkenler için nüfuz derinliği.....                                                                 | 12 |
| Tablo 1.5 Bazı süperiletkenler için kritik sıcaklık $T_c$ , eşyüm uzunluğu, $\xi$ , nüfuz derinliği $\lambda$ .....      | 14 |
| Tablo 3.1 Farklı süperiletkenler için kısaltmalar .....                                                                  | 47 |
| Tablo 4.1 Başlangıç kompozisyonunu oluşturan bileşiklerin saflık dereceleri ve atom ağırlıkları .....                    | 53 |
| Tablo 4.2 Örneklere uygulanan ısı işlemler .....                                                                         | 53 |
| Tablo 4.3 Başlangıç kompozisyonunu oluşturan bileşiklerin saflık dereceleri ve atom ağırlıkları .....                    | 54 |
| Tablo 4.5 Örneklere uygulanan ısı işlemler .....                                                                         | 54 |
| Tablo 5.1 Niyobyum ve Gadolinyum elementlerine ait bazı fiziksel ve atomik özellikler.....                               | 55 |
| Tablo 5.2 Farklı alanlarda Nb0, Nb1, Nb2, Nb3 ve Nb4 örneklerinin $T_c^{on}$ ve $T_p$ sıcaklıkları .....                 | 59 |
| Tablo 5.3 Nb katkılı örneklerin $T_{p0}$ ve U değerleri .....                                                            | 59 |
| Tablo 5.4 Farklı alan büyüklüklerinde Gd0, Gd1, Gd2, Gd3 ve Gd4 örnekleri için $T_c^{on}$ ve $T_p$ sıcaklıkları .....    | 67 |
| Tablo 5.5 Gd katkılı örneklerin $T_{p0}$ ve U değerleri .....                                                            | 67 |
| Tablo 5.6 Nb0, Nb1, Nb2, Nb3 ve Nb4 örnekleri için örgü parametreleri .....                                              | 76 |
| Tablo 5.7 Nb0, Nb1, Nb2, Nb3 ve Nb4 örnekleri için Bi-2223, Bi-2212 fazlarının hacim kesirleri .....                     | 76 |
| Tablo 5.8 Gd0, Gd1, Gd2, Gd3, Gd4 örnekleri için örgü parametreleri ve Bi-2223, Bi-2212 fazlarının hacim kesirleri ..... | 80 |

## BÖLÜM BİR

### GİRİŞ

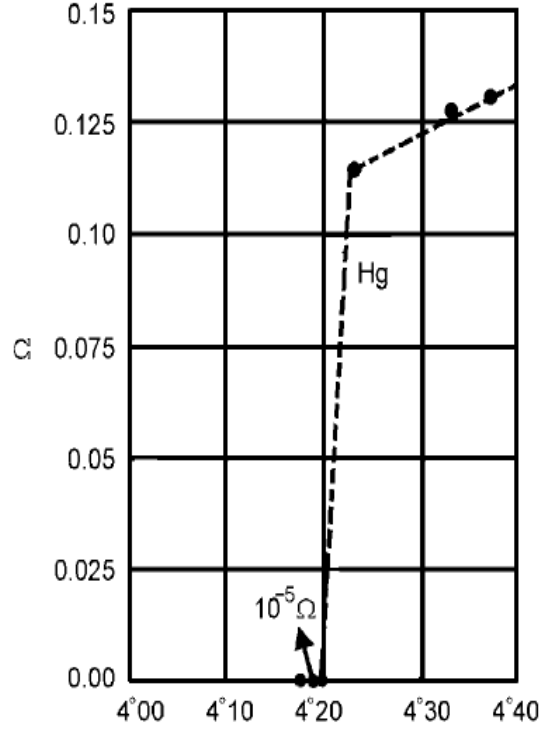
#### 1.1 Süperiletkenliğin Keşfi

Hollandalı Fizikçi Heike Kamerlingh Onnes' in 1908 yılında Helyum' u sıvı hale dönüştürmeyi başarmasıyla 4,2 K' e kadar olan düşük sıcaklıklarda sıcaklığa bağlı fiziksel özelliklerin araştırılması mümkün hale gelmiştir. Sıvı Helyum' un keşfinden 3 yıl sonra Kamerlingh Onnes, Leiden Üniversitesinde, civa metalinin direncinin 4,19 K' de sıfıra düştüğünü gözlemlemiştir (Şekil 1.1). Bu gözlem süperiletkenliğin keşfi olarak bilinmektedir. Bu çalışmasından dolayı Kamerlingh Onnes 1913 yılında Nobel Fizik ödülü kazanmıştır. Süperiletkenlik durumunda kritik bir  $T_c$  civarında örnek normal elektrik direncine sahip bir fazdan sıfır direnç durumunu gösteren süperiletkenlik fazına geçiş yapmaktadır. Malzemenin fiziksel görüntüsünün değişmemesine rağmen, normal metal durumundan süperiletken duruma geçişi, bir faz değişimini gösterir. Bu faz değişiminin gerçekleştiği sıcaklığa “kritik sıcaklık” denir ve  $T_c$  ile gösterilir. Civanın süperiletkenliği keşfedildikten sonra, yapılan çalışmalarda başka elementlerin ve bileşiklerinde Kurşun' un (Pb) 7,2 K' de (1913), Niyobyum' un (Nb) 9,2 K' de (1930) süperiletken olduğu anlaşıldı.

Sıfır dirence ek olarak süperiletken bir malzeme aynı zamanda kusursuz diyamanyetik özellik gösterir. Süperiletkenliğin H. K. Onnes tarafından 1911 yılında keşfinden 1933 yılına kadar süperiletkenin bir ideal iletken olduğu yani sadece sıfır dirence sahip olduğu düşünülüyordu. Kusursuz diyamanyetizma özelliği keşiften yaklaşık 22 yıl sonra W. Hans Meissner ve R. Ochsenfeld tarafından gözlenmiştir. W. Hans Meissner ve R. Ochsenfeld 1933 yılında süperiletkenlerin manyetik özelliklerini incelediler ve manyetik alanda soğutulan bir süperiletkenin, kritik sıcaklık altında manyetik akıyı dışarladığını buldular (Askerzade, 2005).

Süperiletkenler, sıfır elektriksel direnç ve mükemmel diyamanyetizma gibi iki temel özelliğe sahiptirler. Süperiletkenin sıfır dirence sahip olması indüklenen

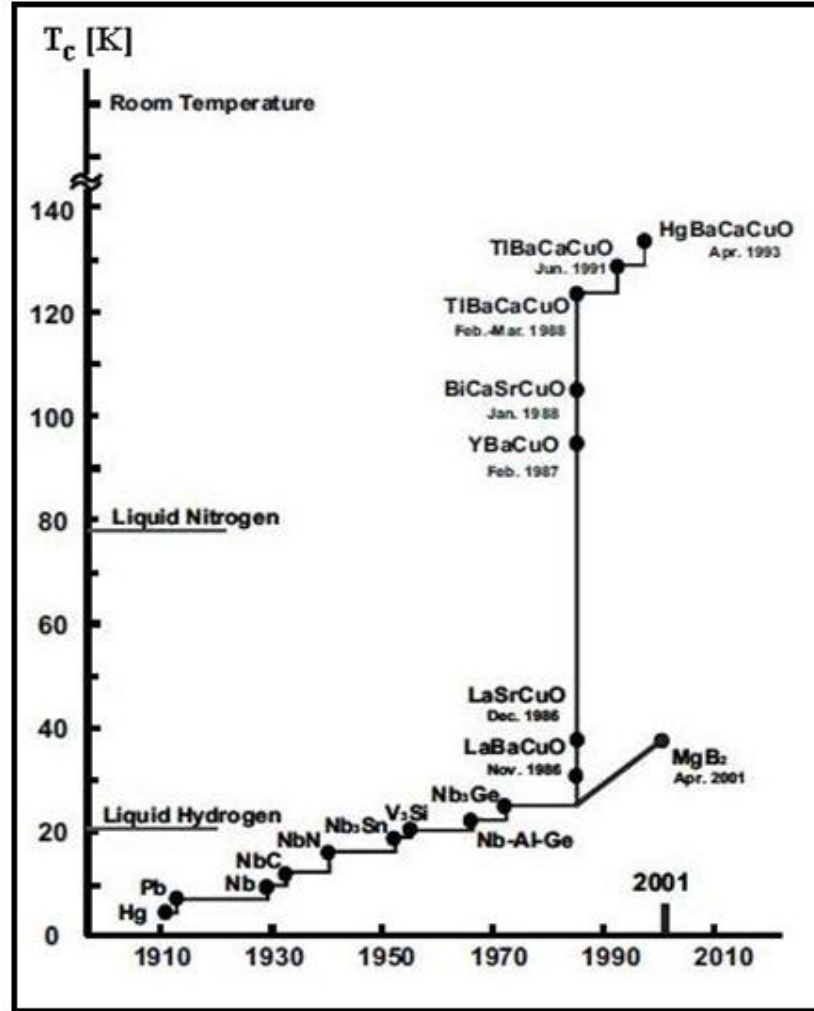
akımların kayıpsız bir şekilde akmasına yol açar. Mükemmel diyamanyetizma özelliği ise süperiletkenin uygulanan manyetik akıyı dışarlamasına neden olur.



Şekil 1.1 1911 yılında Civa metalinde süperiletkenliği keşfettiğinde Kamerlingh Onnes tarafından elde edilen direnç-sıcaklık grafiği (Poole, Farach ve Creswick, 1995).

Bilim insanları, yıllarca, daha yüksek sıcaklıklarda süperiletkenlik gösteren yeni malzemeleri bulmaya çalıştılar. 1986 yılına kadar, bilinen en yüksek kritik sıcaklığa sahip olan malzeme,  $T_c$ ' si 23,2 K olan  $Nb_3Ge$  alaşımıydı. 1986' nın başlarında, Zürich IBM Araştırma Laboratuvarında J. George Bednorz ve Karl Alex Müller, lantanyum, baryum ve bakır oksit bileşiğinde seramiğinin yaklaşık 30 K' de süperiletken olduğunu buldular. 1986 yılı, yüksek sıcaklık süperiletkenliği üzerine yapılan çalışmaların başlangıcı sayıldı. 1986' da  $LaBaCuO$ ' de yüksek sıcaklık süperiletkenliğinin keşfinden sonra, bir çok bakır oksit tabakalı (cuprate) yüksek sıcaklık süperiletkenleri sırasıyla keşfedilmiştir. 1987' nin başlarında, Alabama ve Houston Üniversitesindeki araştırma grupları; yitrium, baryum, bakır ve oksijenden (YBCO) oluşan karışık bir fazda 92 K' e yakın bir sıcaklıkta süperiletkenlik gözlemlendiği haberini verdiler. Bu bileşiğin geçiş sıcaklığı, kolayca bulunabilen ve bir soğutucu olan sıvı azotun kaynama sıcaklığı olan 77 K' in üzerindedir. Bu buluş

yüksek sıcaklık süperiletkenliği için bir dönüm noktası olmuştur. Süperiletkenliğin meydana geldiği  $\text{CuO}_2$  düzlemlerinden oluşan tabakalı bir yapıya sahip olan diğer tabakalı süperiletkenler sırasıyla, Y-Ba-Cu-O, Bi-Ca-Sr-Cu-O, Tl-Ba-Ca-Cu-O ve Hg-Ba-Ca-Cu-O' dir. Bu süperiletkenlerin hepsi “Yüksek Sıcaklık Süperiletkenleri (HTSC)” veya “Yüksek- $T_c$  Süperiletkenleri” olarak adlandırılırlar. Şekil 1.2 süperiletken geçiş sıcaklığının tarihsel gelişimini göstermektedir. Metalik süperiletken  $\text{MgB}_2$ ,  $T_c = 39$  K ile 2001 yılında keşfedilmiş ve son yıllarda çokça çalışılan bir malzeme olmuştur. 2008 yılında ise  $T_c \approx 56$  K' de bakır ve oksijen yerine demir ve arsenik içeren yeni bir grup keşfedilmiştir ve bu gelişme yüksek- $T_c$  süperiletkenlerine olan ilgiyi yenilemiştir.



Şekil 1.2 Süperiletken geçiş sıcaklığının tarihsel gelişimi (Das, 2012)

Süperiletkenler; yapılarına, süperiletkenlik özelliklerine ve geçiş sıcaklıkları  $T_c$ 'ye göre birçok sınıfa ayrılabilirler. Bazı süperiletken materyallerin sınıfları ve  $T_c$ 'leri tablo 1.1' de verilmiştir. Geleneksel süperiletkenler saf metaller Pb, Al, Ru ve Nb<sub>3</sub>Ge gibi alaşımlardır. Bu grubun  $T_c$ 'si 2001' de 39 K' lik  $T_c$  ile MgB<sub>2</sub>'nin keşfine kadar 23 K' den daha azdı. Geleneksel süperiletkenlerinin süperiletkenliğin mikroskopik mekanizması BCS teorisi ile açıklanabilir. Demir tabanlı süperiletkenler, en yüksek ikinci kritik sıcaklığa sahip sınıftır. Demir tabanlı süperiletkenlerine olan ilgi 2006' da 4K' de LaFePO' da süperiletkenliğin keşfi ile başladı.

Tablo 1.1 Süperiletken materyallerin sınıfları ve geçiş sıcaklıkları

| Materyal                                                                        | Geçiş sıcaklığı $T_c$ (K) | Sınıf                                                 |
|---------------------------------------------------------------------------------|---------------------------|-------------------------------------------------------|
| HgBa <sub>2</sub> Ca <sub>2</sub> Cu <sub>3</sub> O <sub>x</sub>                | 133                       | Bakır oksit<br>Süperiletkenleri                       |
| Bi <sub>2</sub> Sr <sub>2</sub> Ca <sub>2</sub> Cu <sub>3</sub> O <sub>10</sub> | 110                       |                                                       |
| YBa <sub>2</sub> Cu <sub>3</sub> O <sub>7</sub>                                 | 92                        |                                                       |
| SmFeAs (O,F)                                                                    | 55                        | Demir tabanlı<br>Süperiletkenler                      |
| CeFeAs (O,F)                                                                    | 41                        |                                                       |
| LaFeAs (O,F)                                                                    | 26                        |                                                       |
| MgB <sub>2</sub>                                                                | 39                        | Geleneksel<br>Süperiletkenler<br>(Metal ve Alaşımlar) |
| Nb <sub>3</sub> Sn                                                              | 18                        |                                                       |
| NbTi                                                                            | 9,3                       |                                                       |
| Nb                                                                              | 9,2                       |                                                       |
| Hg                                                                              | 4,2                       |                                                       |

## 1.2 Mükemmel Diyamanyetizma

Bir maddenin manyetik durumu, manyetizasyon vektörü (**M**) denen bir nicelikle betimlenir. Manyetizasyon, maddenin birim hacmindeki net manyetik momentine eşittir. SI biriminde M birim hacimdeki manyetik moment olduğuna göre, (Manyetik momentin birimi A.m<sup>2</sup> dir) birimi A/m' dir. Manyetik alınganlık ( $\chi$ ) ile manyetizasyon (M) ve uygulanan dış alan (H) arasında

$$\chi = M/H = m/VH \quad (1.1)$$

şeklinde bir ilişki vardır (Youssif, Bahgat ve Ali, 2000). Denklemden M manyetizasyonu, H ise uygulanan manyetik alanı ifade eder.

Alınanlığın  $\chi=-1$  olması anlamına gelen mükemmel diyamanyetizma özelliği, manyetizasyon **M**, **H** alanına ters yönde alanı etkisiz hale getirdiği için kusursuz bir diyamıknatıs içinde **B** alanı olamayacağı anlamına gelmektedir.

$$\mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{H}(1 + \chi) \quad (1.2)$$

$$= \mu_0 (\mathbf{H} + \mathbf{M}) \quad (1.3)$$

$$\mathbf{M} = -\mathbf{H} \quad (1.4)$$

Bir mıknatısın kutupları arasına bir süperiletken yerleştirildiğinde, mıknatıstan **B** alan çizgileri içine girmek yerine etrafından geçer ve kendi iç alanı sıfır olarak kalır.

Süperiletkenlerde mükemmel diyamanyetizmanın iki durumu vardır. Birincisi akı dışarlamasıdır (flux exclusion). Eğer normal durumdaki bir materyal sıfır alanında soğutulursa (ZFC), yani, hiçbir manyetik alan olmadan süperiletken duruma  $T_c$  seviyesinin altına kadar soğutulursa ve sonra dış bir manyetik alana yerleştirilirse, alan süperiletkenden dışarlanır. İkinci durum ise akı çıkarılmasıdır (flux expulsion). Eğer aynı madde normal durumunda manyetik bir alana yerleştirilirse, geçirgenlik ( $\mu$ ) serbest alan değerine ( $\mu_0$ ) çok yakın olduğundan alan nüfuz eder ve içerde ve dışarıda hemen hemen aynı değeri alır. Sonra bu madde alan soğutulduğunda (FC), yani, bu alanın varlığında  $T_c$ ' in altına soğutulursa, alan materyalden çıkarılacaktır, bu olay Meissner etkisi olarak bilinir. ZFC ve FC nin aynı sonucu ( $T_c$ ' nin altında örneğin içinde manyetik akının yokluğu) getirmesine rağmen, bu süreçler birbirine denk değildir (Poole ve diğer., 1995).

### 1.3 Meissner Etkisi

Süperiletkenliğin keşfinden sonra, 22 yıl boyunca, genel olarak süperiletkenin ideal bir iletken olduğuna yani sıfır dirençli bir metal parçası olduğuna inanılırdı. Ancak W. Meissner ve R. Ochsenfeld (1933) tarafından yapılan deney bir başka önemli özelliği ortaya çıkarmıştır.  $T < T_c$ ' de süperiletken örneğin içinde alanın, bir dış alanın varlığında, her zaman sıfır ( $B = 0$ ) olduğunu bulmuşlardır.

Süperiletken durum aşağıdaki denklemlerle tanımlanır,

$$\rho = 0 \quad (1.5)$$

$$B = 0 \quad (1.6)$$

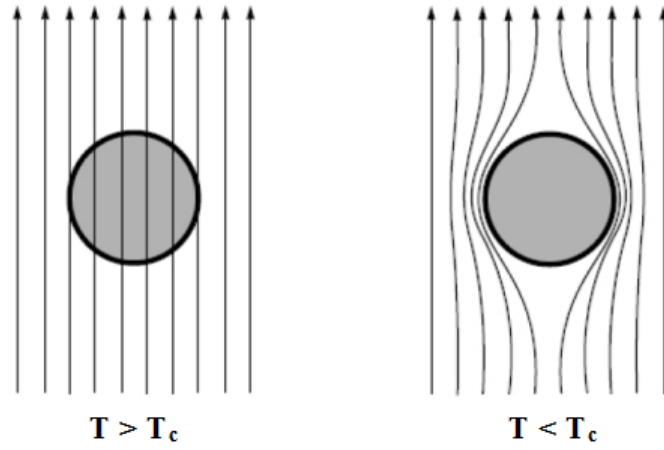
Hans Meissner ve R. Ochsenfeld tarafından ilk kez gözlenen bu olayda, manyetik alan içindeki bir süperiletken kritik geçiş sıcaklığının ( $T_c$ ) altına kadar soğutulduğunda, manyetik alan çizgileri dışarı atılmıştır. Manyetik alanın bu şekilde dışarlanması Meissner etkisi olarak bilinir (Şekil 1.3).

Başlangıçta süperiletken sıfır dış alanda kritik sıcaklığın altına kadar soğutulsun. Daha sonra dış bir alan uygulansın. Alan süperiletkenin yüzey tabakasına nüfuz ettikten hemen sonra, Lenz yasasına göre, dış alanın tersi yönünde bir manyetik alan oluşturan indüklenen bir akıma neden olur. Buna bağlı olarak, örneğin iç kısmında toplam manyetik alan sıfırdır. Bu durum Maxwell denklemleri yardımı ile kanıtlanabilir. Manyetik alandaki bir değişim örnekte bir elektrik alan indükler.

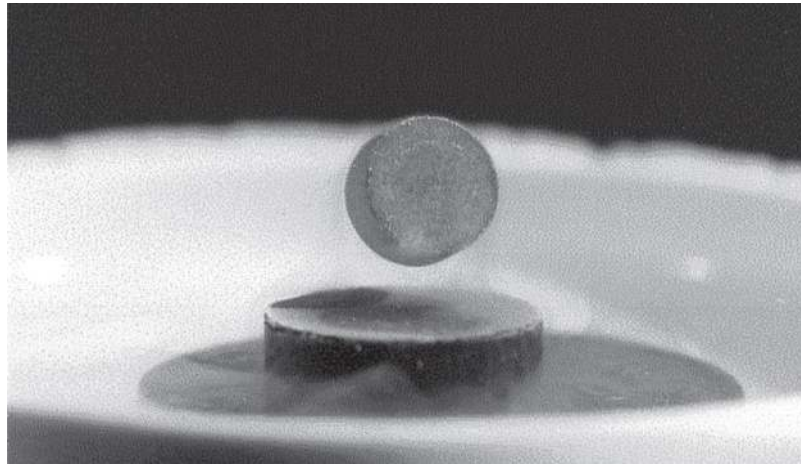
$$\nabla \times E = -\frac{1}{c} \frac{\partial B}{\partial t} \quad (1.7)$$

Dirençleri sıfır olduğundan süperiletken içinde elektrik alan sıfırdır. Elektrik alan sıfır olduğuna göre manyetik alan değişmez, yani süperiletken içinde manyetik alan sabit olmalıdır. Başlangıçta süperiletken içinde manyetik alan sıfır olduğuna göre manyetik alan yine sıfır olmalıdır (Müller, Ustinov ve Schmidt, 1997).

Meissner etkisinin en iyi gösterimi süperiletken üzerinde havada asılı duran mıknatıs deneyidir. Bir mıknatıs  $T_c$  sıcaklığından yukarıda bir süperiletken madde üzerine bırakılır ve daha sonra madde  $T_c$  sıcaklığının altına soğutulursa, içindeki manyetik alanı sıfırlamak üzere süperiletken içinde akımlar oluşur ve bu akımlar mıknatısı havaya kaldırıcı yönde kuvvet uygular (Şekil 1.4). Süperiletkenin direnci olmadığından akımlar hiç azalmaz ve mıknatıs sürekli havada durur.



Şekil 1.3 Meissner etkisi: süperiletken içerisindeki manyetik alanın dışarlanması (a) Normal şartlarda (süperiletkenliğe geçiş sıcaklığının üzerinde) manyetik alan uygulandığında oluşan durum. (b) Süperiletkenliğe geçiş sıcaklığının altında manyetik alan uygulandığında oluşan durum

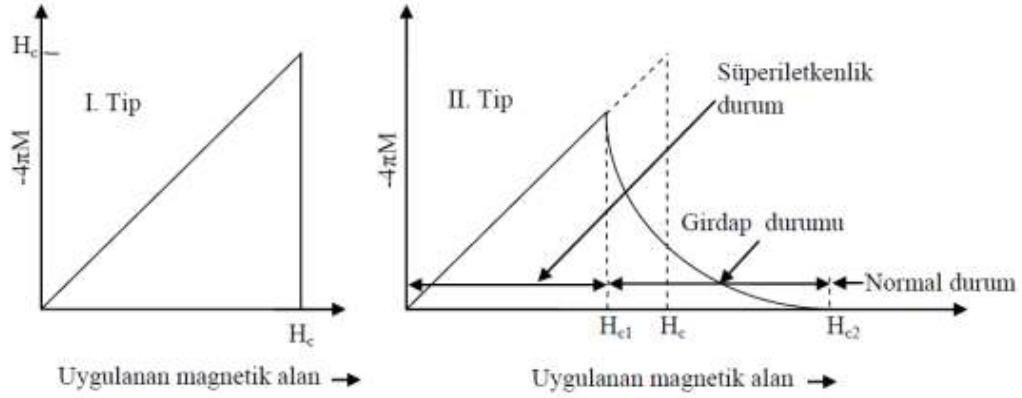


Şekil 1.4 Süperiletken üzerinde havada duran bir mıknatıs (Levitation) (Abd-Shukor, 2009)

#### 1.4 Süperiletkenlerin Manyetik Özellikleri

Süperiletkenler bir manyetik alanın varlığındaki karakteristik davranışlarına göre I. tip süperiletkenler ve II. tip süperiletkenler olmak üzere iki tipe ayrılır. I. tip ve II. tip süperiletkenler için mıknatıslanma eğrileri şekil 1.5’ de gösterilmiştir. I. tip süperiletkenler titanyum (Ti), alüminyum (Al), kalay (Sn), civa (Hg), kurşun (Pb), vb. gibi saf metallere oluşurken, II. tip süperiletkenler Niyobyum (Nb), Vanadyum (V) gibi saf metallere, alaşımlardan ya da iki ya da daha fazla metalin birleşmesinden

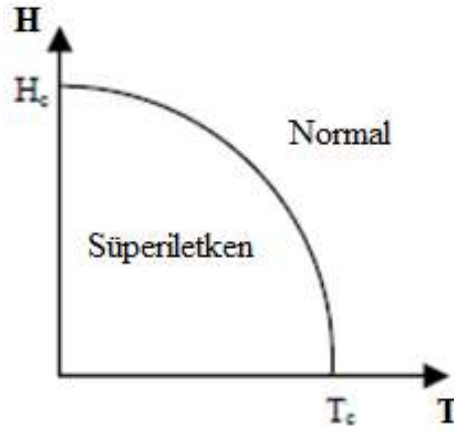
oluşmuş bileşiklerden oluşmaktadır. Her iki tipin ortak özelliği kritik sıcaklığın  $T_c$ , altında, dirençleri ortadan kaybolur.



Şekil 1.5 I. tip ve II. tip süperiletkenlerin mıknatıslanma eğrileri (Askerzade, 2005).

#### 1.4.1 I. Tip Süperiletkenler

Titanyum (Ti), alüminyum (Al), kalay (Sn), civa (Hg), kurşun (Pb) vb. gibi belli metaller kritik sıcaklıklarının altındaki sıcaklıklara kadar soğutulduklarında, elektriksel dirençleri tamamen ortadan kalkarak süperiletken olurlar. Bu metaller ilk keşfedilen süperiletkenlerdi ve daha sonra I. tip süperiletkenler diye isimlendirilmişlerdir. I. tip süperiletken  $H_c$ , kritik manyetik alan olarak nitelenen belli bir miktar manyetik alan değerine kadar manyetik alanı dışarılayarak tamamen diyamanyetik olur.  $H_c$ ' den büyük bir alanın varlığında ise süperiletkenlik durum aniden ve tamamen ortadan kalkar. I. tip süperiletkenler  $H_c$  kritik alan değerine kadar uygulanan alanı dışarılarlar. I. tip süperiletkenlerin birçoğu için kritik alan 0,1 tesladır. Tablo 1.2' de bazı I. tip süperiletkenlere ait kritik sıcaklık ve kritik manyetik alan değerleri verilmiştir.



Şekil 1.6 I. tip süperiletkende kritik alanın sıcaklık ile değişimi

Tablo 1.2 Bazı I. tip süperiletkenlerin kritik sıcaklık ve kritik manyetik alan değerleri

| Metal          | $T_c$ (K) | $H_c$ (T) |
|----------------|-----------|-----------|
| Alüminyum (Al) | 1,2       | 0,0105    |
| Kalay (Sn)     | 3,7       | 0,0305    |
| Civa (Hg)      | 4,2       | 0,0411    |
| Kurşun (Pb)    | 7,2       | 0,0803    |
| Niyobyum (Nb)  | 9,2       | 0,1991    |

#### 1.4.2 II. Tip Süperiletkenler

Abrikosov, I. tip süperiletkenlerin davranışından oldukça farklı, Ginzburg-Landau teorisiyle ilişkilendirdiği yeni birtakım olayları tanımlayan bir makale yayınlamıştır (Abrikosov, 1957). Abrikosov, 1957 yılında manyetik alanın II. tip süperiletkenler için  $H_{c1} < H < H_{c2}$  aralığında manyetik akının kuantize olmuş akı çizgileri (vorteks) şeklinde örnek içerisine girmesi gerektiğini ifade etmiştir. Abrikosov, bu yeni tür süperiletkenlere  $\mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{H}$  biçiminde bir manyetik alan uygulandığında,  $H_{c1}$  alt kritik alan değerinden itibaren  $H_{c2}$  üst kritik alan değerine kadar sürekli artan bir biçimde süperiletken örneğe akının nüfuz edeceğini göstermiştir. Tablo 1.3’ de bazı II. tip süperiletkenlere ait kritik sıcaklık ve kritik manyetik alan değerleri verilmiştir.

II. tip süperiletkenlerinde I. tip süperiletkenlerinden farklı olarak  $H_{c1}$  ve  $H_{c2}$  olarak gösterilen iki kritik alan vardır. Uygulanan alan,  $H_{c1}$  alt kritik alanından küçükse, madde tam olarak süperiletkendir ve I. tip süperiletkenlerde olduğu gibi örneğe manyetik alan giremez.  $H_{c1}$  ile  $H_{c2}$  kritik manyetik alan değerleri arasındaki alan

değerlerinde örnek karışık halde bulunur. Karışık halde süperiletken madde sıfır dirence sahip olabilir ve manyetik alan kısmen nüfuz edebilir.  $H_{c1}$ ' den büyük alanlarda manyetik alan kısmen dışarlanır, fakat malzeme elektriksel olarak süperiletken olma özelliğini sürdürür. Uygulanan alan, alt kritik alanı geçtiğinde, normal kısımlardan oluşan vorteksler oluşur. Uygulanan alanın şiddeti arttıkça vorteks sayıları artar ve alan üst kritik alana ulaştığında, örnek tamamen normal hale geçer. Bu vorteksler Abrikosov vorteks örgü olarak adlandırılan bir örgü tipini oluşturur. Her bir vorteks bir manyetik akı kuantumu taşır (Tinkham, 1996).

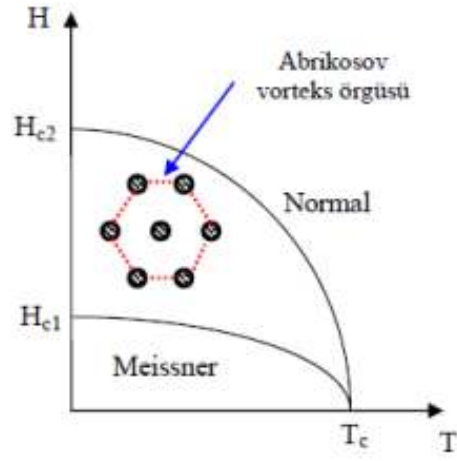
$$\Phi_0 = \frac{h}{2e} = 2,067 \times 10^{-5} \text{ Wb} \quad (1.8)$$

Burada  $h$  Planck sabitidir ve  $e$  elektronun yüküdür.  $H_{c2}$ ' den yüksek alanlarda, süperiletken normal duruma geri döner.

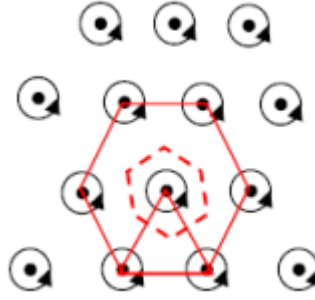
Uygulanan manyetik alan  $H$  karışık durumunda  $H_{c1} < H < H_{c2}$  bir süperiletkene nüfuz eder. Nüfuz etme, vorteksler olarak adlandırılan, tüpler formunda meydana gelir ve akıyı hapseder. Çekirdekdeki en yüksek alan, eşyuyum uzunluğunda ( $\xi$ ) yarıçapa sahiptir. Çekirdek şekil 1.10' da gösterildiği gibi çekirdeğin etrafında akan manyetik akı ve perdeleme akımlarının birlikte bulunduğu ve daha geniş nüfuz derinliği ( $\lambda$ ) yarıçaplı bir bölge tarafından sarılmıştır. Bu koruma akımlarının akım yoğunluğu  $J_s$ , çekirdeğe uzaklık ile yaklaşık olarak üssel bir şekilde azalmaktadır. Abrikosov vorteks örgüsünde her bir vorteks diğer vorteksler tarafından hekzagonal bir dizi şeklinde çevrelenmiştir.

Tablo 1.3 Bazı II. tip süperiletkenlerin kritik sıcaklık ve kritik manyetik alan değerleri

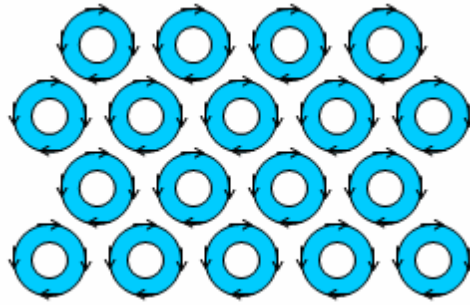
| Bileşik                          | $T_c$ (K) | $H_{c2}$ (T) |
|----------------------------------|-----------|--------------|
| NbTi                             | 9,3       | 15           |
| Nb <sub>3</sub> Sn               | 18        | 24,5         |
| Nb <sub>3</sub> Ge               | 23        | 38           |
| Nb <sub>3</sub> Al               | 18,7      | 32,4         |
| PbMo <sub>6</sub> S <sub>8</sub> | 14,4      | 60           |



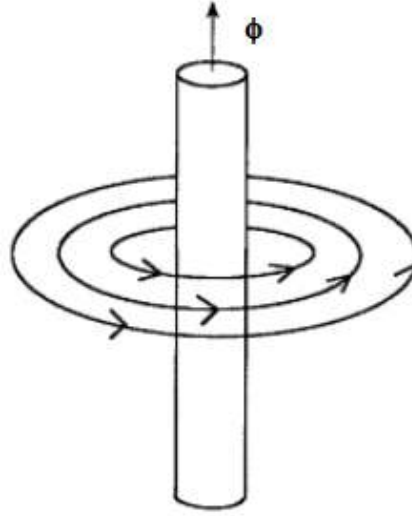
Şekil 1.7  $H_{c1}$  ve  $H_{c2}$  arasında bulunan vorteks kristalinin faz diyagramı



Şekil 1.8 Üçgensel vorteks dizilerinin şematik diyagramı



Şekil 1.9 II. tip süperiletkenlerin vorteks durumu. Süperiletken vorteksler düzenli üçgensel örgü formundadır. Vorteks merkezleri normal durumdadır (Müller ve diğerleri, 1997).



Şekil 1.10 Bir vorteks çekirdeğinin etrafında dönen perdeleme akımlarının çizimi (Poole ve diğerleri, 1995).

#### 1.4.3 Nüfuz Derinliği

Süperiletkenlerin özelliğini belirlemede kullanılan boyutsal temel parametrelerden biri nüfuz derinliğidir ( $\lambda$ ). Dışarıdan uygulanan manyetik alan süperiletkenin içine girdiğinde manyetik akı aniden sıfıra düşmez, fakat üstel olarak azalır. Yani süperiletken üzerine manyetik alan uygulandığında, içteki akıyı sıfırlamak için yüzeyinde perdeleme akımları oluşturur. Bu yüzey akımları, nüfuz derinliği olarak adlandırılan çok ince bir kalınlıktaki tabakada akar. Perdeleme akımları süperiletken yüzeyinde aniden sıfır olmaz, yüzeyden içeriye doğru azalarak sıfıra düşer. Bu uzaklığa nüfuz derinliği ( $\lambda$ ) denir.

Yüksek sıcaklık süperiletkenlerinde nüfuz derinliği yöne bağımlıdır (anizotropi). YBCO' da  $\lambda_{ab}$  yaklaşık 145 nm iken,  $\lambda_c$  600 nm' dir. ab düzlemindeki nüfuz derinliği, CuO düzlemine dik olan c yönünden daha küçüktür. Tablo 1.4' de bazı süperiletkenler için nüfuz derinliği değerleri verilmektedir.

Tablo 1.4 Bazı süperiletkenler için nüfuz derinliği (Müller ve diğerleri, 1997)

| Süperiletken             | Hg                     | Al  | Nb  | Pb  | YBaCuO                  | MgB <sub>2</sub>        |
|--------------------------|------------------------|-----|-----|-----|-------------------------|-------------------------|
| $\lambda(0), \text{\AA}$ | 380-450<br>(Anizotrop) | 500 | 470 | 390 | 250-1250<br>(anizotrop) | 250-1400<br>(anizotrop) |

#### 1.4.4 Eşuyum Uzunluğu

Süperiletkenlikle ilgili önemli boyutsal parametrelerden biri de eşuyum uzunluğudur. Eşuyum uzunluğu ( $\xi$ ), üzerinde süperiletkenliğin oluşturulabildiği veya yok edilebildiği en küçük boyut olarak düşünülebilir. Bir başka tanımla, bir Cooper çiftindeki iki elektron arasındaki ortalama uzaklık, eşuyum uzunluğu olarak adlandırılır. BCS teorisinin çerçevesinde, eşuyum uzunluğu ve enerji aralığı  $T=0$ ’ da aşağıdaki şekilde birbiri ile ilişkilidir;

$$\xi_0 = \frac{\hbar v_F}{\pi \Delta(0)} \quad (1.9)$$

Burada  $v_F$  fermi hızıdır (Fermi yüzeyinde),  $\xi_0$  iç eşuyum uzunluğudur ve sıcaklıktan bağımsızdır. Eşuyum uzunluğu metal süperiletkenlerde geniştir: Al’ da  $\xi=16000 \text{ Å}$  ve Nb’ da  $\xi=380 \text{ Å}$  dur.

Yüksek- $T_c$  Süperiletkenlerinde, bir cooper çiftindeki iki elektron arasındaki ortalama uzaklık, yani eşuyum uzunluğu, geleneksel süperiletkenlerdeki eşuyum uzunluğuna kıyasla çok kısadır. Yüksek- $T_c$  Süperiletkenlerindeki kısa eşuyum uzunluğu geniş enerji aralığının ve küçük Fermi hızının bir sonucudur. Eşuyum uzunluğunun küçüklüğü Yüksek- $T_c$  Süperiletkenlerinin önemli bir özelliğidir.

Ayrıca, Yüksek- $T_c$  Süperiletkenlerinin iki boyutlu yapısından ötürü, eşuyum uzunluğu kristal yönüne göre değişir, c eksen boyunca eşuyum uzunluğu,  $\xi_c$ , düzlem içi eşuyum uzunluğundan  $\xi_{ab}$  çok daha küçüktür. Farklı boşluk katkılı Yüksek- $T_c$  Süperiletkenlerde, düzlem içi eşuyum uzunluğu  $10-35 \text{ Å}$  arasında değişirken, düzlem dışı eşuyum uzunluğu ise yalnızca  $1-5 \text{ Å}$ ’ dur. Genelde düşük- $T_c$  süperiletkenlerinde düzlem içi eşuyum uzunluğu yüksek- $T_c$  süperiletkenlerinkinden daha geniştir (Mourachkine, 2002). Bazı süperiletkenler için kritik sıcaklık  $T_c$ , eşuyum uzunluğu,  $\xi$ , nüfuz derinliği,  $\lambda$  değerleri Tablo 1.5’ de verilmektedir.

Tablo 1.5 Bazı süperiletkenler için kritik sıcaklık  $T_c$ , eşyuyum uzunluğu,  $\xi$ , nüfuz derinliği  $\lambda$  (Mourachkine, 2002)

| Bileşik        | $T_c(K)$ | $\xi_{ab}(A^\circ)$ | $\xi_c(A^\circ)$ | $\lambda_{ab}(A^\circ)$ | $\lambda_c(A^\circ)$ |
|----------------|----------|---------------------|------------------|-------------------------|----------------------|
| <b>LSCO</b>    | 38       | 33                  | 2,5              | 2000                    | 20000                |
| <b>YBCO</b>    | 93       | 13                  | 2                | 1450                    | 6000                 |
| <b>Bi-2212</b> | 95       | 15                  | 1                | 1800                    | 7000                 |
| <b>Bi-2223</b> | 110      | 13                  | 1                | 2000                    | 10000                |

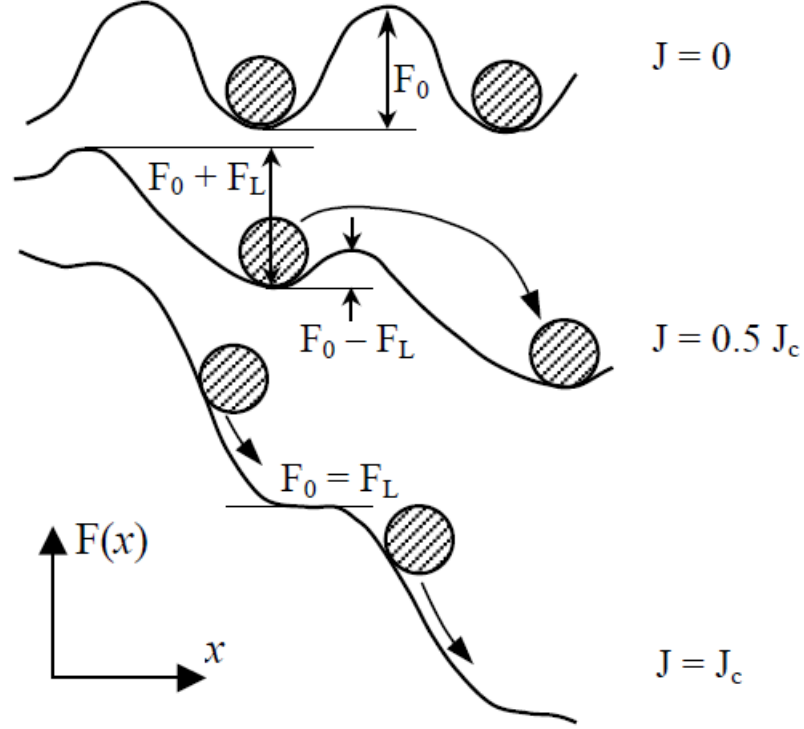
#### 1.4.5 Akı Sürüklenmesi ve Akı Akışı

Mükemmel derecede saf olan materyalde, akı çizgileri kolaylıkla hareket edebilir ve uygulanan alana göre yoğunluklarını düzenleyebilir. Akı akışı, tüm akı çizgilerinin hareketli olduğu, iğnelemenin olmadığı bir durumdur. Bu nedenle tüm akı çizgileri, uygulanan akım altında hareket ederler. Akı çizgilerinin bu hareketi, bir elektromotor kuvvet (emk) üretir. Bu emk, akı çizgisi çekirdeği içerisindeki normal elektronları ivmelendirir ve enerji kaybına sebep olur.

II. tip süperiletkenlerdeki safsızlıklar ve homojen olmayan bölgeler nedeni ile vorteksler iğnelenir ve onları hareket ettirebilmek için aşılması gereken bir enerji engeli meydana gelir. Akı iğnelemesi, vortekslerin  $F_0$  (iğneleme kuvveti) derinliğinde iğneleme kuyularına yerleştirilmiş gibi ele alınabilir. Vortekslerin bir kuyudan diğerine hareket edebilmesi için sıçraması gerekir (Şekil 1.11).

$J$  yoğunluğunda bir elektrik akımı II. tip bir süperiletken tarafından taşındığında, elektrik akımı akı çizgilerini geçer ve her bir vorteks üzerinde  $\vec{F}_L = \vec{J} \times \vec{B}$  bir Lorentz kuvveti oluşturur. İğneleme kuvveti  $F_0$ , Lorentz kuvvetinden  $F_L$  büyük olduğu sürece iğneleme kuyularının derinliği artan  $J$  ile küçülmesine rağmen vorteksler yerinde kalacaktır. Belli bir  $J_c$  değerinde, Lorentz kuvveti iğneleme kuvvetinden daha büyük olacak ve bütün vorteksler harekete geçecektir (Şekil 1.11). Bu hareket “akı akışı” olarak isimlendirilir.  $J_c$ , kritik akım yoğunluğudur ve çok önemli karakteristiktir; çünkü süperiletkenin taşıyabileceği maksimum akımı verir ve bunun üzerinde materyal yeniden normal hale geçer. Yüksek sıcaklık süperiletkenlerinde, belli bir oranda akı hareketi, vorteks örgüsünün ısısal dalgalanmaları vasıtasıyla gerçekleşir. Akı çizgilerinin ısısal enerjisi onların bulundukları denge konumlarının etrafında

titreşim yapmalarına sebep olur. Bu hareket daha yavaş ve genelde ara sıra ortaya çıkan bir harekettir ve “akı sürüklenmesi” olarak isimlendirilir (Sheahan, 1994).



Şekil 1.11 Akı akışı mekanizması. Manyetik alanda akımın varlığı Lorentz kuvvetinin oluşmasına neden olur. Bu kuvvet merdiveni eğeri ve akı çizgilerinin iğneleme kuyularından daha kolay bir şekilde çıkmasına izin verir (Sheahan, 1994).

#### 1.4.6 Akı İğnelenmesi

Çok fazla kristal kusur içermeyen bir II. tip süperiletkeni karışık durumda iken ve süperiletkene bir akım uygulandığında, vorteks akısı Lorentz kuvveti tarafından indüklenir. Ancak, süperiletken materyallerde bulunan bazı kristal kusurları, vortekslerin üzerindeki Lorentz kuvvetlerine karşı vorteks akısını yavaşlatan iğneleme kuvvetlerini uygular. Bu vorteks iğnelemesidir ve bu kusurlar iğneleme merkezleri olarak adlandırılır.

II. tip süperiletkenlerde alt kritik manyetik alan değerine kadar uygulanan manyetik alanlarda Meissner etkisi tam olarak geçerlidir, yani süperiletken içinde

manyetik akı sabittir ve bu sabit sıfırdır. Akı hareketi olmadığı için de herhangi bir enerji harcanmamakta ve böylelikle de direnç oluşmamaktadır. Ancak alt kritik manyetik alandan daha büyük manyetik alan uygulandığında manyetik akı süperiletken malzeme içerisine manyetik akı tüpleri şeklinde nüfuz etmeye başlar. Manyetik alan süperiletken içine rastgele giremez. Her bir akı tüpü,  $\Phi_0 = h/2e = 2,067 \times 10^{-15}$  Wb kadar manyetik akı taşır. Uygulanan alan arttırıldığında malzeme içerisindeki akı artar, akı tüpleri arasındaki mesafe azalır ve üst kritik manyetik alan değerinden daha büyük olduğunda malzeme tamamen normal hale geçer.

Karışık haldeki bir süperiletkenden akım geçirilirse akı tüpleri üzerine Lorentz kuvveti etki eder.

$$\vec{F}_L = \vec{j} \times \vec{B} \quad (1.10)$$

Bu kuvvet akı vortekslerinin merkezindeki normal haldeki elektronların hareket etmesine neden olacaktır. Manyetik akı tüplerinin hareket etmeye başlaması (akı hareketi) sistemden enerji çekecek ve akıma dik bir elektrik alan indükleyecektir, bu nedenle akım bir dirençle karşılaşacaktır. Bu direnç süperiletkenliğin bozulmasının normal duruma geçişin bir göstergesidir. Böylece, hareket eden akı vorteksleri Maxwell denkleminde uygun olarak bir elektrik alan meydana getirecektir.

$$\vec{\mathcal{E}} = - \frac{d\Phi}{dt} \quad (1.11)$$

Bu nedenle uygulanan dış manyetik alan  $H_{c1}$ ' i aştığında, J akım yoğunluğu enerji kaybına neden olur. Bu enerji kaybı süperiletkende oluşan dirence eşittir. Buradan karışık durumdaki bir süperiletkenin kayıpsız olarak yüksek akım taşıyacağı anlaşılmaktadır. Dolayısıyla süperiletken bir malzemeden yüksek akım geçirmek için akı hareketini engellemek gerekir. Direnç oluşmaması örnek içerisindeki akının hareketsiz olması ile sağlanabilmektedir. Bu amaçla süperiletkenlerde iğneleme merkezleri adı verilen akı sabitleme merkezleri oluşturulmaya çalışılır. Bu merkezler hem akı tüpleri oluşurken daha az enerji harcanmasını sağlayacak hem de tüplerin hareketini minimuma indirerek daha az direnç ve daha yüksek akım yoğunluğu sağlayacaktır. Dolayısıyla pratik uygulamaların olabilmesi için II. tip süperiletkenlerinde akı çizgilerinin hareketini engelleyen bir mekanizma olmalıdır.

Böyle bir mekanizma örnekteki akı çizgilerini belirli bölgelere sabitlediği için “akı iğneleme kuvveti” ( $F_P$ ) olarak adlandırılır. İğneleme kuvvetinin varlığında

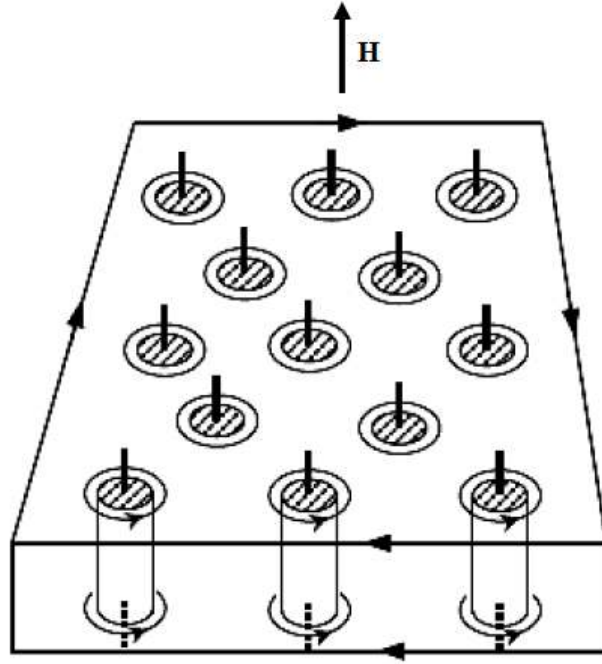
$$\vec{\varepsilon} = -\frac{d\Phi}{dt} = 0 \quad (1.12)$$

olur. Akı iğneleme kuvveti ( $F_P$ ), Lorentz Kuvvetine ( $F_L$ ) eşit veya daha büyük olduğu sürece akım süperiletkenden dirençsiz olarak akacaktır. Maksimum akı iğneleme kuvveti

$$\vec{F}_P = \vec{J}_c \times \vec{B} \quad (1.13)$$

olmalıdır. Burada  $J_c$ , II. tip süperiletkenler için akı çizgilerinin (vortekslerin) Lorentz kuvvetinin etkisiyle sabitlendikleri yerden kopmaya başladıkları kritik akım yoğunluğu olarak adlandırılmaktadır. Dolayısıyla  $J > J_c$  olduğunda örnek dirençli hale geçecektir. Lorentz kuvveti iğneleme kuvveti  $F_P$ ’ yi yenerek akı çizgilerini hareket ettirdiği zaman enerji kaybı meydana gelir. İğneleme kuvveti arttıkça kritik akım yoğunluğu artmaktadır.

Akı iğneleme merkezleri II. Tip süperiletkenlerinde oksijen boşlukları, örgü kusurları, dislokasyonlar, yabancı atomlar, tanecik sınırları veya normal bölgeler gibi kusurlu bölgelerdir. Süperiletken içinde elverişsiz bölgeler oluşturularak akı sabitlenmesi sağlanabilir. Süperiletken malzemeye yapılan katkılarının iğneleme merkezleri oluşturarak kritik sıcaklığı ve kritik akım yoğunluğunu yükseltmek ve yüksek manyetik alan altında daha iyi performans göstermelerini sağlamak mümkün olabilir. Ancak, yapılan katkılar (iğneleme merkezi olarak oluşturulan normal bölgeler) her zaman olumlu sonuçlar vermeyebilmektedir. Çünkü eşyuum uzunluğundan ( $\xi$ ) büyük olan kusurlar süperiletken fazın hacmini azaltarak materyalin süperiletken özelliklerini azaltabilmektedirler. Eşyuum uzunluğundan büyük olan kusurlar akı iğneleme merkezleri olarak değil zayıf bağ olarak davranırlar. Böyle büyük kusurlar süper akımın akışına karşı bir engel olarak davranacak ve madde içindeki süperiletken fazın hacmini azaltacaktır. Akı çizgileri için iğneleme merkezleri olarak görev yapan, süperiletken olmayan bu bölgeler mikroyapısal olarak homojen değildir. Farklı her süperiletken için eşyuum uzunluğu ( $\xi$ ) farklı olduğu için iğneleme merkezi boyutları farklıdır. Ancak genel olarak II. tip süperiletkenler için eşyuum uzunluğu birkaç nanometre mertebesinde. Düşük sıcaklıklarda ve küçük manyetik alanlarda akı iğneleme mekanizması güçlenir.



Şekil 1.12 Karışık durumdaki süperiletken içerisine giren akı çizgilerinin şematik gösterimi

### 1.5 Manyetik Alınganlık

Bir maddedeki toplam manyetik alan hem uygulanan dış alana hem de maddenin manyetizasyonuna bağlıdır. Toplam alan  $\mathbf{B}=\mathbf{B}_a+\mathbf{B}_m$  olur.  $\mathbf{B}_m$  manyetik maddenin oluşturduğu alandır.  $\mathbf{B}_m=\mu_0\mathbf{M}$  şeklinde ifade edilir. Dış alan  $\mathbf{B}_a=\mu_0\mathbf{H}$  şeklinde yazılacak olursa

$$\mathbf{B}=\mu_0(\mathbf{H}+\mathbf{M}) \quad (1.14)$$

şeklinde olur.

$$\mathbf{M}=\chi\mathbf{H} \quad (1.15)$$

şeklinde yazabiliriz. Bu durumda (1.14) denklemi

$$\mathbf{B}=\mu_0(1+\chi)\mathbf{H} \quad (1.16)$$

şeklinde ifade edilebilir.

$\mathbf{B}$  ve  $\mathbf{H}$  alanları için genel ifadeler,

$$B=\mu_0(\mathbf{H}+\mathbf{M})=\mu\mathbf{H}=\mu_0\mathbf{H}(1+\chi) \quad (1.17)$$

elde edilir. Bir süperiletken örneğin hem içinde hem dışında geçerlidir. Burada  $\mathbf{M}$  birim hacim başına manyetizasyon ya da manyetik moment,  $\mu_0$ ,  $\mathbf{M}=0$  ve  $\chi=0$  iken boş

bölgenin geçirgenliğidir ve  $\mu = \mu_0(1 + \chi)$  bir ortamın geçirgenliğidir. Dış bir manyetik alan  $B_a = H_a/\mu_0$  uygulandığında, manyetizasyon örneğin dışında boş bölgede  $M=0$ ' dır. Örneğin içinde B ve H alanları manyetizasyon M ile denklemdaki gibi ilişkilidir, böylelikle

$$B_i = \mu_0 H_i (1 + \chi) \quad (1.18)$$

Burada alınganlık

$$\chi = \frac{M}{H_i} \quad (1.19)$$

I. tip süperiletken için  $\chi = -1$ ' dir.

$$B_i = 0 \quad (1.20)$$

$$M = -H_i = -B_a/\mu_0 \quad (1.21)$$

$B_{c1}$  ve  $B_{c2}$  olmak üzere iki kritik alana sahip olan II. tip süperiletken için denk ifadeler aşağıdaki şekli alır.

$$B_i = 0 \quad (1.22)$$

$$0 \leq B_a \leq B_{c1}$$

$$M = -H_i = -B_a/\mu_0 \quad (1.23)$$

$$B_{c1} \leq B_a \leq B_{c2}$$

$$\mu_0 M = -(B_a - B_i) \quad (1.24)$$

Değişen bir ac alanı,  $H(t) = H_0 \cos \omega t$  örnek üzerine uygulandığında, Manyetizasyon

$$H(t) = H_0 e^{i\omega t} \quad (1.25)$$

$$M(t) = \chi H_0 e^{i\omega t} \quad (1.26)$$

Burada alınganlık  $\chi = \chi' - i\chi''$  şeklinde gerçek ve sanal kısımlardan oluşan ac alınganlıktır. Denklemden verildiği gibi, uygulanan alana bağlı olarak manyetizasyonun genel biçimi

$$M(t) = H_0 [(\chi' - i\chi'')(\cos \omega t + i \sin \omega t)] \quad (1.27)$$

$$M(t) = H_0 (\chi' \cos \omega t + \chi'' \sin \omega t) \quad (1.28)$$

şeklinde ifade edilebilir (Poole ve diğerleri, 1995).

Alınganlık bileşenleri ters Fourier dönüşümlerinden bulunur.

$$\chi' = \frac{1}{\pi H_0} \int_0^{2\pi} M(\omega t) \cos(\omega t) d(\omega t) \quad (1.29)$$

$$\chi'' = \frac{1}{\pi H_0} \int_0^{2\pi} M(\omega t) \sin(\omega t) d(\omega t) \quad (1.30)$$

Burada  $\chi'$  ve  $\chi''$  alınganlığın reel ve sanal bileşenleridir. Alınganlığın reel bileşeni taneler ve taneler arası etkileşmeler ile ilişkilidir. Sanal bileşen ise enerji kayıpları ile ilişkilidir.

Değişen bir ac alanı,  $H=H_0 \cos \omega t$ , örnek üzerine uygulansın. AC alan  $H'$  ya tepki olarak, örnekte ortalama yerel akı yoğunluğu  $\langle B \rangle$

$$\langle B \rangle = \mu_0 H_0 \sum_{n=1}^{\infty} [\mu_n' \cos(n\omega t) + \mu_n'' \sin(n\omega t)] \quad (1.31)$$

şeklinde. Burada  $\mu_n'$  ve  $\mu_n''$  kompleks bağıl geçirgenliğin  $\mu_n$  gerçek ve sanal kısımlarıdır. Aşağıdaki denklemi elde etmek için her iki tarafı  $\cos(\omega t)$  ile çarpıp, ve 0' dan  $2\pi/\omega$  ye integralini alalım.

$$\int_0^{2\pi/\omega} \langle B \rangle \cos \omega t dt = \mu_0 H_0 \left( \frac{\pi}{\omega} \right) \mu_1' \quad (1.32)$$

Benzer şekilde, aşağıdaki denklemi elde etmek için denklem (1.31)' in iki tarafı da  $\sin(\omega t)$  ile çarpalım.

$$\int_0^{2\pi/\omega} \langle B \rangle \sin \omega t dt = \mu_0 H_0 \left( \frac{\pi}{\omega} \right) \mu_1'' \quad (1.33)$$

Kompleks bağıl geçirgenlik,  $\mu$ , kompleks manyetik alınganlık,  $\chi$  terimleri ile tanımlanır.

$$\mu = 1 + \chi \quad (1.34)$$

Böylelikle, aşağıdaki denklemler elde edilebilir.

$$\chi_1' = \mu_1' - 1 \quad (1.35)$$

$$\chi_1'' = \mu_1'' \quad (1.36)$$

Denklem (1.31)-(1.36) yardımı ile yerel ortalama manyetik indüksiyon  $\langle B \rangle$  terimleri ile alınganlığın gerçek ve sanal kısımları tanımlanabilir:

$$\chi_1' = \left( \frac{\omega}{\pi \mu_0 H_0} \int_0^{2\pi/\omega} \langle B \rangle \cos(\omega t) dt \right) - 1 \quad (1.37)$$

$$\chi_1'' = \frac{\omega}{\pi \mu_0 H_0} \int_0^{2\pi/\omega} \langle B \rangle \sin(\omega t) dt \quad (1.38)$$

Böylece, örneğin içine nüfuz eden manyetik akı için  $\chi_1'$  in sayısal bir ifade verdiği görülebilir. Denklemdeki integral bütün bir Meissner dışarlama için kaybolur ve

$\chi_1' = -1$  ve tam bir akı nüfuzu için integral 1' dir ve  $\chi_1' = 0$  dır. Benzer şekilde  $\chi_1''$  için, bütünüyle süperiletken durumda,  $\chi_1'' = 0$  dır ve karışık süperiletken durumda  $\chi_1''$  ac kayıplarını yansıtan küçük bir pozitif sayıdır.

AC alınganlık ölçüm prensibi örneğe değişen küçük bir manyetik alan uygulamayı içerir. Örneğe bağlı olarak açığa çıkan akı değişimi örneği saran algılayıcı bir bobin ile belirlenir ve bobinde indüklenen voltaj saptanır. Bu voltaj örneğin manyetizasyonun zaman türevine orantılıdır (Nikolo, 1994). Alınganlık ölçüm sisteminde iki eş algılama bobini, birincil bobin içinde simetrik olarak konumlandırılmıştır ve devrede ikincil bobin olarak işlev görür (Şekil 1.13). İki algılama bobini istenmeyen dış kaynaklar tarafından indüklenen voltajlar ya da ac alanının kendisi tarafından indüklenen voltajları etkisiz hale getirmek için zıt olarak birleştirilmiştir.

#### ***1.5.1 AC Manyetik Alınganlık Ölçüm Yöntemi***

AC alınganlık ölçümü, deneysel bir teknik olarak materyallerin manyetik özelliklerini incelemek için oldukça kullanışlıdır. Süperiletken örneklerin manyetik alınganlıklarının sıcaklık ile değişimleri ac karşılıklı indüktans yöntemi ile ölçülmüştür. Manyetik alınganlığın gerçek ve sanal kısımlarını sıcaklığın, uygulanan ac alanının genliğinin ve frekansının fonksiyonu olarak ölçebilecek şekilde tasarlanmıştır. Yöntem iki bobinin karşılıklı indüktansının (ve böylelikle indüklenen voltajın) manyetik örnek içerlerine yerleştirildiğinde değiştiği gerçeğine dayandırılır.

AC karşılıklı indüktans yöntemine göre ölçüm yapabilmek için bir birincil bobin ile bu bobin içine yerleştirilmiş iki adet ikincil bobin kullanılır. AC alınganlık ölçer, genel olarak, birincil bobin ve birbirine ters bağlı, böylelikle örnek olmadığında, indüklenen voltaj sıfır olması gereken, ikincil bobinden oluşur (Youssif ve diğerleri, 2000). AC alınganlık ölçümlerinde kullanılan bobinlerin şematik gösterimi şekil 1.13' de gösterilmiştir. Birincil bobin alternatif akım ile beslenirse, ikincil bobinlerde bir gerilim indüklenir. İkincil bobinler birbirleri ile eşit ve ters yönde sarıldığından ikincil bobinlerden biri içinde örnek yokken ikincil bobinlerin uçları

arasındaki gerilim sıfırdır. İkincil sargılarından biri içine örnek yerleştirildiğinde, denge bozularak çıkışta örneğin alınganlığına orantılı bir gerilim ikincil bobinlerin uçları arasından ölçülebilir.

Örnek Meissner haline ulaştığında yani, süperiletken hale geçtiğinde,  $\chi=-1$  ve dolayısıyla şekilde görülen  $V_a=0$  olacak ve çıkışta  $V_o=V_b$  şeklinde maksimum gerilim belirecektir. Bu gerilim, örneğin manyetik alınganlığı ile doğrudan ilişkilidir. İkincil bobin boyunca ölçülen voltaj

$$v(t) = -d\Phi/dt \quad (1.39)$$

$M(t)$  ortalama  $V$  hacimli örneğin içindeki manyetik indüksiyondur,  $a$  yarıçaplı ters sarılmış  $N$  sarımlı bobinler boyunca manyetik akı;

$$\Phi = \mu_0 \pi a^2 N M(t) \quad (1.40)$$

olur. Böylelikle, ölçülen voltaj

$$v(t) = -\mu_0 \pi a^2 N dM(t)/dt \quad (1.41)$$

Kompleks manyetik alınganlık  $\chi_n'$  ve  $\chi_n''$  için  $M(t)$ ' nin aşağıdaki açılımı yapılabilir:

$$M(t) = \sum_{n=1}^{\infty} H_0 (\chi_n' \cos n\omega t + \chi_n'' \sin n\omega t) \quad (1.42)$$

Manyetizasyonun zamana göre türevi alınır,

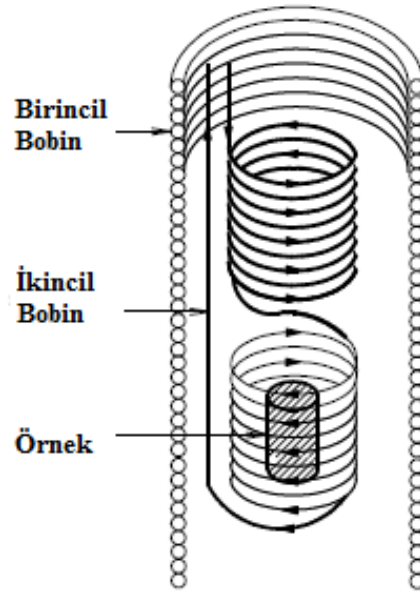
$$v(t) = \mu_0 \pi a^2 \omega N H_0 \sum_{n=1}^{\infty} n (\chi_n' \sin n\omega t - \chi_n'' \cos n\omega t) \quad (1.43)$$

$\mu_0 \pi a^2 \omega N H_0 = v_0$  olsun böylece

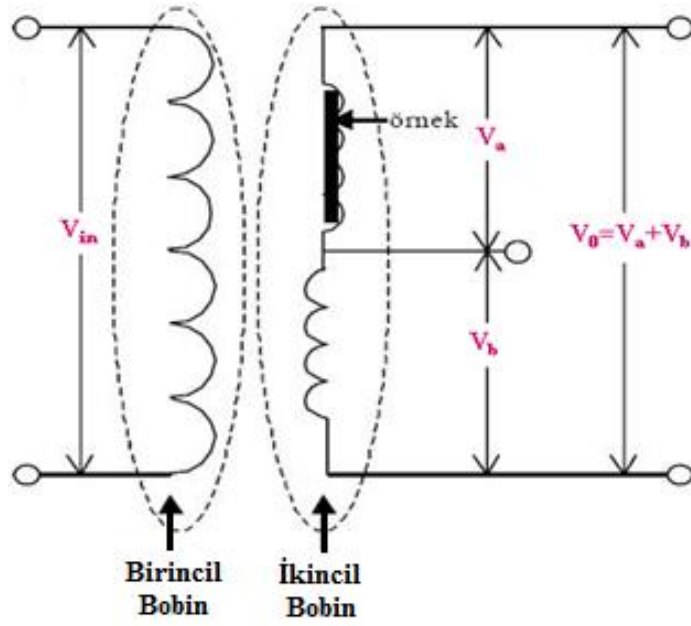
$$v(t) = v_0 \sum_{n=1}^{\infty} n (\chi_n' \sin n\omega t - \chi_n'' \cos n\omega t) \quad (1.44)$$

Burada lock-in yükseltici temel  $v_1$  ' i ölçmek için ayarlanabilir.

$$v_1 = v_0 (\chi_1' \sin \omega t - \chi_1'' \cos \omega t) \quad (1.45)$$



Şekil 1.13 Birincil ve ikincil bobin sistemi (Nikolo, 1994).



Şekil 1.14 Bobin sisteminin şematik gösterimi

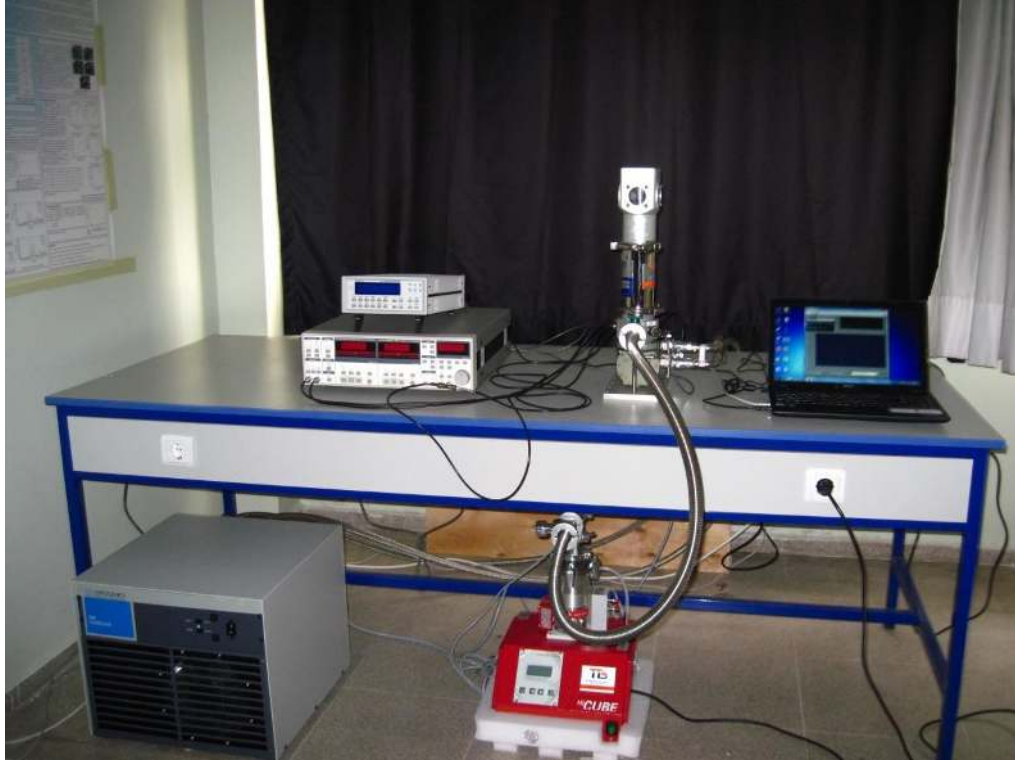
### ***1.5.2 AC Manyetik Alınganlık Ölçüm Sistemi***

AC manyetik alınganlık ölçümleri şekil 1.15’ de gösterilen sistem kullanılarak yapılmıştır. Bu sistem karşılıklı indüktans ölçüm yöntemi ile manyetik alınganlığın faz içi ve faz dışı bileşenini sıcaklığın, uygulanan ac alanın genliğinin ve frekansının fonksiyonu olarak ölçebilecek şekilde tasarlanmıştır.

AC manyetik alınganlık ölçüm sisteminin çalışma prensibi, örneğin küçük bir alternatif manyetik alan ile etkileşmesi esasına dayanır. Malzemeden kaynaklanan akı değişimi, örneğin saran bobin tarafından ölçülür ve bunun sonucunda bobinde indüklenen voltaj kaydedilir. Bu voltaj, örneğin manyetik alınganlığı ile doğrudan ilişkilidir.

AC manyetik alınganlık ölçüm sistemi, kapalı devre soğutma sistemi (8200 Compressor), kriyostat, örnek tutucu (şekil 1.16), bobin sistemi, vakum sistemi, Lock-in Yükseltici (Model SR830 DSP), sıcaklık kontrol sistemi, bilgisayar kontrol sisteminden oluşmuştur.

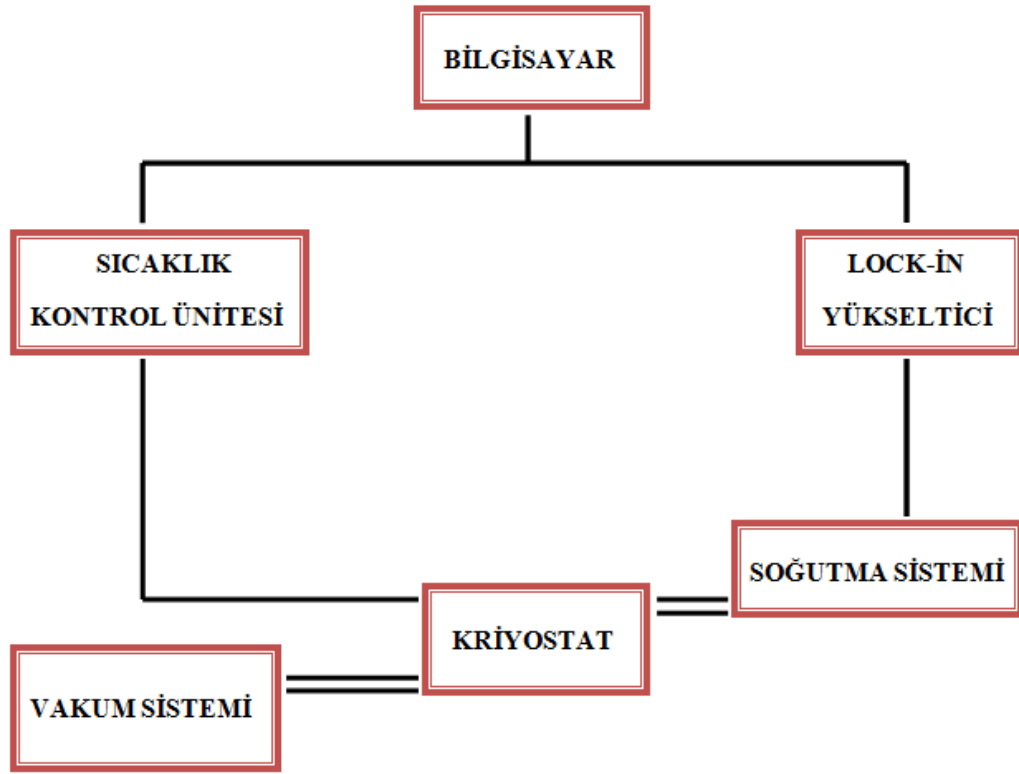
Kapalı devre sıvı helyum kullanan bir soğutma sistemi ile 10-325 K arasında sıcaklık kontrolü sağlanabilmektedir. Bu soğutma birimi helyum gazının sıkıştırılıp genişletilmesi prensibi ile soğutma yapmaktadır. Sistemin sıcaklık kontrolü ise Lake Shore 331 Temperature Controller ünitesi ile sağlanmaktadır. Ölçüm alınan malzemenin istenilen sıcaklıklarda kararlı olarak kalabilmesi için ısı kaybının önlenmesi gerekir. Bunun için yüksek düzeyde vakum yapılması gerekir. Sistemdeki vakum Pfeiffer Vacuum Hi Cube cihazı yardımıyla yapılmaktadır. AC alınganlık ölçüm sistemi, şematik olarak şekil 1.17’ de gösterilmektedir. Örneklerin manyetik alınganlıklarının sıcaklıkla değişimi LabVIEW programı yardımıyla incelenmiştir.



Şekil 1.15 AC alınganlık ölçüm sistemi (DEU Fizik Bölümü Süperiletkenlik Araştırma Laboratuvarı)



Şekil 1.16 AC alınganlık ölçüm sistemindeki örnek tutucu



Şekil 1.17 AC alınganlık ölçüm sisteminin şematik gösterimi

Süperiletken örneklerin manyetik özelliklerini belirlemede ac alınganlık ölçüm sistemi kullanılmıştır. Yüksek sıcaklık süperiletkenlerinde ac manyetik alınganlık

$$\chi(H,T) = \chi'(H,T) + i\chi''(H,T) \quad (1.46)$$

şeklinde ifade edilir. Burada,  $\chi'(H,T)$  ac manyetik alınganlığın gerçek kısmıdır. Reel bileşen ( $\chi'$ ) taneler ve taneler arası etkileşmeler ile ilişkilidir ve örneğin diyamanyetik geçişini temsil eder.  $\chi''(H,T)$  ac manyetik alınganlığın sanal kısmıdır. Sanal bileşen ( $\chi''$ ) ise enerji kayıpları (malzemeye uygulanan alandan soğrulan enerji) ile ilişkilidir.  $\chi'(T,H)$  reel bileşen manyetik akının tanelere ve taneler arasına girmesinden kaynaklanan iki aşamalı bir geçiş gösterir. Birincisi taneciklerin süperiletken faza geçtiğini gösteren geçiş sıcaklığıdır ( $T_{c1}$ ). Daha düşük sıcaklıklarda gözlenen kritik sıcaklık ise tanecikler arası diyamanyetik geçiş sıcaklığıdır ( $T_{c2}$ ). Örnek kritik geçiş sıcaklık değerinin altında bir sıcaklığa soğutulduğunda uygulanan alan ilk önce taneler tarafından dışlanır. Malzeme daha düşük sıcaklıklara soğutulduğunda ise tanecikten taneciğe kayıpsız bir şekilde süper akımların aktığı söylenebilir ve malzemenin tüm hacminin manyetik alanı dışlaması beklenir.

AC alınganlığın sanal kısmı kayıplara ilişkilidir. Manyetik alan arttığında ve kritik akım yoğunluğunun azalması sebebiyle  $\chi''(T,H)$  eğrisinin düşük sıcaklıklara doğru kayması ve genişlemesi beklenir. Alan genliğinin fonksiyonu olarak kayma miktarı iğneleme kuvvetinin şiddeti ile orantılıdır.  $\chi''$  nin maksimum değerindeki geniş kaymalar, iğnelemenin zayıflamasını ve kritik akım yoğunluğunun küçülmesini ifade eder.

### 1.6 Kritik Durum Bean Modeli

Karışık durumda olan II. tip süperiletkene vortekslere dik yönde akı uygulanırsa, vortekslere Lorentz kuvveti etki eder ve Lorentz kuvveti vorteksleri harekete geçirir. Faraday elektromanyetik indüksiyon yasasına göre elektrik alan oluşacaktır. Bu ise vortekslerin normal halde olan çekirdeğindeki elektronların hareketine ve dolayısıyla enerji kaybına neden olacaktır.

Homojen olmayan II. tip süperiletkenlerde örgü kusurları, dislokasyonlar, yabancı atomlar, tanecik sınırları veya normal bölgeler iğneleme merkezlerini oluşturur. Böylece vortekslerin hareketi için belli değerde akıya ihtiyaç olacaktır. Akının oluşturduğu Lorentz kuvveti vortekslerin iğneleme merkezlerinden kopmasına neden olur. Vortekslerin iğneleme merkezlerinden kopmaya başladığı akı yoğunluğu II. tip süperiletkenlerin kritik akı yoğunluğu  $J_c$  olarak belirlenir.

Bean Modeli (Bean, 1962, Bean, 1964) II. tip süperiletkenlerin manyetik özelliklerinin incelenmesi için kullanılmaktadır. Uygulanan manyetik alan örnek içine sızarken bir manyetik alanın gradiyentini oluşturduğu esasına dayanmaktadır. Maxwell denklemleri ile uyumlu bir şekilde alan rotasyoneli kritik akım yoğunluğuna eşittir.

$$\nabla \times \mathbf{H} = \mu_0 \mathbf{J} \quad (1.47)$$

Levha şeklindeki örneğe dış bir manyetik alan uygulandığında oluşan akım

$$\frac{d}{dx} H_z(x) = \mu_0 J_c \quad (1.48)$$

şeklinde olur. Örneğe dışarıdan manyetik alan uygulanması sonucu örnekte oluşan manyetik alan ve kritik akım yoğunluğu grafiği şekil 1.18' de gösterilmiştir.

Bean modeline göre, uygulanan manyetik alanın örnek içerisine girdiği bölgelerde kritik akım dolaşmaktadır. Dış manyetik alanın örneğin merkezine kadar ulaştığı duruma karşılık gelen manyetik alan,  $H_p = J_c a$  bağıntısı ile verilir. Burada  $a$  örneğin yüzeyinden merkezine olan uzaklıktır. Manyetik alan  $H_p$  ' den büyük olduğunda, kritik durum modeline göre yüzey akımı süperiletken içerisinden geçen süperiletken akım yoğunluğuna eşittir ve alanın artan değerleri için akım yoğunluğunda değişme gözlenmez. Manyetik alanın malzemeye  $x_0$  değerine kadar nüfuz ettiğini düşünürsek  $H = J_c(a - x_0)$  olacaktır.

Örnek içerisinde oluşan manyetik akı yoğunluğu,

$$B = \frac{\int H dv}{\int dv} \quad (1.49)$$

integrali ile hesaplanabilir. Sonsuz uzunlukta  $2a$  genişliğindeki ince bir levhada, dış alan ( $H < H_p$ ) örneğin  $x_0$  konumuna kadar ulaştığı durum için integral,

$$B = \frac{1}{a} \int_0^{x_0} H dx + \frac{1}{a} \int_{x_0}^a J_c (a - x_0) dx \quad (1.50)$$

şeklinde olacaktır. İntegral alınırsa sonuç olarak;

$$B = \frac{J_c}{2a} (a - x_0)^2 = \frac{H^2}{2H_p} \quad (1.51)$$

elde edilir.  $B$  için bulunan bu ifadede örneğin içerisinde başlangıçta hiçbir manyetik alan olmadığını ve herhangi bir anda  $H$  gibi bir manyetik alanın uygulandığı varsayılır.

Alınanlık terimlerini belirlemek için dış manyetik alanın değişimi  $H = H_0 \cos \omega t$  olarak belirlenebilir. Sonsuz uzunlukta  $2a$  genişliğindeki ince bir levha için  $H_0$  ' ın  $H_p$  ' den küçük olması durumunda manyetizasyon değerleri aşağıdaki şekilde bulunur. Bu durumda  $H_p > H_0$  için, örnek içerisindeki manyetik alan,

$$H_p > H_0$$

$$M = -H + (H^2 + 2HH_0 - H_0^2)/4H_p \quad -H_0 \leq H \leq H_0 \quad (1.52)$$

$$M = -H + (H_0^2 + 2HH_0 - H^2)/4H_p \quad H_0 \leq H \leq -H_0 \quad (1.53)$$

Alınganlık bileşenleri

$$\chi' = \frac{1}{\pi H_0} \int_0^{2\pi} M \cos w t d w t \quad (1.54)$$

$$\chi'' = \frac{1}{\pi H_0} \int_0^{2\pi} M \sin w t d w t \quad (1.55)$$

şeklindedir.

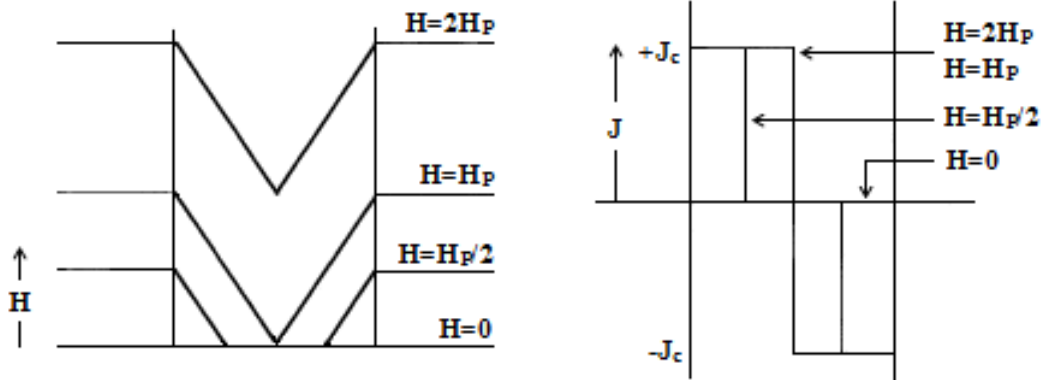
Bean modeline göre, sonsuz uzunlukta levha için alınganlık bileşenleri yukarıdaki denklemler kullanılarak analitik olarak türetilirse,

$$H_p > H_0$$

$$\chi' = \frac{H_0}{2H_p} - 1 \quad (1.56)$$

$$\chi'' = \frac{2H_0}{3\pi H_p} \quad (1.57)$$

şeklinde bulunur.



Şekil 1.18 Manyetizasyonun uygulanan alanla değişimi. Bean modeline göre levha şeklindeki örnek yüzeyine paralel uygulanan alanlar için manyetizasyon eğrileri, akım yoğunluğu grafiği, (Kritik akım yoğunluğu  $J_c$ 'nin alandan bağımsız olduğu varsayılır (Bean, 1964).

Bean modelinde, süperiletken içinde yalnızca iki durumun olması mümkündür, manyetik akı nüfuzu olmayan bölgeler için sıfır akım ve kısmi ve tam akı nüfuzu olan bölgelerde J yoğunluğu ile tam akım vardır. Süperiletken örneğin eni boyunca, akım yoğunluğu aşağıdaki gibidir,

$$J(x) = \begin{cases} 0, & H(x) = 0 \\ \pm J_c & H(x) \neq 0 \end{cases} \quad (1.58)$$

Deneyler, kritik akım yoğunluğunun manyetik alanın fonksiyonu olduğunu göstermiştir. Bean  $J_c$ 'nin B' den bağımsız olduğunu varsaymıştır.

Levha şeklindeki bir örneğe dış bir manyetik alan uygulandığını ve dış alanın  $H_a$  büyüklüğüne sahip olduğunu ve arttığını ele alalım. Lenz yasasına göre, perdelenen akımlar levhanın kenarlarında indüklenecektir. Bu indüklenen akımlar alanın değişimine karşı koyacak şekilde bir yöne sahip olacaktır ve levhanın içini kapamaya çalışacaktır. Alan yalnızca z bileşenine sahip olduğundan ve akım y yönünde aktığından, Ampere yasasında H' nin rotasyoneli bir terime indirgenir. Alan nüfuz profili düz bir çizgidir, eğimi  $J_c$  ile tanımlanır.

$$\frac{\partial H_z}{\partial x} = \mp J_c \quad (1.59)$$

Bu tezde, Bean modelini kullanarak teorik kritik akım yoğunluğu hesaplandı. Bu teoriye göre, pik sıcaklığının fonksiyonu ( $T_p$ ) olarak kritik akım yoğunluğu, pik sıcaklığında ( $T_p$ ) kritik akım yoğunluğu,

$$J_c(T_p) = \frac{H_p}{\sqrt{ab}} \quad (1.60)$$

şeklinde yazılabilir. Burada dikdörtgen şekilli örneklerin kesit yüzeyi  $2a \times 2b$  ve  $a < b$  dir (Çelebi, Karaca, Aksu, ve Gencer, 1998).

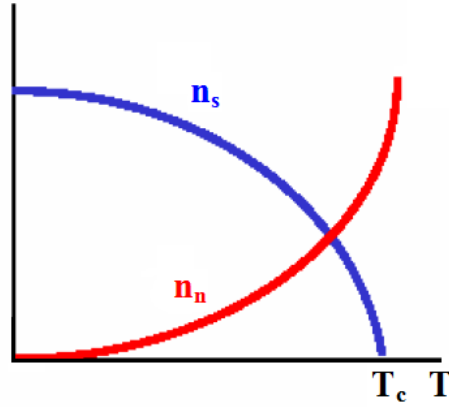
## BÖLÜM İKİ

### SÜPERİLETKENLİK TEORİLERİ

#### 2.1 London Teorisi

Süperiletkenliğin elektrodinamik özelliklerini açıklayan ilk teori London teorisidir. London teorisi, Süperiletkenliğin temel özellikleri olan diyamanyetizma sıfır direnç olayını iki denklem ile açıkladı.

London teorisine göre, süperiletkendeki elektronlar iki grubun karışımı olarak, süper elektron grubunun yoğunluğu  $n_s$  ve normal elektron grubunun yoğunluğu  $n_n$  şeklinde tanımlanır. Bir süperiletkendeki toplam elektron yoğunluğu  $n = n_s + n_n$ ’ dir. Süperiletkenin sıcaklığı  $T = 0$ ’ dan  $T = T_c$ ’ ye kadar artırıldığında, süperelektronların yoğunluğu  $n_s$ ,  $n$ ’den sıfır değerine düşer. Bu model iki akışkan modeli olarak bilinir. Hareketli süperelektronlar direnç ile karşılaşmazlar. Bu akımlar süperiletken içerisinde elektrik alanı oluşturmazlar. Eğer oluşturmuş olsalardı, süperiletken içerisindeki elektronlar sonsuza kadar ivmelenirlerdi. Bu yüzden durgun sistemde elektrik alanı olmaksızın normal elektronlar hareketsizdir (Askerzade, 2005).



Şekil 2.1 İki akışkan modeli

Elektrik alanı içerisindeki süperelektronların hareket denklemi:

$$n_s m \frac{d\vec{v}_s}{dt} = n_s e \vec{E} \quad (2.1)$$

şeklinde yazılabilir. Burada  $m$  elektronun kütlesi,  $e$  elektronun yükü,  $v_s$  süperakışkan hızı,  $n_s$  süper sıvının elektron yoğunluğudur. Süperakımların yoğunluğu  $\vec{J}_s = n_s e \vec{v}_s$  olmak üzere denklem

$$e \vec{E} = m \frac{d}{dt} \left( \frac{\vec{J}_s}{n_s e} \right) \quad (2.2)$$

$$\vec{E} = \frac{d}{dt} (\Lambda \vec{J}_s) \quad (\Lambda = \frac{m}{n_s e^2}) \quad (2.3)$$

elde edilir ve (2.3) denklemi 1. London denklemi olarak bilinir. Buradan hareketle, “Kararlı halde  $d\vec{J}_s/dt = 0$  olduğu zaman, süperiletken içerisinde elektrik alan yoktur” yargısına varılır.

Maxwell denklemlerini kullanarak, işlemler adım adım ilerletilirse,

$$\nabla \times \vec{E} = -\frac{1}{c} \frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad (2.4)$$

$$\frac{n_s e^2 \vec{E}}{m} = \frac{d\vec{J}_s}{dt} \quad (2.5)$$

$$\nabla \times \frac{n_s e^2 \vec{E}}{m} = \vec{\nabla} \times \frac{d\vec{J}_s}{dt} \quad (2.6)$$

$$-\frac{n_s e^2}{m} \frac{d\vec{B}}{dt} = \nabla \times \frac{d\vec{J}_s}{dt} \quad (2.7)$$

$$\frac{d}{dt} \left[ \nabla \times \vec{J}_s + \frac{n_s e^2}{m} \vec{B} \right] = 0 \quad (2.8)$$

$$\nabla \times \vec{J}_s = -\frac{n_s e^2}{m} \vec{B} \quad (2.9)$$

elde edilir. Bu denklem 2. London denklemi olarak bilinir ve manyetik alan ile süper akım arasındaki ilişkiyi ortaya koymaktadır. Yani, 2. London denklemi, manyetik alanın süperiletken bir örnek içersine nüfuz etmesiyle ilgilidir. Dolayısıyla,  $\lambda$  nüfuz derinliğine sahip süperiletken bir örnek içersine manyetik alanın, yüzeyden itibaren üstel olarak azalarak nüfuz ettiği vurgulanmaktadır (Tinkham, 1996).

$$\nabla \times \vec{B} = \mu_0 \vec{J} \quad (2.10)$$

$$\nabla \times \nabla \times \vec{B} = \mu_0 \vec{\nabla} \times \vec{J} \quad (2.11)$$

$$\nabla (\nabla \cdot \vec{B}) - \vec{\nabla}^2 \vec{B} = -\mu_0 \frac{n_s e^2}{m} \vec{B} \quad (2.12)$$

$$\vec{\nabla}^2 \vec{B} = \mu_0 \frac{n_s e^2}{m} \vec{B} \quad (2.13)$$

Yukarıdaki denklemin çözümü,

$$B(z) = B_0 e^{-z/\lambda} \quad (2.14)$$

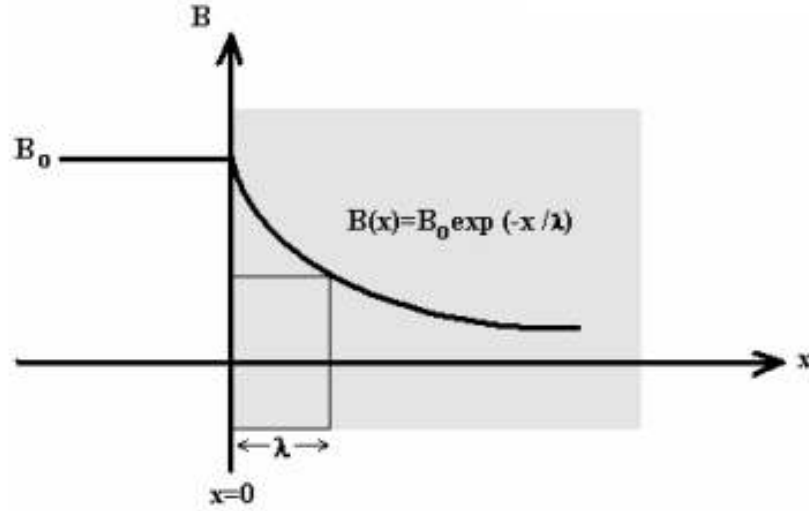
bulunur. Süperiletkenin yüzeyinden uzaklaştıkça manyetik alan azalır. Nüfuz derinliği ( $\lambda$ ), manyetik alanın süperiletken içerisine nüfuz etmesini tanımlayan karakteristik uzunluktur. Bu uzunluk

$$\lambda = \left( \frac{m}{\mu_0 n_s e^2} \right)^{1/2} \quad (2.15)$$

şeklinde tanımlanır. Süperelektronların yoğunluğuna bağlıdır. Sıcaklık bağımlılığı,

$$\lambda(T) \approx \lambda(0) \left[ 1 - \left( \frac{T}{T_c} \right)^4 \right]^{-1/2} \quad (2.16)$$

şeklinde ampirik olarak tanımlanır. Bu bağıntıdan, T sıcaklığının kritik sıcaklık  $T_c$ ' ye yaklaşması halinde,  $\lambda$ ' nın sonsuz olacağı görülmektedir. Yani örnek, süperiletken durumda iken; T,  $T_c$ ' ye yaklaştıkça uygulanan alan madde içinde daha derin bölgelere nüfuz eder. Sonuçta alanın bu nüfuzu, örneğin tamamını kapsayarak onun normal hale gelmesini sağlar. Manyetik alanın süperiletken içine sızması şekil 2.1' de şematik olarak gösterilmiştir.



Şekil 2.2 Süperiletken içine manyetik alanın sızması

Her bir akı tüpü,  $\Phi_0 = h/2e = 2,067 \times 10^{-15}$  Wb kadar manyetik akı taşır. Bu akı kuantumu “Fluxoid” olarak adlandırılır.  $\Phi_0$  değerini kuantum mekaniğinin temel

yasalarını ve London teorisini kullanarak kolayca elde etmek mümkündür.  $\vec{B} = \vec{\nabla} \times \vec{A}$  ve Stokes teoremini kullanarak

$$\Phi = \int \vec{B} \cdot d\vec{A} = \int (\vec{\nabla} \times \vec{A}) \cdot d\vec{A} = \int \vec{A} \cdot d\vec{l} \quad (2.17)$$

elde edilir. Bu denklem manyetik akıyı vektör potansiyelin halka boyunca yol integrali cinsinden verir.

1. London denklemini ve aşağıdaki denklemleri kullanırsak denklem:

$$E = -\frac{1}{c} \frac{\partial \vec{A}}{\partial t} \quad (2.18)$$

$$\vec{J}_s = n_s e \vec{v}_s \quad (2.19)$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{E} = \frac{1}{c} \frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad (2.20)$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{E} = -\frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t} \vec{\nabla} \times \vec{A} \quad \vec{\nabla} \times \vec{E} = \vec{\nabla} \times \left( -\frac{1}{c} \frac{\partial \vec{A}}{\partial t} \right) \quad (2.21)$$

$$\frac{m}{ne^2} \frac{\partial \vec{J}}{\partial t} = -\frac{1}{c} \frac{\partial \vec{A}}{\partial t} \quad \frac{\partial}{\partial t} \left( \frac{m}{ne^2} \vec{J} \right) = -\frac{1}{c} \frac{\partial \vec{A}}{\partial t} \quad (2.22)$$

$$\Phi = -\frac{mc}{e} \int \vec{v} \cdot d\vec{l} = \frac{mc}{e} \vec{v} \cdot 2\pi r \quad (2.23)$$

şeklinde yazılabilir. Basit şekilde genişliği  $2\pi r$  olan sonsuz derin kuyuda hareket eden kuantum parçacığının enerji seviyeleri:

$$E_n = \frac{p_n^2}{2m} = \frac{\hbar^2 k_n^2}{2m} = \frac{1}{2} m \left( \frac{\hbar n}{2m\pi r} \right)^2 = \frac{1}{2} m v_n^2 \quad (2.24)$$

şeklinde verilir. Burada, k kesikli değerler alır;

$$k = \frac{n\pi}{L} = \frac{n}{2r} \quad (2.25)$$

Enerjisinin kuantumlu olması parçacığın hızının da kuantumlu olmasını sağlar.

$$\Phi = n \frac{ch}{2e} \quad (2.26)$$

$$\Phi = n \frac{ch}{2e} = n\Phi_0 \approx n \cdot 2,07 \cdot 10^{-7} \text{Oe} \cdot \text{cm}^2 \quad (2.27)$$

Burada  $n = 1, 2, 3, \dots$  tamsayı değerlerini almaktadır,  $h$ , Planck sabiti,  $c$  ışık hızıdır.

Başka bir ifadeyle halkada tuzaklanan manyetik akı temel akı  $\Phi = n \frac{ch}{2e}$  büyüklüğünün tamsayı katları olabilmektedir.

## 2.2 Ginzburg-Landau Teorisi

1937 yılında Landau, 2. mertebeden faz geçişlerini betimleyen bir teori geliştirmiştir. G-L teorisinin temelinde, elektron çiftlerinin kütle merkezinin hareketini tarif eden  $\psi(r)$ , düzen parametresi kavramı bulunmaktadır. Teoride düzen parametresi, kritik geçiş sıcaklığı üzerindeki sıcaklıklarda ( $T > T_c$ ) yok olan;  $T_c$  altındaki sıcaklıklarda ( $T < T_c$ ) ise sıfırdan farklı bir değere sahip olan bir nicelik olarak tanıtılmaktadır.

London teorisinin açıklayamadığı sorulardan biri NS yüzeyinin enerjisinin işaretidir. London teorisinde her zaman bu enerji negatiftir. Bu sorun Ginzburg Landau teorisi ile ortadan kaldırıldı. Süperiletkenliğin ilk kuantum teorisi, Ginzburg Landau teorisidir.

Kuantum teorisi, süperiletkenliğin manyetik alan yokluğunda normal duruma göre daha düzenli bir durum olan süperiletkenlik fazına geçişi ikinci dereceden faz dönüşümü olduğunu söyler. İkinci derece faz geçişi, süreksiz olarak sistemin simetrisinin bozulması olayıdır. Bu, bir süperiletken için düzen parametresinin  $T < T_c$  durumunda sıfırdan farklı ve  $T > T_c$  durumunda sıfır olacağını söyler. Kuantum teorisini geliştirmek için süperiletken elektronun etkin dalga fonksiyonu tanımlanmalıdır. Genel olarak bir metaldeki  $n$  tane elektronu tanımlamak için  $\Psi(r_1, \dots, r_n)$  olarak alınır. Ginzburg-Landau teorisinde bütün elektronlar özdeş davrandığı kabul edilir ve bütün süperelektronlar tek koordinatlı dalga fonksiyonu  $\Psi(r)$  ile tanımlanır. Bu şekilde bütün elektron topluluğunun tek parametrelili dalga fonksiyonu ile temsil edilmesi mümkündür. Böylece, Ginzburg-Landau teorisi süperiletkenin makroskobik özelliklerinin anlaşılmasını sağlar. Ginzburg-Landau teorisi, geçiş sıcaklığı ( $T_c$ ) yakınlarında çok küçük olan düzen parametresi ile serbest enerjinin seriye açılmasını önerir. Teori, kritik sıcaklığa çok yakın ( $T_c - T \ll T_c$ ), sıcaklıklarda geçerlidir (Askerzade, 2005).

Süperelektronun etkin dalga fonksiyonu  $\Psi(r)$ , düzen parametresi olarak tanımlanır. Bu, dalga fonksiyonun normalizasyonu Cooper çiftlerinin yoğunluğunu,

$$|\Psi(r)|^2 = \frac{n_s}{2} \quad (2.28)$$

verir. Manyetik alan olmaksızın homojen bir süperiletken için serbest enerjinin  $|\Psi|^2$  cisinden seriye açılımı,

$$F_{s0} = F_n + \alpha|\Psi|^2 + \frac{\beta}{2}|\Psi|^4 \quad (2.29)$$

şeklindedir.  $F_{s0}$  manyetik alan yokken serbest enerji yoğunluğu,  $F_n$ , normal durumdaki örneğin serbest enerji yoğunludur.

Eğer örneğe manyetik alan uygulanırsa,

$$F_s = F_n + \alpha|\Psi|^2 + \frac{\beta}{2}|\Psi|^4 + \frac{1}{2m} \left| \left( \frac{\hbar}{i} \nabla - \frac{2e}{c} \vec{A} \right) \Psi \right|^2 + \frac{H^2}{8\pi} - \frac{H H_0}{4\pi} \quad (2.30)$$

şeklinde yazılır.  $H_0$  dış manyetik alandır.  $H$  süperiletkendeki mikroskobik alandır.

Kuantum mekaniğinde,  $m$  kütleli bir parçacığın kinetik enerji yoğunluğu,

$$\frac{1}{4m} |-i\hbar \nabla \Psi|^2 \quad (2.31)$$

dir. Manyetik alan altında hareket eden parçacık için  $A$  vektör potansiyeli olmak üzere momentum,

$$-i\hbar \nabla \rightarrow -i\hbar \nabla - \frac{e}{c} \mathbf{A} = m\mathbf{v} \quad (2.32)$$

ile verilir. Parçacığın hızı ise,

$$\mathbf{v} = - \left( \frac{i\hbar}{m} \right) \nabla - \left( \frac{e}{cm} \right) \mathbf{A} \quad (2.33)$$

$$\vec{H} = \nabla \chi \vec{A}$$

$$\frac{(\nabla \chi \vec{A})^2}{8\pi} - \frac{(\nabla \chi \vec{A}) \cdot \mathbf{H}_0}{4\pi} \quad (2.34)$$

Süperiletkenin tamamı düşünülürse Ginzburg Landau denklemi

$$F_s = F_n + \int \left( \alpha|\Psi|^2 + \frac{\beta}{2}|\Psi|^4 + \frac{1}{2m} \left| \left( \frac{\hbar}{i} \nabla - \frac{2e}{c} \vec{A} \right) \Psi \right|^2 + \frac{(\nabla \chi \vec{A})^2}{8\pi} - \frac{(\nabla \chi \vec{A}) \cdot \mathbf{H}_0}{4\pi} \right) dV \quad (2.35)$$

olur. Denklemdaki integral süperiletkenin hacmi üzerindendir.

Manyetik alan ve gradyentlerin olmadığı bir ortamda (2.35) denklemi

$$F_s = F_n + \alpha|\Psi|^2 + \frac{\beta}{2}|\Psi|^4 \quad (2.36)$$

şeklinde basitleşir.

Termodinamik denge nedeniyle,  $\beta > 0$  olmalıdır. Ancak,  $\alpha$  pozitif ya da negatif işarete de sahip olabilir. Eğer,  $\alpha > 0$  ise denkleminin minimumu  $|\Psi|^2 = 0$ 'da,  $\alpha < 0$  olduğunda ise minimum  $|\Psi|^2 \neq 0$  'da meydana gelir. Bu ilgili iki durum sırasıyla şekil 2.2' de gösterilmektedir.

$$\frac{\partial F}{\partial |\Psi|^2} = 0 \quad (2.37)$$

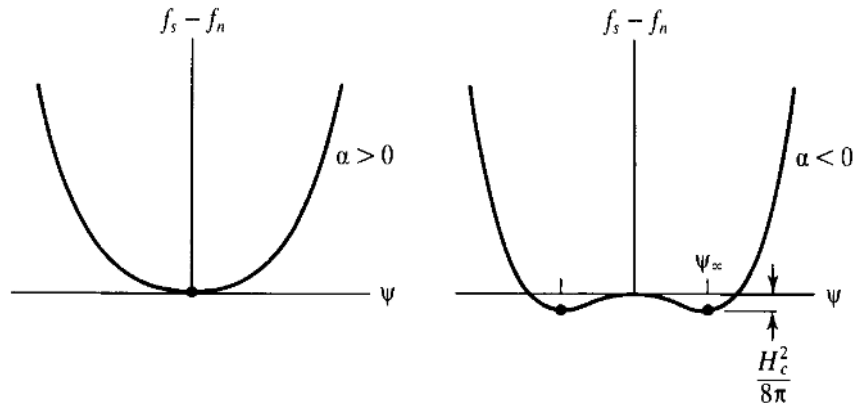
ifadesi yardımıyla

$$\left[ \alpha(T) + \frac{\beta}{2} |\Psi|^2 \right] |\Psi|^2 = 0 \quad (2.38)$$

elde edilir. Bu denklem iki çözüme sahiptir.

$$\alpha > 0 \quad |\Psi|^2 = 0 \quad (T > T_c) \quad (2.39)$$

$$\alpha < 0 \quad |\Psi|^2 = -\alpha/\beta \quad (T < T_c) \quad (2.40)$$



Şekil 2.3 a)  $T > T_c$  (yani  $\alpha > 0$ ) ve b)  $T < T_c$  (yani  $\alpha < 0$ ) için G-L serbest enerji fonksiyonları. Koyu renkli noktalar, denge konumlarını belirtmektedir (Tinkham, 1996).

Denklem (2.35)' de yerine konduğunda  $F_s$ ' nin minimum değerini veren,  $\Psi(r)$  ve  $A(r)$  fonksiyonları için denklemleri ve çözümleri bulmak için, önce  $\Psi(r)$  ve  $A(r)$ ' nin bağımsız değişkenler olduğunu varsaymalıyız ve daha sonra  $\delta\Psi$  ve  $\delta A$ ' nin  $\Psi(r)$  ve  $A(r)$ ' nin küçük varyasyonları olduğu  $\delta G/\delta\Psi = 0$  ve  $\delta G/\delta A = 0$  iki varyasyon problemini çözmeliyiz. Serbest Enerji denkleminin  $\Psi^*$ , a göre varyasyonu

$$\delta_{\Psi} F_s = 0$$

$$\delta_{\Psi} F_s = \int \left[ \alpha \Psi \delta \Psi^* + \beta \Psi |\Psi|^2 \delta \Psi^* + \frac{1}{4m} \left( i \hbar \nabla \delta \Psi^* - \frac{2e}{c} \vec{A} \delta \Psi^* \right) \left( -i \hbar \nabla \Psi - \frac{2e}{c} \vec{A} \Psi \right) \right] dV \quad (2.41)$$

elde edilir. Bu denklemde  $i\hbar\nabla\delta\Psi^*$  ifadesindeki  $\delta\Psi^*$  parantezin dışına çıkabilmesi için,

$$\varphi = -i\hbar\nabla\Psi - \frac{2e}{c}A\Psi \quad (2.42)$$

olarak tanımlanırsa özdeşlik ifadesinden

$$\vec{\nabla}(\delta\Psi^*\varphi) = \varphi\vec{\nabla}\delta\Psi^* + \delta\Psi^*\vec{\nabla}\varphi \quad (2.43)$$

eşitliği yazılır. Bu ifadenin hacim üzerinden integrali alınır,

$$\int dV\vec{\nabla}\delta\Psi^*\varphi = -\int \delta\Psi^*\vec{\nabla}\varphi dV + \int \nabla(\delta\Psi^*\varphi) dV \quad (2.44)$$

Gauss teoreminden hacim integrali yüzey integraline dönüştürülürse,

$$\int \nabla(\delta\Psi^*\varphi) dV = \oint \delta\Psi^*\varphi dS \quad (2.45)$$

bulunur.

$$\delta_{\Psi}F_s = \int dV \left[ \alpha\Psi + \beta\Psi|\Psi|^2 + \frac{1}{4m}(-i\hbar\nabla - \frac{2e}{c}\vec{A})^2\Psi \right] \delta\Psi^* + \oint \left[ -i\hbar\nabla\Psi - \frac{2e}{c}\vec{A}\Psi \right] \delta\Psi^* dS = 0 \quad (2.46)$$

olur. Bu ifadenin sıfır olması için parantez içindeki terimlerin sıfır olması gerekir.

Buradan Ginzburg-Landau teorisinin birinci denklemi

$$\alpha\Psi + \beta\Psi|\Psi|^2 + \frac{1}{4m}(i\hbar\nabla + \frac{2e}{c}\vec{A})^2\Psi = 0 \quad (2.47)$$

şeklinde elde edilir.

Süperiletkenin yüzeyindeki bu sınır koşulu:

$$\left( i\hbar\nabla\Psi + \frac{2e}{c}\vec{A}\Psi \right) \vec{n} = 0 \quad (2.48)$$

Denklemden n süperiletkenin yüzeyinin normal vektörüdür.

Ginzburg-Landau serbest enerji denklemi A' ya göre minimize edilirse,

$$\delta_{\vec{A}}F_s = 0 \quad (2.49)$$

$$\delta_{\vec{A}}F_s = \int dV \left\{ \frac{1}{4m}\delta\vec{A} \left[ \left( i\hbar\nabla\Psi^* - \frac{2e}{c}\vec{A}\Psi^* \right) \left( -i\hbar\nabla\Psi - \frac{2e}{c}\vec{A}\Psi \right) \right] + \frac{1}{4\pi}(\nabla\times\vec{A}) \cdot (\nabla\times\vec{A}) - \frac{\vec{H}_0}{4\pi} \cdot (\nabla\times\delta\vec{A}) \right\} \quad (2.50)$$

$$0 = \int dV \left\{ \frac{1}{4m} \left[ \left( -\frac{2e}{c}\Psi^*\delta\vec{A} \right) \left( -i\hbar\nabla\Psi - \frac{2e}{c}\vec{A}\Psi \right) \right] + \frac{1}{4m} \left( -\frac{2e}{c}\Psi\delta\vec{A} \right) \left( i\hbar\nabla\Psi^* - \frac{2e}{c}\vec{A}\Psi^* \right) + \frac{1}{4\pi}(\nabla\times\delta\vec{A}) \cdot (\nabla\times\vec{A}) \right\} \quad (2.51)$$

$$a[\nabla\times b] = b[\nabla\times a] - \nabla[axb] \text{ eşitliğini kullanarak} \quad (2.52)$$

$$\int dV (\nabla \times \mathbf{A} - \mathbf{H}_0) (\nabla \times \delta \vec{A}) = \int dV \delta \vec{A} (\nabla \times \nabla \times \delta \vec{A}) - \int dV \nabla [\delta \vec{A} \times (\nabla \times \mathbf{A} - \mathbf{H}_0)] \quad (2.53)$$

bulunur. Gauss teoremini kullanarak hacim integrali yüzey integraline çevrilirse;

$$\int dV \nabla [\delta \vec{A} \times (\nabla \times \vec{A} - \vec{H}_0)] = \oint dS [\delta \vec{A} \times (\nabla \times \vec{A} - \vec{H}_0)] \quad (2.54)$$

olur. Süperiletkenin yüzeyinde manyetik alan sabit olduğundan  $\delta \mathbf{A}=0$  bu integral sıfıra eşit olur. Bu şartlar altında denklem (2.53) denklem (2.51)' de yerine yazılırsa

$$\delta \vec{A} F_s = \int \left[ \frac{i\hbar e}{2mc} (\Psi^* \nabla \Psi - \Psi \nabla \Psi^*) + \frac{2e^2}{mc^2} \vec{A} |\Psi|^2 + \frac{1}{4\pi} \vec{\nabla} \times \vec{\nabla} \times \vec{A} \right] \delta \vec{A} dV = 0 \quad (2.55)$$

elde edilir. Eşitliğin sıfır olması parantezin sıfır olması ile sağlanır.

$$\vec{H} = \vec{\nabla} \times \vec{A}$$

$$0 = \frac{i\hbar e}{2mc} (\Psi^* \nabla \Psi - \Psi \nabla \Psi^*) + \frac{2e^2}{mc^2} \vec{A} |\Psi|^2 + \frac{1}{4\pi} \vec{\nabla} \times \vec{H} \quad (2.56)$$

elde edilir. Maxwell denklemi  $\nabla \times \mathbf{H} = \frac{4\pi}{c} \mathbf{J}_s$  eşitliğinden akım yoğunluğu,

$$\mathbf{J}_s = -\frac{i\hbar}{2m} (\Psi^* \nabla \Psi - \Psi \nabla \Psi^*) - \frac{2e^2}{mc} \mathbf{A} |\Psi|^2 \quad (2.57)$$

olarak bulunur.  $m$  kütleli,  $2e$  yüklü ve  $\psi$  dalga fonksiyonuna sahip parçacıklar için akım yoğunluğunu tarif eden kuantum mekaniksel bir ifadedir. Bu denklem Ginzburg-Landau teorisinin ikinci denklemi olarak adlandırılır.

Aşağıda verilen boyutsuz parametreler tanımlanırsa,

$$\Psi(\vec{r}) = \frac{\psi(\vec{r})}{\psi_0} \quad (2.58)$$

$$\Psi_0^2 = \frac{|\alpha|}{\beta} = \frac{n_s}{2} \quad (2.59)$$

$$\lambda^2 = \frac{mc^2}{4\pi n_s e^2} = \frac{mc^2 \beta}{8\pi e^2 |\alpha|} \quad (2.60)$$

$$\xi^2 = \frac{\hbar^2}{4m|\alpha|} \quad (2.61)$$

Denklem (2.47) ve (2.57) birinci ve ikinci Ginzburg-Landau denklemlerinin yeni formu aşağıdaki gibi yazılabilir.

$$\xi^2 (i\nabla + \frac{2\pi}{\Phi_0} \mathbf{A})^2 \Psi - \Psi + |\Psi|^2 \Psi = 0 \quad (2.62)$$

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{A} = -i \frac{\Phi_0}{4\pi \lambda^2} (\Psi^* \nabla \Psi - \Psi \nabla \Psi^*) - \frac{|\Psi|^2}{\lambda^2} \mathbf{A} \quad (2.63)$$

Denklemde,  $\Phi_0 = \frac{\hbar c}{e}$  manyetik akı kuantumudur (Tinkham, 1996).

### 2.3 BCS Teorisi

Süperiletkenliğin mikroskobik mekanizmasını açıklayan BCS Teorisi, J. Bardeen, L. N. Cooper ve J. R. Schrieffer tarafından 1959 yılında geliştirilmiştir. BCS teorisi fononlar yardımıyla iki elektron arasında ortaya çıkan etkileşmenin bu elektronlar arasında çekici bir kuvvet oluşturacağı esasına dayanır. Elektron fonon elektron etkileşmesi sonucu oluşan çekici kuvvet, Cooper çifti olarak bilinen elektron çifti oluşumuna yol açar. BCS teorisi süperiletkenin iki temel özelliği olan sıfır direnç ve mükemmel diyamanyetizmayı açıklamaktadır. BCS teorisi düşük sıcaklık süperiletkenleri için iyi sonuçlar vermektedir.

Bir kristal içinde hareket eden  $\mathbf{k}_{1i}$  dalga vektörüne sahip bir serbest elektron düşünelim. Bu elektron bir fonon (Kuantum mekaniğinde örgü titreşimi fonon olarak tanımlanmaktadır) salar ve yeni bir konum alır ( $\mathbf{k}_{1f}$ ). Momentumunun korunumu yasasından

$$\vec{k}_{1f} = \vec{k}_{1i} - \vec{k} \quad (2.64)$$

olur. Burada  $\mathbf{k}$  fononun dalga vektörüdür. Fonon başka bir elektron  $\mathbf{k}_{2i}$  tarafından soğrulur ve elektron  $\mathbf{k}_{2f}$  konumunu alır.

$$\vec{k}_{2f} = \vec{k}_{2i} + \vec{k} \quad (2.65)$$

$$\vec{k}_{1f} + \vec{k}_{2f} = \vec{k}_{1i} + \vec{k}_{2i} \quad (2.66)$$

Cooper çiftlerinin toplam kristal momentumu da korunur:

$$\vec{k}_1 + \vec{k}_2 = \text{sabit} \quad (2.67)$$

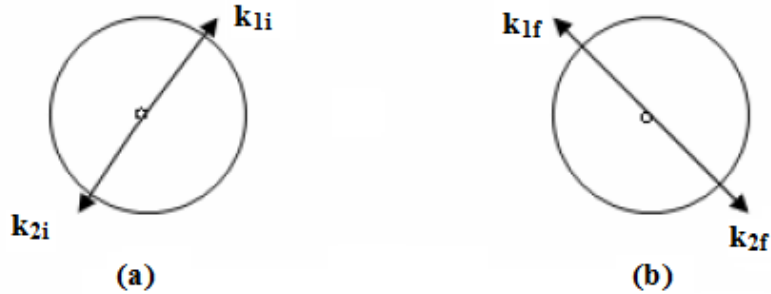
Bir Cooper çifti hızlı biçimde birçok fonon değişimi yaptığından, çiftin dalga fonksiyonu şöyle ifade edilmektedir:

$$\psi = \sum_{i,j} A_{ij} \psi_1(\vec{k}_i) \psi_2(\vec{k}_j) \quad (2.68)$$

Burada  $\psi(\mathbf{k}_i)$ ,  $\mathbf{k}_i$  durumundaki birinci elektron için Bloch fonksiyonu;  $\psi(\mathbf{k}_j)$ ,  $\mathbf{k}_j$  durumundaki ikinci elektron için Bloch fonksiyonu ve  $A_{ij}$ ' de birinci elektron  $\mathbf{k}_i$  ikinci elektronda  $\mathbf{k}_j$  durumunda bulunduğu  $\psi$ ' nin genliğidir. Toplam tüm  $\mathbf{k}_i$  ve  $\mathbf{k}_j$  çiftleri elektronda  $\mathbf{k}_j$  çiftleri üzerinden alınmaktadır ve  $\mathbf{k}_i + \mathbf{k}_j$  sabit bir değere eşittir.

Serbest elektron modeli göz önüne alındığında,  $k_F$  Fermi küresinin yarıçapı olmak üzere normal metalde  $T=0$  K' de tüm  $k < k_F$  durumları dolu,  $k > k_F$  durumları da boştur. Doldurulmuş durumların bu dağılımında hiçbir elektron çifti (bu çiftler halen Fermi yüzeyi içerisinde) arasında fonon değişimi olmamaktadır. Diğer elektronlar tarafından işgal edilmiş bu durumlara giriş, Pauli ilkesi uyarınca yasaklanmıştır.

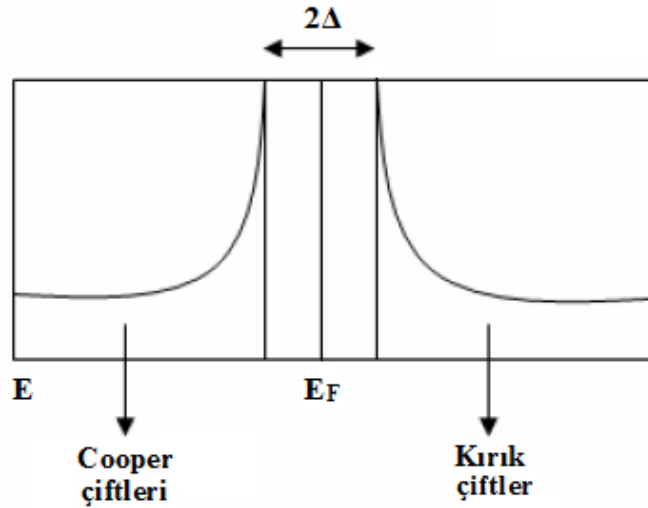
Bununla birlikte, eğer elektron çiftleri Fermi yüzeyi dışındaki ( $k > k_F$ ) durumlar içerisinde hareket ettirilirse, fonon değişimi mümkün olacaktır. Oluşan çekim, çifti Fermi yüzeyi dışına çıkarmak için gereken kinetik enerji miktarındaki ( $\hbar^2 k^2 / 2m$ ) artıştan daha büyüktür. Bu çift böylece  $E < E_F$  enerjisi ile kararlı durum formunda olur. İki elektron  $k_i$  ve  $k_j$  durumlarının çift sayıları maksimum şekilde modellenemediğinden güçlü çekime sahip olur ve net enerji en düşük formdadır.  $k_i$  ve  $k_f$  durumlarının her ikisi de Fermi yüzeyi yakınında yer almalıdır. Buradan kinetik enerjinin mümkün olduğunca küçük olduğu sonucuna varılır.



Şekil 2.4 Daire Fermi yüzeyini belirtmek üzere, fonon değişiminin olduğu elektron çiftinin (a) başlangıçtaki ve (b) sonraki durumları

Şekil 2.4 incelendiğinde, Fermi yüzeyinin zıt taraflarındaki ( $k_{2i} = -k_{1i}$ ) iki durumun ele alındığı görülmektedir. Bu çift için toplam momentum ( $k_{1i} + k_{2i}$ ) sıfırdır. Eğer  $k_{1i}$ ' de ki elektron bir fonon salarsa, elektron  $k_{1f}$  (b) durumuna geri döner.  $k_{2i}$ ' de ki elektron bu fononu yakalar ve  $k_{2f}$  (b) durumuna gider. (elektronun toplam momentumu halen sıfırdır). Bu olayda  $k_{2f}$  durumu Fermi yüzeyi yakınında olduğundan, bu durumda fonon değişimi enerji açısından uygundur. Fermi yüzeyi yakınındaki tüm durumlar da böyle bir elektron çifti ile modellenenilmektedir.

Cooper çiftleri, daima zıt yönlerde dalga vektörleri ile temsil edilen elektronlar içerir ve çiftlerin toplam kristal momentumu sıfır olmaktadır. Toplam spini ve momentumu sıfır olduğundan Cooper çiftleri bozon gibi davranır ve Bose-Einstein istatistiğine uyar. Bu özelliklerinden dolayı Pauli dışarlama ilkesine uymazlar ve Fermi enerjisinde bir yasak enerji aralığı oluştururlar. Süperiletken geçiş sıcaklığının altında oluşabilen ve Cooper Çiftleri olarak bilinen elektron çiftleri bozon parçacıkları gibi davranırlar. BCS teorisine göre; spinleri ve momentumları eşit büyüklükte fakat zıt yönlü iki elektron fonon etkileşimi aracılığı ile bir sistem oluştururlar. İki elektrondan oluşan bu sistem Cooper çiftidir. BCS teorisinde Fermi yüzeyine sadece  $2\Delta$  kadar yakın elektronlar fononlarla etkileşirler (BCS modelinde sadece Fermi yüzeyi yakınında dar küresel tabakada yer alan elektronlar karşılıklı etkileşirler.).



Şekil 2.5 Süperiletkende,  $E_F$  Fermi enerjisi civarında  $g(E)$  durumların yoğunluğu

Şekil 2.5 incelendiğinde, tüm Cooper çiftlerinin  $E_F - \Delta$  değerinden daha az bir enerjiye sahip oldukları görülmektedir. Cooper çiftlerini kırmak için,  $2\Delta$  kadar bir enerji gerekmektedir. Bu kırık çift,  $E > E_F + \Delta$  enerjisindeki durumda yer alır. Böylece  $E_F$  merkezindeki aralık  $2\Delta$  genişliğindedir ve bu aralık  $T = 0 \text{ K}$ ' de  $10^{-3} \text{ eV}$  mertebesinde dir. Bu yaklaşık  $1 \text{ eV}$  olan yarıiletken enerji aralığı ve  $5 \text{ eV}$  mertebesindeki metal Fermi enerjisine göre çok küçüktür.

BCS Teorisi, bu enerji aralığının  $E_g$  ( $2\Delta$ ) kritik sıcaklık ile orantılı olduğunu tahmin etmektedir. Bir süperiletkenin  $E_g$  enerji aralığı, Cooper çiftlerinden birinin kırılması için gereken enerji aralığını temsil eder. BCS teorisi, enerji aralığının kritik sıcaklığa  $T = 0 \text{ K}$ ' de

$$2\Delta \approx 3,5 k_B T_c \quad (2.69)$$

şeklinde bağlı olduğunu belirtmektedir (Müller ve diğerleri, 1997). Sıfırın üzerindeki sıcaklıklarda, bazı Cooper çiftleri termal enerji nedeniyle kırılır ve  $E_F$ ' nin üzerindeki bazı durumlar dolar. Her çift oluşturmamış elektron, bir  $k$  durumunu işgal eder. Cooper çiftlerinin bu durumu ve bunun sonucu olarak, çekici kuvvetteki azalış,  $2\Delta$  enerji aralığının genişliğinin azalmasına neden olur.  $T = T_c$ ' de  $2\Delta$  aralık genişliği sıfıra gider ve süperiletken normal duruma döner.

Elektrik alan süperiletkene uygulandığında, her bir Cooper çifti hızlanır. Dolayısıyla her çiftin toplam kristal momentumu sıfırdan farklı olur:

$$\vec{k}_1 + \vec{k}_2 = \Delta k \quad (2.70)$$

$\Delta k$  değeri her bir çift için aynıdır. Her çiftin kütle merkezi, aynı hızla hareket etmektedir. Sistemin kuantum mekaniksel durumunun doğasından, yalnızca bir Cooper çiftinin hızını, her biri için değiştirmeden, değiştiremediğimizi buluruz. Çünkü süperiletken durumda, Cooper çiftleri bağımsız hareket yerine birlikte bir davranış sergiler. Böylelikle, normal metallerde elektronların saçılmasında etkili olan örgü kusurları (safsızlıklar ve fononlar gibi) Cooper çiftleri üzerinde etkili değildir. Saçılma olmadığında direnç sıfır olur.

## BÖLÜM ÜÇ

### YÜKSEK SICAKLIK SÜPERİLETKENLERİ

#### 3.1 Yüksek Sıcaklık Süperiletkenlerinin Özellikleri

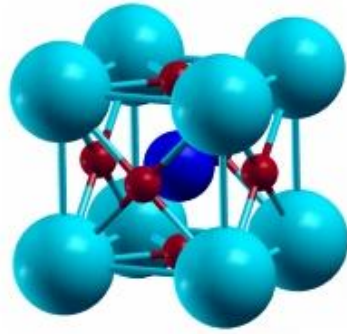
Yüksek- $T_c$  süperiletkenliğin tarihi 1986’ da Bednorz ve Müller’ in La-Ba-Cu-O seramiklerinde  $\sim 30$  K’ de süperiletkenlik bulduklarında başlamıştır. Yüksek- $T_c$  süperiletkenleri “kuprat” süperiletkenleri olarak da adlandırılır. La-Ba-Cu-O seramiklerinde süperiletkenliğin bulunması diğer yüksek- $T_c$  süperiletken keşiflerinin öncüsü olmuştur. 1987’ de Alabama ve Houston üniversitelerinde M.K. Wu ve P. W. Chu yönetiminde olan gruplar 93 K’ de YBCO süperiletkenin keşfini ilan etmişlerdir. Hemen bir yıl sonra, 1988’ in başında, Bi ve Tl-tabanlı süperiletkenler sırasıyla  $T_c=110$  ve 125 K’ de bulunmuştur. Son olarak, Hg-tabanlı süperiletkenler en yüksek  $T_c$  135 K ile 1993’ de bulunmuştur (yüksek basınçta  $T_c$  164 K’ e kadar yükselir) (Mourachkine, 2002). Yüksek- $T_c$  süperiletkenleri kimyasal formüllerine göre kısaltmaları tablo 3.1’ de özetlenmiştir.

Yüksek sıcaklık süperiletkenleri “perovskit” olarak bilinen kristal yapıdır. Perovskit yapının kimyasal formülü  $ABX_3$  şeklindedir. Bu nedenle, perovskitler 1:1:3 oranında 3 element içerir. A atomları pozitif yüklü metal katyonlardır, B ve X atomları negatif yüklü metalik olmayan anyonlardır. X elementi çoğunlukla oksijen ile gösterilir (şekil 3.1).

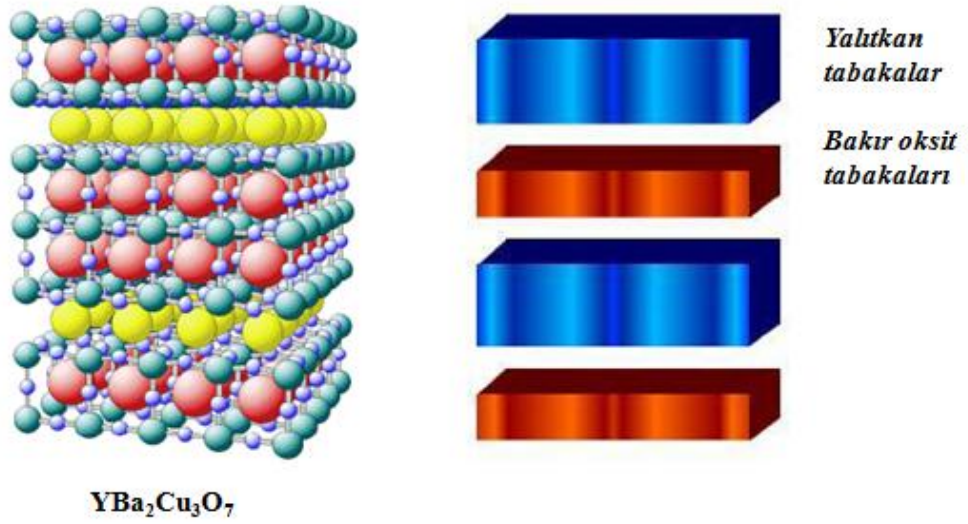
Yüksek sıcaklık süperiletkenleri bazı ortak özelliklere sahiptir. Tüm yüksek sıcaklık süperiletkenleri tabakalı kristal bir yapıya ve tabakalı kristal yapılarından kaynaklanan anizotropik fiziksel özelliklere sahiptirler. Anizotropik fiziksel özellikleri onların akım taşıma kapasitelerini sınırlayabilir.  $CuO_2$  tabakalarındaki iletkenlik, birim hücrenin a-b tabakalarında oldukça iyidir (direnç, bakır oksit düzlemlerine paralel doğrultuda çok küçüktür). Ancak c-ekseni yönünde iletkenlik zayıftır (direnç, bakır oksit düzlemlerine dik doğrultuda büyüktür). Şekil 3.2 yüksek sıcaklık süperiletkenlerinin tabakalı kristal yapısını göstermektedir.

Süperiletkenlik  $\text{CuO}_2$  tabakalarında meydana gelmektedir. Yüksek sıcaklık süperiletkenlerinin kritik geçiş sıcaklıkları birim hücredeki  $\text{CuO}_2$  tabakalarının sayısı ile ilişkilidir. Yüksek sıcaklık süperiletkenlerinin birim hücrelerinde, bir ya da daha fazla sayıda bakır oksit tabakası  $\text{CuO}_2$  ve yalıtkan tabaka olmak üzere iki farklı yapı mevcuttur. Yüksek sıcaklık süperiletkenlerinde, süperakım iki  $\text{CuO}_2$  tabakası tarafından oluşturulan bir sandviç içinde akar, bu tabakalar Bi, O, Y, Ba, La gibi tek bir atom ile ayrılır ve bu katmanlar genellikle yük deposu olarak adlandırılır.  $\text{CuO}_2$  tabakaları iletim tabakaları olarak adlandırılır. İdeal olarak, bu tabakalardaki oksijen atomlarının bozulmadan kalması gerekir. Aslında,  $\text{CuO}_2$  düzlemleri ciddi şekilde bozulursa, süperiletkenlik yok olur. Öte yandan, birim hücreden geriye kalan kısım yük deposu ( $\text{CuO}_2$  düzlemlerine elektron sağlayan kaynaklar) olarak hizmet eder ve herhangi bir süperiletkendeki bir kusurun (ya da yer değiştirilen atom) temel rolü başka şekilde doldurulmuş  $\text{CuO}_2$  düzlemlerindeki elektronların miktarını değiştirmektir. Bu sayede, birim hücredeki herhangi bir yerdeki tutarsızlıklar materyalin elektronik durumunda değişikliklere neden olur. Yüksek sıcaklık süperiletkenlerinde,  $\text{CuO}_2$  düzlemleri birim hücrenin boyutunu belirler. Yüksek sıcaklık süperiletkenlerinde süperiletkenlik hassas bir şekilde tabaka yapısının detaylarına bağlıdır ve sonuç olarak örgü kusurları tarafından oluşturulan bozukluklara ve değişik katkı atomlarına göre değişir.

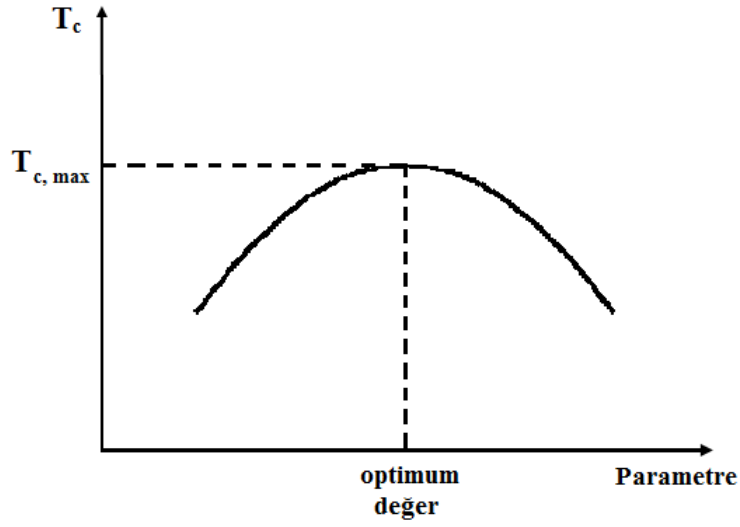
$\text{CuO}_2$  tabakalarında, her bir bakır iyonu güçlü bir şekilde yaklaşık  $1,9 \text{ \AA}$  uzaklığı ile ayrılmış dört oksijen iyonuna bağlıdır. Karakteristik  $\text{CuO}_2$  tabakaları ile çok sayıda bileşim sentezlenmiştir. Farklı sentezlenmiş süperiletkenlerde, birim hücre başına  $\text{CuO}_2$  tabaka sayısı,  $N_1$ , farklıdır. Genelde, kritik sıcaklık  $T_c$   $\text{CuO}_2$  tabaka sayısı ile bağlantılıdır. Sabit katkılama seviyesinde, artan  $\text{CuO}_2$  tabakaları ile önce artar,  $N_1=3$ ' de maksimuma ulaşır ve daha sonra düşer. Birçok süperiletken kuprat' da, sabit  $N_1$  seviyesinde katkı seviyesini değiştirerek,  $T_c(p)$  bağıllığı çan şekline sahiptir, burada  $p$   $\text{CuO}_2$  tabakalarındaki boşluk konsantrasyonudur, şekil 3.3' de gösterilmiştir. Burada  $x$ ,  $p$ ,  $N_1$ , örgü sabitleri  $a$ ,  $b$  ya da  $c$  vb. olabilir. Böylece, maksimum  $T_c$  değerine tüm gerekli parametreler optimum değerlerine sahip olduğunda ulaşılabilir. Eğer parametrelerden biri optimum değerinden değiştirilirse,  $T_c$  değeri, sonuç olarak, azalır (Mourachkine, 2002).



Şekil 3.1 Perovskit  $ABO_3$  yapısı



Şekil 3.2 Yüksek sıcaklık süperiletkenlerinin tabakalı kristal yapısı



Şekil 3.3 Katkı seviyesi p, birim hücre başına  $\text{CuO}_2$  tabaka sayısı, birim hücre sabitleri vb. olabilen bir parametrenin fonksiyonu olarak kritik sıcaklık (Mourachkine, 2002).

Tablo 3.1 Farklı süperiletkenler için kısaltmalar

| Süperiletken                                                | $\text{CuO}_2$ tabaka sayısı | $T_c(\text{K})$ | Kısaltma |
|-------------------------------------------------------------|------------------------------|-----------------|----------|
| $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$                    | 1                            | 38              | LSCO     |
| $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$                     | 2                            | 93              | YBCO     |
| $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CuO}_6$                        | 1                            | 20              | Bi-2201  |
| $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$             | 2                            | 85              | Bi-2212  |
| $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{16}$ | 3                            | 110             | Bi-2223  |
| $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CuO}_6$                        | 1                            | 95              | Tl-2201  |
| $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$             | 2                            | 105             | Tl-2212  |
| $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10}$ | 3                            | 125             | Tl-2223  |
| $\text{TlBa}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_4\text{O}_{11}$          | 3                            | 128             | Tl-1224  |
| $\text{HgBa}_2\text{CuO}_4$                                 | 1                            | 98              | Hg-1201  |
| $\text{HgBa}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$                      | 2                            | 128             | Hg-1212  |
| $\text{HgBa}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_2\text{O}_{10}$          | 3                            | 135             | Hg-1223  |

### 3.2 Bi-Tabanlı Yüksek Sıcaklık Süperiletkenleri

Bi-Sr-Ca-Cu-O (BSCCO) sistemlerinde süperiletkenlik Maeda ve arkadaşları tarafından 1988 yılında keşfedilmiştir. BSCCO sistemlerinde,  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{n-1}\text{Cu}_n\text{O}_{2n+4+y}$  genel formülü ile elde edilebilen üç faz mevcuttur (Shoushtari, Bahrami ve Farbod, 2006). Genel denklemde n, bir birim hücrede bulunan  $\text{CuO}_2$  tabakalarının sayısını vermektedir. n=1 için 20 K sıcaklığa sahip  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CuO}_{6+y}$  (2201), n=2 için yaklaşık 85 K sıcaklığa sahip  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+y}$  (2212), n=3 için 110 K kritik sıcaklığa sahip

$\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+y}$  (2223) fazları elde edilmektedir (Yıldırım ve diğerleri, 2012, Kameli, Salamati ve Eslami, 2006).

Burada  $n$ ,  $\text{Cu}_2\text{O}$  düzlemlerinin sayısını göstermektedir. Deneysel olarak süperiletken geçiş sıcaklığı  $T_c$  artan  $\text{CuO}_2$  tabakaları sayısı ile artar.  $n$  arttıkça yani  $\text{Cu}_2\text{O}$  düzlem sayısı arttıkça kritik geçiş sıcaklığı artmaktadır.  $n=1$  ve 2 serisinde tek faz elde etmek mümkün olmakla birlikte  $n=3$  serisinde tek faz elde etmek oldukça güçtür. BSCCO sistemlerinin genel yapısal karakteristiklerinden birisi de 2223 fazını tek faz olarak elde edilmesinin zorluğudur.

Bu serilerde, 2223 fazı en yüksek kritik sıcaklık ( $T_c$ ) yaklaşık 110 K nedeni ile en ilgi çekici olandır (Gul, Anis-ur-Rehman ve Maqsood, 2006). Ancak, Bi-2223 fazının hazırlanması, reaksiyonun karışıklığı ve faz oluşumu sırasında Bi-2212 ve  $\text{Ca}_2\text{PbO}_4$  gibi birçok fazın görülmesi nedeni ile oldukça zordur. Bileşim, katkının miktarı, ısı uygulaması ve süresi gibi birçok hazırlama koşulu da Bi-2223 faz oluşumunu etkiler. Bi-tabanlı süperiletken seramiklerin keşfinden bu yana, araştırmacılar birçok teknik kullanarak onların yapısal, mekanik ve süperiletken özelliklerini geliştirmeye çalışmışlardır. Özellikle, süperiletken materyallerde kimyasal katkı onların özelliklerini geliştirmede önemli bir rol oynar.

Yüksek sıcaklık süperiletkeni (HTSC) bulunduğu beri, tanecik sınırlarının zayıf bağı en önemli araştırma konularından biri haline gelmiştir. Tanecik sınırı yapısı ve süperakım iletkenlik arasındaki ilişki tam olarak anlaşılamamıştır. Bununla birlikte, parçacıkların boyutu, birbiri ile açıları, tanecik sınırlarının bileşimi hazırlama parametrelerine bağlı olarak değişir. Bi-tabanlı süperiletken materyallerin özellikleri başlangıç kimyasal oranlarına oldukça hassastır. Yüksek sıcaklık süperiletkenlerinde kritik akım yoğunluğu hem akıya hem de tanecikteki zayıf bağa bağlıdır. Taneciklerin uygun katkılanması HTSC' de tanecik sınırlarının geçiş özelliklerini optimize eden bir metottur. Böylece, kritik akım yoğunluğu önemli ölçüde artar ve normal durum iletkenliği önemli ölçüde azalır (Ozturk ve diğerleri, 2011).

Bi-tabanlı süperiletken ailesinin birim hücre yapıları genellikle tetragonal yapıya sahiptir. Örgü parametreleri ise sırasıyla, 2201 için  $a=5,39 \text{ Å}$ ,  $c=24,6 \text{ Å}$ , 2212 için  $a=5,41 \text{ Å}$ ,  $c=30,90 \text{ Å}$ , 2223 için  $a=5,41 \text{ Å}$ ,  $c=37,10 \text{ Å}$  dır.

### 3.3 Bi-Tabanlı Yüksek Sıcaklık Süperiletkenlerine Katkılamanın Etkisi

Yüksek sıcaklık süperiletkenlerinin keşfinden bu yana birçok araştırma materyallerin özelliklerini karakterize etmek ve geliştirmek için yürütülmüştür. Sisteme farklı metaller katkılандığında nelerin olabileceği araştırmacılar tarafından incelenmiş, materyallerin eklenmesinin kritik akım yoğunluğunu ( $J_c$ ) arttırabileceği, süperiletkenlik geçiş sıcaklığını ( $T_c$ ), mekaniksel özellikleri ve elektriksel kararlılığı geliştirebileceği ve kimyasal katkının; yerine koyma ve eklemenin yüksek sıcaklık süperiletkenlerinde çok önemli bir rol oynadığı raporlanmıştır. Katkılama çalışmalarının amacı boşluk konsantrasyonu optimize etmek, iğneleme merkezlerini tanıtmak, 2223 fazının oluşumunu geliştirmektir.

Yüksek- $T_c$  süperiletken seramikler üzerine yapılan çalışmalarda BSCCO sistemi geçiş sıcaklığı ve yüksek kritik akım yoğunluğundan ötürü çok ilgi görmüştür. Bi-tabanlı süperiletkenlerin anizotrop ve oldukça yüksek kırılma gibi önemli dezavantajları olduğu da bilinmektedir,  $J_c$  değerlerinde ve manyetik alan taşıma kapasitesinde önemli bir artış, katkılama ya da birçok farklı element ekleyerek gözlenebilir (Özkurt, 2013, Taghipour, Abbasi ve Sedghi, 2010, Margiani, Metskhvarishvili, Papunashvili, Dzanashvili ve Shurgaia, 2011, Saoudeh ve diğerleri, 2013). Süperiletkenlerin bu ailesinde, ekleme ya da katkılama genellikle onların zayıf problemlerini geliştirmek ve daha yüksek  $J_c$  değerlerine ulaşmak için yapılır. Böylelikle, BSCCO sistemine elementler eklemek kolaylıkla yapılarda kusurlar, gözeneklilik ve boşluklar üretebilir, bu da mekaniksel özellikleri oldukça etkiler. BiSrCaCuO sistemine farklı seviyelerdeki farklı elementlerle katkılama çalışmalarında ve farklı hazırlama koşullarında fiziksel özelliklerinde;  $T_c$ ,  $J_c$  ve örgü parametrelerinde, değişim elde edilmiştir.

Farklı elementler ile katkılamanın ya da yerine koymanın süperiletken, fiziksel, elektriksel, manyetik ve mekaniksel özellikler üzerindeki etkisi üzerine birçok çalışma yapılmıştır (Yazıcı, Özçelik ve Yakıncı, 2011, Ozturk, Küçükömeroğlu ve Terzioğlu, 2007, Naser, Saleh ve Abu-Samreh, 2005, Salem, Al-Salami, Ziq ve Adrian, 2011). Sonuçların birçoğu yapısal parametrelerde kayda değer bir değişim göstermemiştir, ancak bazı durumlarda farklı katyon katkılama seviyelerinden dolayı taşıyıcı konsantrasyonunda önemli değişiklikler olmuştur. Elementlerin bazılarının yüksek- $T_c$  dengeleyicileri olduğu da bulunmuştur. Materyallerin eklenmesinin kritik akım yoğunluğunu ( $J_c$ ) arttırabileceği, süperiletkenlik geçiş sıcaklığını ( $T_c$ ), mekaniksel özellikleri ve elektriksel kararlılığı geliştirebileceği raporlanmıştır.

Bi-tabanlı süperiletkenlerin keşfinden bu yana Bi, Sr, Ca, Cu atomlarının yerine diğer elementler katkılanarak süperiletkenlik özellikleri geliştirmeye çalışılmıştır. Bi yerine Pb katkısının 2223 fazını daha kararlı hale getirip süperiletkenlik parametrelerine olumlu etki yaptığı gösterilmiştir. Pb katkısı Bi-tabanlı süperiletkenlerin oluşum hızını özellikle 2223 fazı için oldukça arttırır.  $T_c$ ' nin değeri yalnızca çok az katkılama miktarına bağlıdır.  $Pb^{+2}$  ( $1,2 A^\circ$ ),  $Bi^{+3}$  ünküne kıyasla büyük bir iyonik yarıçapa sahiptir. Böylelikle,  $Bi^{+3}$ ,  $Pb^{+2}$  ile yerine konması iç gerilimi rahatlatmaya yardımcı olur. Bu oluşum hızının gelişmesi için sebeplerinden biridir.

Nb katkısı arttıkça örneklerin 2223 fazının arttığı, 2212 fazının azaldığı birçok çalışmada yayınlanmıştır. Bu, Nb' nin Pb gibi davrandığının 2223 fazını kararlı hale getirme ve yükseltmede benzer bir rol oynadığının göstergesi olabilir. Bi için Nb katkılanması Pb gibi tanecikler arası bağlanmayı geliştirebilir (Sozeri ve diğerleri, 2007, Nasu, Kuriyama ve Kamiya, 1990).

$Bi^{+5}$  ( $0,74 A^\circ$ ) ve  $Nb^{+5}$  in ( $0,70 A^\circ$ ) iyonik yarıçapları birbirine yakın olduğundan, yük dengesini değiştirmeyen Nb katkısı Bi-O tabakalarındaki pozisyonları doldurabileceğini rapor etmişlerdir.  $Bi_2O_3$ ' ün erime noktasından ( $818^\circ C$ ) daha yüksek bir sıcaklıkta örneklerin kalsinasyonu bazı Bi atomlarının kaybına neden olur. Bu nedenle Pb ve Nb' nin Bi ile benzer büyüklükte ve farklı değerliği olduğundan

ideal bir aday haline gelmektedir. Bi yerlerinin bu atomlar tarafından doldurulma olasılığı yüksektir. Böylece örgüde değişmezlik sunulur ve düzgün bir kristal yapı ile sonuçlanır. Sonuçlar yüksek- $T_c$  faz kesrinin ve Nb katkılı BSCCO süperiletkenin geçiş özelliklerinin katkı konsantrasyonuna çok duyarlı olduğunu göstermiştir. Üstelik materyalin kristal yapısı da katkıdan etkilenmiştir. Başlangıç bileşiği, sinterleme sıcaklığı, ısı uygulamasının süresi ve sinterleme atmosferinin 2223 fazının oluşumu için kritik olduğu bulunmuştur. Nb' nin aynı miktarı için bile, yüksek- $T_c$  faz kesri sinterleme sıcaklığı değiştikçe kayda değer ölçüde değiştiği gözlenmiştir (Mishra, Upadhyay ve Sharma, 1998, Ghazanfari, Kılıç, Gencer ve Özkan, 2007).

Gd katkısı ile BSCCO örnekleri için boşluk konsantrasyonu, kritik akım yoğunluğu, geçiş sıcaklığını belirlemek için incelemeler yapılmıştır. Buna ek olarak, X-ışını kırınımı (XRD) ve Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM) ölçümleri örneklerin morfolojisi ve faz analizini araştırmak için yapılmıştır. Sonuçlar örneklerin süperiletken özelliklerinin artan Gd katkısı ile azaldığını göstermektedir. Örneklerin süperiletken parametreleri, yüzey morfolojisi ve tanecik bağlılığı artan Gd içeriği ile bozulmuştur (Yıldırım ve diğerleri, 2011, Terzioğlu, Aydın, Oztürk, Bekiroğlu ve Belenli, 2008, Mishra, 2008, Ekicibil, Coşkun, Özçelik ve Kıymaç, 2005, Erdem ve diğerleri, 2011).

## BÖLÜM DÖRT

### ÖRNEKLERİN HAZIRLANMASI

#### 4.1 Katıhal Reaksiyon Yöntemi

Katıhal reaksiyon yönteminde, istenilen stokiyometrik oranlarda bir araya getirilen saf elementler agat havan kullanılarak uzun bir süre homojen karışım elde edilinceye kadar öğütülür ve 750-900 °C’ de kalsinasyon işlemine tabi tutulur. Kalsinasyon, toz karışımının ilk termo-kimyasal işlemidir. Kalsinasyon işlemi yardımı ile toz karışımının içersindeki karbondioksitlerin, oksitlerin ve yabancı maddelerin sıcaklıkla ayrışması sağlanır. Karıştırma, öğütme ve kalsinasyon adımları birkaç kez tekrar edilebilir. Kalsinasyon işleminden sonra örnek yeniden öğütülerek uygun basınç altında pellet haline getirilir ve amaca uygun gaz ortamında 600-900 °C aralığında değişen bir sıcaklıkta belirlenen bir zaman diliminde sinterleme işlemine tabi tutulur. Sinterleme, üretilen malzemenin erime sıcaklığının hemen altındaki sabit bir sıcaklıkta uzun süre ısıtılma işlemidir. Bu işlem süperiletken fazı elde etmek, bileşimi oluşturan atomlar arasındaki bağları kuvvetlendirmek ve kristal kusurlarını ortadan kaldırmak için yapılmaktadır. Bu işlemler homojen ve istenilen yoğunlukta örnek elde edilinceye kadar devam eder.

#### 4.2 $\text{Bi}_{1,7-x}\text{Pb}_{0,3}\text{Nb}_x\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ Bileşiğinin Hazırlanması

$\text{Bi}_{1,7-x}\text{Pb}_{0,3}\text{Nb}_x\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  (0,00, 0,05, 0,10, 0,20, 0,30) yapısı, geleneksel katıhal reaksiyon yöntemiyle hazırlandı. Bileşiği oluşturan malzemelerin oksit ve karbonat bileşikleri olan %99,99 saflıkta  $\text{Bi}_2\text{O}_3$ ,  $\text{PbO}$ ,  $\text{CuO}$ ,  $\text{SrCO}_3$ ,  $\text{CaCO}_3$ ,  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  tozları yapıdaki molar oranlarına göre karıştırıldı. Başlangıç karışımını hazırlamak için kullanılan kimyasal maddeler tablo 4.1’ de verilmiştir.

$\text{Bi}_{1,7-x}\text{Pb}_{0,3}\text{Nb}_x\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  bileşiğini oluşturacak tozlar hassas dijital terazide tartıldı. Daha sonra tartılan tozlar, bir agat havan içine yerleştirilip homojen bir karışım elde edebilmek için iyice öğütüldü ve kalsinasyon, pelletleme ve sinterizasyon işlemlerine tabi tutuldu.

İyice öğütölmüş olan tozlar, alümina kaplar içersinde kalsinasyona bırakılmıştır. Kalsinasyon programı, 800 °C sıcaklıkta 20 saat sürmüştür. Toz karışım tekrar bir ara öğütme işleminden sonra ikinci kez 800 °C’ de 20 saat kalsine edildi. İşlem bitiminde, tozlar fırın içinde kendiliğinden soğumaya bırakılmıştır. İkinci kalsinasyondan çıkan tozlar tekrar agat havanda toz haline getirilip 450 MPa basınç altında pelletler haline getirildi. Hazırlanan pelletler, sinterizasyon işlemine tabi tutuldu. Bu işlem süresince fırın, 845 °C’ ye 2 saatte çıkacak ve 120 saat boyunca 845 °C’ de kalacak şekilde ayarlandı. Tablo 4.2’ de örneklere uygulanan ısıl işlemler gösterilmektedir. Hazırlanan örnekler katkısız örnek Nb0 ve katkılı örnekler sırasıyla Nb1, Nb2, Nb3 ve Nb4 şeklinde etiketlenmiştir.

Tablo 4.1 Başlangıç kompozisyonunu oluşturan bileşiklerin saflık dereceleri ve atom ağırlıkları

| Bileşik                        | Saflık Derecesi (%) | Molekül Ağırlığı (g) |
|--------------------------------|---------------------|----------------------|
| Bi <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | %99,99              | 465,959              |
| PbO                            | %99,99              | 223,199              |
| SrCO <sub>3</sub>              | %99,99              | 147,63               |
| CaCO <sub>3</sub>              | %99,99              | 100,09               |
| CuO                            | %99,99              | 79,545               |
| Nb <sub>2</sub> O <sub>5</sub> | %99,99              | 265,82               |

Tablo 4.2 Örneklere uygulanan ısıl işlemler

| Program        | Sıcaklık | Süre     |
|----------------|----------|----------|
| I.Kalsinasyon  | 800 °C   | 20 saat  |
| II.Kalsinasyon | 800 °C   | 20 saat  |
| Sinterizasyon  | 845 °C   | 120 saat |

#### 4.3 Bi<sub>1,7-x</sub>Pb<sub>0,3</sub>Gd<sub>x</sub>Sr<sub>2</sub>Ca<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>y</sub> Bileşiğinin Hazırlanması

Bi<sub>1,7-x</sub>Pb<sub>0,3</sub>Gd<sub>x</sub>Sr<sub>2</sub>Ca<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>y</sub> (0,00, 0,05, 0,10, 0,20, 0,30) yapısı, geleneksel katıhal reaksiyon yöntemiyle hazırlandı. Bileşiği oluşturan malzemelerin oksit ve karbonat bileşikleri olan %99,99 saflıkta Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, PbO, CuO, SrCO<sub>3</sub>, CaCO<sub>3</sub>, Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> tozları yapıdaki molar oranlarına göre karıştırıldı. Başlangıç karışımını hazırlamak için kullanılan kimyasal maddeler tablo 4.3’ de verilmiştir.

Bi<sub>1,7-x</sub>Pb<sub>0,3</sub>Gd<sub>x</sub>Sr<sub>2</sub>Ca<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>y</sub> bileşiğini oluşturacak tozlar hassas dijital terazide tartıldı. Daha sonra tartılan tozlar, bir agat havan içine yerleştirilip homojen bir

karışım elde edebilmek için iyice öğütüldü ve kalsinasyon, pelletleme ve sinterizasyon işlemlerine tabi tutuldu.

İyice öğütülmüş olan tozlar, alümina kaplar içersinde kalsinasyona bırakılmıştır. Kalsinasyon programı, 800 °C sıcaklıkta 20 saat sürmüştür. Toz karışım tekrar bir ara öğütme işleminden sonra ikinci kez 800 °C’ de 20 saat kalsine edildi. İşlem bitiminde, tozlar fırın içinde kendiliğinden soğumaya bırakılmıştır. İkinci kalsinasyondan çıkan tozlar tekrar agat havanda toz haline getirilip 450 MPa basınç altında pelletler haline getirildi. Hazırlanan pelletler, sinterizasyon işlemine tabi tutuldu. Bu işlem süresince fırın, 845 °C’ ye 2 saatte çıkacak ve 120 saat boyunca 845 °C’ de kalacak şekilde ayarlandı. Tablo 4.4’ de örneklere uygulanan ısıl işlemler gösterilmektedir. Hazırlanan örnekler katkısız örnek Gd0 ve katkılı örnekler sırasıyla Gd1, Gd2, Gd3 ve Gd4 şeklinde etiketlenmiştir.

Tablo 4.3 Başlangıç kompozisyonunu oluşturan bileşiklerin saflık dereceleri ve atom ağırlıkları

| Bileşik                        | Saflık Derecesi (%) | Molekül Ağırlığı (g) |
|--------------------------------|---------------------|----------------------|
| Bi <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | %99,99              | 465,959              |
| PbO                            | %99,99              | 223,199              |
| SrCO <sub>3</sub>              | %99,99              | 147,63               |
| CaCO <sub>3</sub>              | %99,99              | 100,09               |
| CuO                            | %99,99              | 79,545               |
| Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | %99,99              | 362,50               |

Tablo 4.4 Örneklere uygulanan ısıl işlemler

| Program        | Sıcaklık | Süre     |
|----------------|----------|----------|
| I.Kalsinasyon  | 800 °C   | 20 saat  |
| II.Kalsinasyon | 800 °C   | 20 saat  |
| Sinterizasyon  | 845 °C   | 120 saat |

## BÖLÜM BEŞ

### DENEYSEL ÖLÇÜMLER

Nb katkılı  $\text{Bi}_{1,7-x}\text{Pb}_{0,3}\text{Nb}_x\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=0,00, 0,05, 0,10, 0,15, 0,20$ ) ve Gd katkılı  $\text{Bi}_{1,7-x}\text{Pb}_{0,3}\text{Gd}_x\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x=0,00, 0,05, 0,10, 0,15, 0,20$ ) süperiletken örneklerinin yapısal ve manyetik özelliklerini araştırmak amacıyla yaptığımız çalışmanın bu kısmında; X-Işını Kırınımı (XRD) desenlerinden, Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM) fotoğraflarından ve Manyetik Alınganlık ölçümleri sonuçlarından elde edilen verilerin analizleri yardımıyla değerlendirmeler yapıldı.

AC alınganlık ölçümlerinden süperiletken geçişin başladığı sıcaklık değeri saptandı.  $T_p$  pik sıcaklığı ve tanecikler arası kritik akım yoğunlukları  $J_c$  teorik olarak kritik durum modelleri ve ac alınganlık grafiklerinden hesaplandı. Ayrıca taşıyıcı konsantrasyonu  $p$  (boşluk sayısı), ac alınganlık ölçümlerinden elde edilen verilerden yararlanarak hesaplandı. Taramalı elektron mikroskobu (SEM) fotoğrafları ile örneklerin tanecik boyutları ve yönelimleri incelendi. Yapıdaki süperiletken ve diğer fazlar XRD desenleri yardımıyla belirlendi. Ayrıca, hazırlanan süperiletken örneklerin X-ışını toz kırınım desenlerindeki piklerin genişliğinden de tanecik büyüklükleri Scherrer eşitliği kullanılarak hesaplandı.

Tablo 5.1 Niyobyum ve Gadolinyum elementlerine ait bazı fiziksel ve atomik özellikler

| Ad         | Sembol | Atom ağırlığı<br>(g/mol) | Erime noktası<br>(°C) | Yoğunluk<br>(g.cm <sup>-3</sup> ) | Atomik<br>yarıçap<br>(nm) |
|------------|--------|--------------------------|-----------------------|-----------------------------------|---------------------------|
| Niyobyum   | Nb     | 92,906                   | 2477                  | 8,57                              | 0,146                     |
| Gadolinyum | Gd     | 157,250                  | 1312                  | 7,90                              | 0,180                     |

### 5.1 AC Manyetik Alınganlık Ölçüm Sonuçları

#### 5.1.1 $\text{Bi}_{1,7-x}\text{Pb}_{0,3}\text{Nb}_x\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ Bileşiğinin AC Manyetik Alınganlık Ölçüm Sonuçları

AC alınganlık ölçümü ( $\chi' + \chi''$ ) yüksek sıcaklık süperiletkenlerin tanecikler içi ve tanecikler arası özelliklerinin belirlenmesi ve karakterizasyonu için yaygın şekilde

kullanılan deneysel bir yöntemdir. AC alınganlığın faz-içi (gerçek) bileşeni,  $\chi'$ , tanecikli süperiletkenler için  $T_c$ ' nin altına kadar düşürüldüğünde iki belirgin düşüş gösterir.  $T_c$  yakınındaki keskin düşüş, yalnızca taneciklerin kendine özgü özelliklerine karşılık gelir. Daha düşük sıcaklıklardaki diğer düşüş ise süperiletken akımların tanecikten taneciğe aktığı süperiletkenliğin varlığı ile ilişkilendirilen kademeli değişimlere işaret eder. Faz-dışı (sanal) bileşen,  $\chi''$ , genel olarak  $T_c$ ' nin altında azalan sıcaklık ile bir pik gösterir, ac alanından süperiletkenin manyetik enerjisinin soğurulması ile ilişkilendirilir. Bu nedenle,  $\chi'$ , süperiletkene nüfuz eden akı miktarı ile orantılıdır,  $\chi''$  ise süperiletkenin karışık durumundaki ac kayıpları ile ilişkilidir.

Alınganlık ölçümleri manyetik alınganlık cihazı kullanılarak karşılıklı indüktans yöntemiyle, sabit frekans (1000 Hz) değeri için farklı ac alanlar (0,25, 0,5, 1, 2 Oe) uygulanarak yapıldı. Bi-2223 süperiletken sistemine Nb katkısının etkileri geleneksel katıhal reaksiyon yöntemi ile hazırlanan  $Bi_{1,7-x}Pb_{0,3}Nb_xSr_2Ca_2Cu_3O_y$  ( $x= 0,00, 0,05, 0,10, 0,15, 0,20$ ) süperiletken örneklerde ac alınganlık farklı alanlarda ve sabit frekansta sıcaklığın fonksiyonu olarak ölçüldü.

$Bi_{1,7-x}Pb_{0,3}Nb_xSr_2Ca_2Cu_3O_y$  ( $x= 0,00, 0,05, 0,10, 0,15, 0,20$ ) süperiletken örneklerin sıcaklığa bağlı ac manyetik alınganlık ölçüm sonuçları şekil 5.1' de verilmiştir. Sıcaklık azaldıkça, tüm örnekler için  $\chi''$  de iki adımlı bir düşüş gözlemlenmiştir. Şekilde görüldüğü gibi ac alınganlık grafiklerinde  $\chi'$ -T eğrilerinde iki farklı diyamanyetik geçiş sıcaklığı gözlenmektedir. 100 K' nin üzerindeki sıcaklıklarda ilk keskin düşüş, malzemenin taneciklerinin öncelikle süperiletken olmaya başladıklarının göstergesidir. Bu sıcaklıklarda, ac manyetik alanın akı çizgileri taneciklerin iç kısmından dışarılanmış ve yalnızca tanecikler üzerindeki çok ince bir yüzey tabakasında bulunmaktadır. Bu durum, taneciklerin mükemmel diyamanyetik olmaya başladıklarını ve özelliklerin uygulanan alan ve frekanstan bağımsız olduğunun bir işaretidir. Şekil 5.1' deki ikinci basamak ise, tanecikler arasında süperiletkenliğin oluşmaya başladığını gösterir. Bu sıcaklık aralığında tanecikler arasındaki bağlantılar süperiletken olmaya başlar (tanecikler arası çiftleşme). Böylece süperiletken malzeme kademeli olarak diyamanyetik özellik

sergilemeye başlar ve yeterince düşük sıcaklıklarda  $\chi'$ , SI biriminde -1 değerine ulaşır. Şekil 5.1' den görüleceği gibi tanecikler arası çiftleşme nedeniyle sıcaklık aralığının genişliği dış ac alan genliğine bağlıdır. Yüksek alan genliklerinde geçiş sıcaklık aralığı genişler.

$\chi'$ -T eğrisinde diyamanyetik geçiş sıcaklığı (başlangıç sıcaklıkları,  $T_c^{on}$ ) sırasıyla Nb0 için yaklaşık 108 K, Nb1 için 105 K, Nb2 için 103 K, Nb3 için 105K, Nb4 örneği için 98 K olarak gözlemlenmiştir. Öte yandan, örneklerin faz-dışı bileşenindeki tam akı nüfuzunu temsil eden kayıp pik sıcaklıklarının ( $T_p$ ) 20 (160) A/m ac alanda, sırasıyla Nb0 için yaklaşık 99 (83) K, Nb1 için 66 (64) K, Nb2 için 63 (61) K, Nb3 için 66 (65) K, Nb4 için 84 (71) K olduğu belirlenmiştir. Bu pikin şiddeti diyamanyetik geçiş sırasında tanecikler arası bölgedeki enerji kaybıyla orantılıdır, ve kayıp bileşeni olarak adlandırılır.  $T_p$  uygulanan dış manyetik alanın örnek merkezine ulaştığı sıcaklığı gösterir. Şekil 5.1 incelendiğinde ac alınganlığın sanal kısmının ( $\chi''$ ) uygulanan ac alana bağlı olduğu açıkça görülebilir. Sanal kısımda gözlenen maksimum tepenin meydana geldiği sıcaklık değeri ( $T_p$ ), örneğe uygulanan ac alanın artırılması ile azalmıştır.

Tanecikler arasındaki eşleşme kuvveti ac alınganlığın, faz-dışı  $\chi''$ , bileşeninden açıkça görülebilir,  $x= 0,20$  Nb konsantrasyonu ile pikler daha yüksek sıcaklıklara kayar, bu tanecikler arasındaki eşleşmenin geliştiğine işaret eder. Nb4 örneği için, tanecikler arası geçiş diğer örneklere kıyasla daha keskindir. Bu da Nb4 örneğinde tanecikler arasında tanecikler arası eşleşmesinin daha iyi olduğunun bir göstergesidir. Manyetik alan arttığında kritik akım yoğunluğunun zayıflaması sebebiyle  $\chi''$  eğrisinin düşük sıcaklıklara doğru kayması ve genişlemesi beklenir. Alan genliğinin fonksiyonu olarak kayma miktarı iğneleme kuvvetinin şiddeti ile orantılıdır.  $\chi''$  nün maksimum değerindeki geniş kaymalar iğnelemenin zayıflaması ve böylece kritik akım yoğunluğunun küçülmesini ifade eder.

Bean modeli kullanılarak kritik akım yoğunluğu pik sıcaklığının bir fonksiyonu olarak hesaplanabilir. Bean modeline göre pik sıcaklığının ( $T_p$ ) kritik akım yoğunluğu ile ilişkisi,

$$J(T_p)=H_p/(ab)^{1/2} \quad (5.1)$$

ile verilmektedir (Bean, 1964, Kameli, Salamatı ve Abdolhosseini, 2008). Burada malzemenin dikdörtgen biçimli ara yüzey alanı  $2a \times 2b$ ’ dir.  $H_{ac}= H_p$  iken, tam akı nüfuzu meydana gelir. Şekil 5.2,  $H_p$  değerlerinden hesaplanan tanecikler arası kritik akım yoğunluğunun  $J_c$ , sıcaklık bağıllığını gösterir.

Örneğe uygulanan ac alanın artırılması ile  $T_p$  sıcaklığının azalması Bean modeli yardımıyla nitel olarak açıklanabilir. Bu model bir süperiletkenin düzgün alan sızması ile sabit bir kritik akım yoğunluğu  $J_c$ ’ ye sahip olabileceğini kabul etmektedir. Alınanlığın faz dışı bileşeni alan maksimum olduğunda  $H_m=J_c(T_p)a$  bir tepe noktası sergiler. Burada  $a$  örnek boyutu ve  $J_c(T_p)$ ’ de pik sıcaklığı  $T_p$ ’ deki kritik akım yoğunluğudur. Düşük sıcaklıklarda  $H_m < H_p$  olup burada  $H_m$  ac alanın pik değeri ve  $H_p$ ’ de süperiletkenin merkezine kadar sızabilecek gerekli en küçük alandır.  $\chi''$  sıfıra çok yakındır. Uygulanan ac alanı süperiletkenin merkezine ulaştığında  $\chi''$  nin en büyük değeri sağlanır. Nb katkılı örneklerin akım taşıma kapasitesi olan kritik akım yoğunluğu şekil 5.1’ deki verilerden Bean modeli yardımıyla hesaplandı. Sonuçlar şekil 5.2’ de görülmektedir. Kritik akım yoğunluğu  $J_c$ ’ de gözlemlenen gelişme zayıf miktarlarda Nb eklenmesinin tanecikler arasına yerleşebileceğini ve taneciklerin bağlanabilirliğini arttırabileceğini göstermektedir.

Nb katkısının tanecikler arası iğneleme kuvveti üzerindeki etkisini çalışmak üzere pik sıcaklığının ac manyetik alanı,  $H_{ac}$ , ile bağıllığı inceledi. Tüm örnekler için  $T_p$   $H_{ac}$ ’ nin bir fonksiyonu olarak doğrusal bir bağıllık gözlemlenmiştir. Müller kritik durum modeli manyetik akıdan bağımsız iğneleme kuvveti yoğunlukları aşağıdaki ilişki ile tanımlanmıştır (Yıldırım ve diğerleri, 2011);

$$T_p = T_{p0} - T_{p0} U^{1/2} H_{ac} \quad (5.2)$$

burada  $U = \frac{\mu_0 \mu_{eff}}{2a\alpha_j(0)}$  ile verilmektedir.  $a$  örneklerin uzunluğudur,  $\mu_{eff}$  seramiğin etkin geçirgenliğidir ve  $\alpha_j(0)$  tanecikler arası iğneleme kuvvet yoğunluğudur. Denklemin

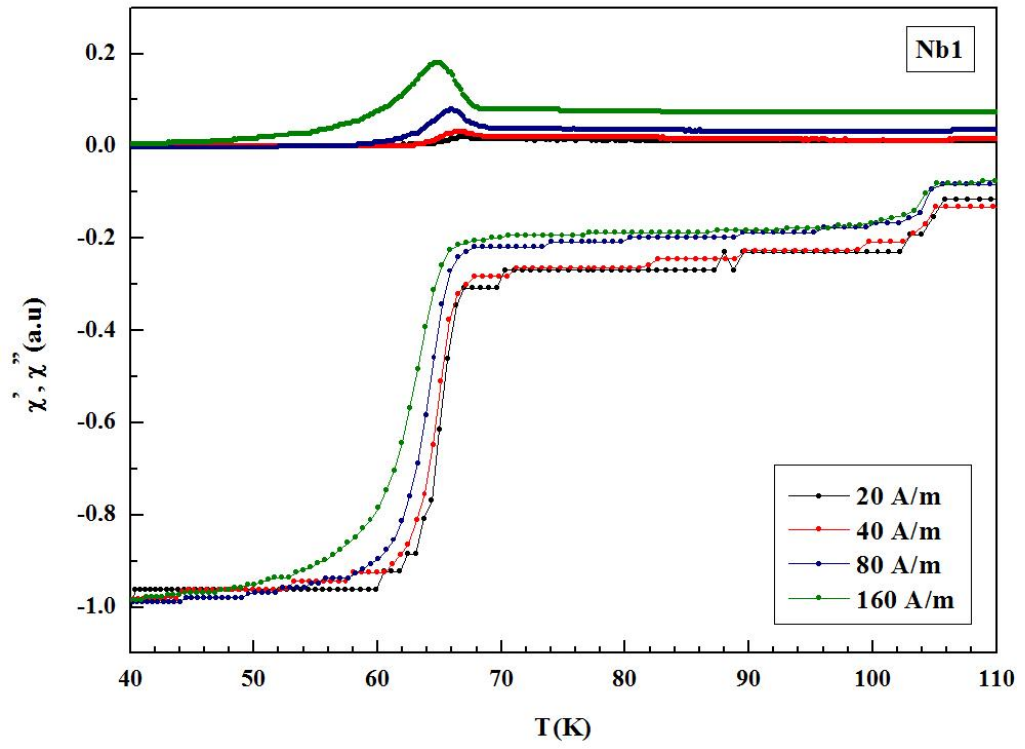
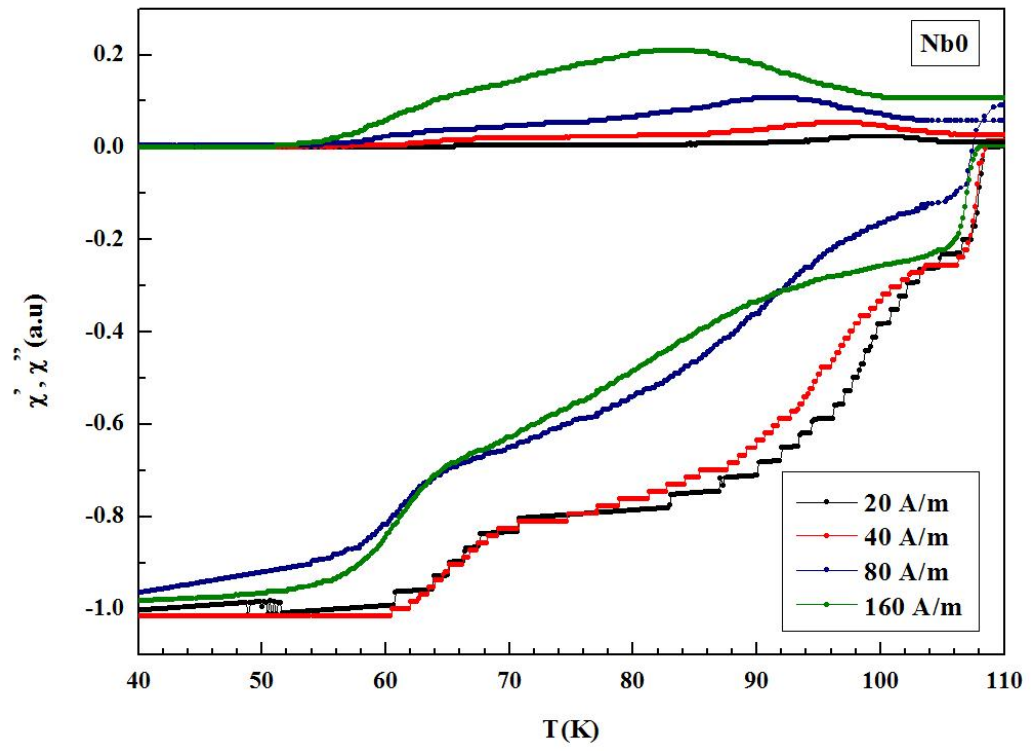
en küçük kareler uyumundan tüm örnekler için  $T_{p0}$  ve  $U$  değerleri çıkarılmıştır.  $T_{p0}$ ,  $U$  değerleri artan Nb katkısı ile azalmıştır. Bu  $\alpha_j(0)$  değerlerinin artan Nb katkısı ile arttığı anlamına gelmektedir. Örneklerin azalan Nb katkısı ile iğneleme kuvvetlerindeki azalma eğilimi SEM sonuçları ile de doğrulanarak daha büyük boşluklar ve kusurlara dayandırılabilir.

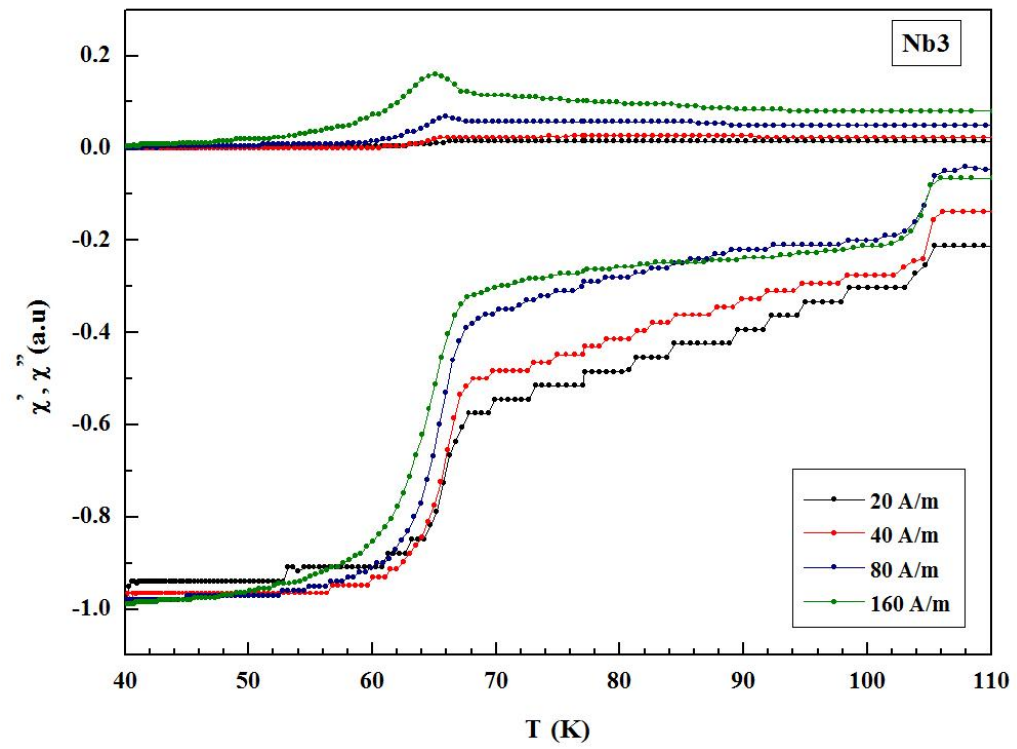
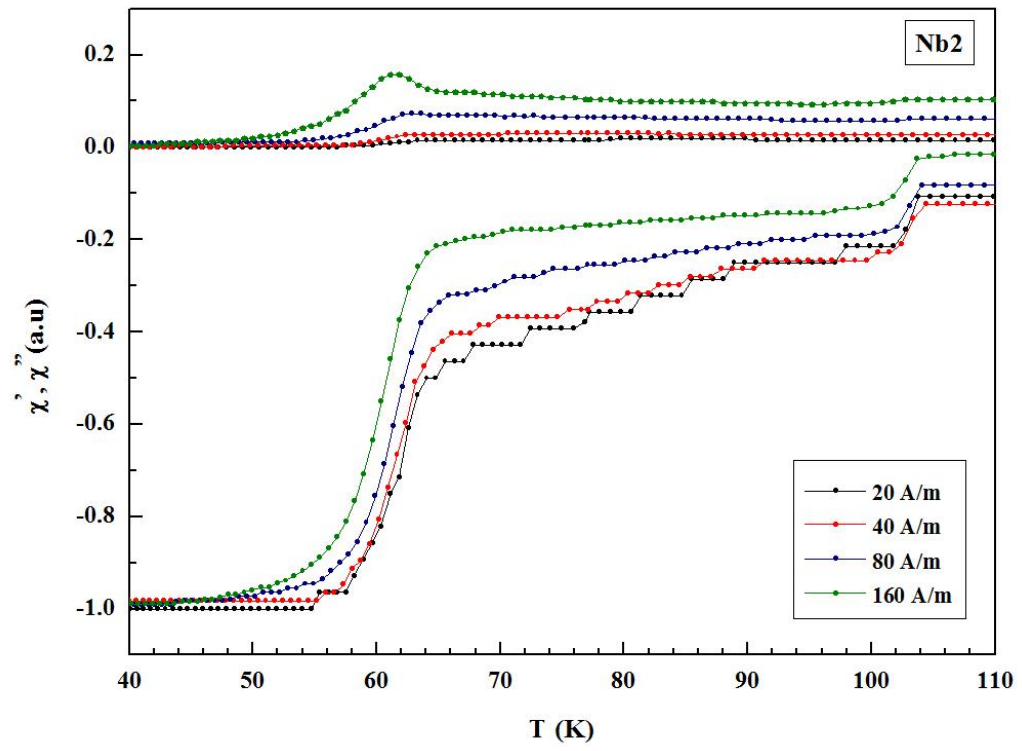
Tablo 5.2 Farklı alanlarda Nb0, Nb1, Nb2, Nb3 ve Nb4 örneklerinin  $T_c^{on}$  ve  $T_p$  sıcaklıkları

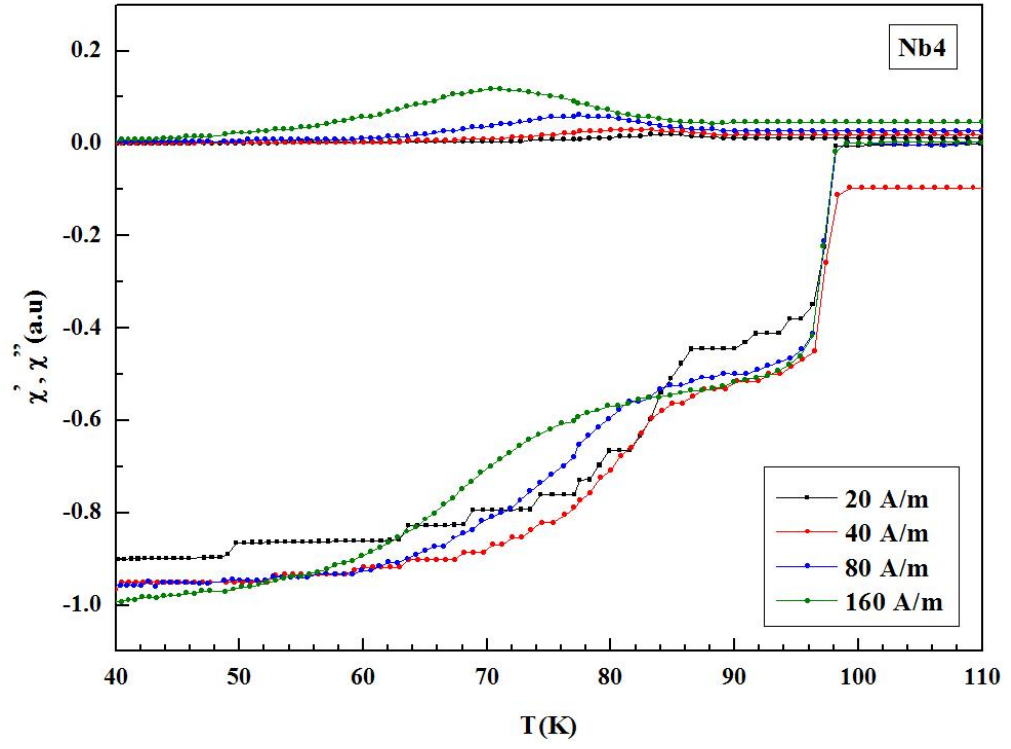
| Örnek | $T_c^{on}$ (K) | $T_p$ (K) |          |          |           |
|-------|----------------|-----------|----------|----------|-----------|
|       |                | 20 (A/m)  | 40 (A/m) | 80 (A/m) | 160 (A/m) |
| Nb0   | 108,46         | 99,756    | 96,636   | 91,429   | 83,401    |
| Nb1   | 105,85         | 66,899    | 66,550   | 65,886   | 64,772    |
| Nb2   | 103,80         | 63,304    | 62,376   | 62,082   | 61,121    |
| Nb3   | 105,43         | 66,232    | 65,509   | 65,938   | 65,053    |
| Nb4   | 98,180         | 84,847    | 81,619   | 77,017   | 71,287    |

Tablo 5.3 Nb katkılı örneklerin  $T_{p0}$  ve  $U$  değerleri

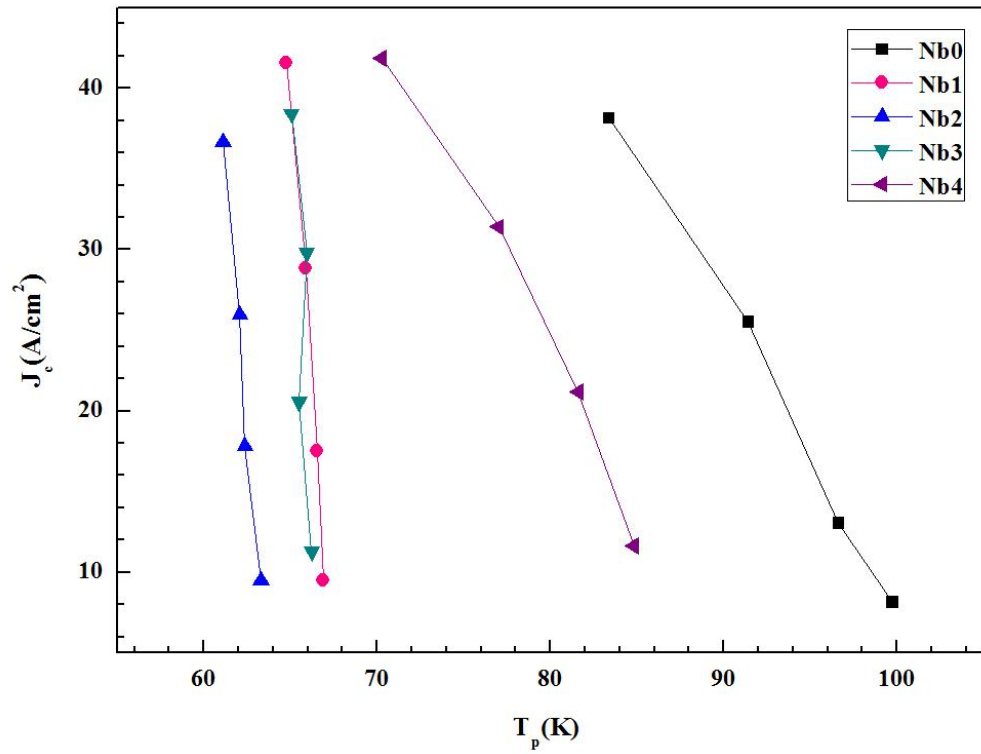
| Örnek | $T_{p0}$ (K) | $U(\alpha_j(0)^{-1/2})$ |
|-------|--------------|-------------------------|
| Nb0   | 101,772      | 0,11888                 |
| Nb1   | 66,857       | 0,01387                 |
| Nb2   | 63,419       | 0,01352                 |
| Nb3   | 66,181       | 0,00664                 |
| Nb4   | 85,411       | 0,09179                 |



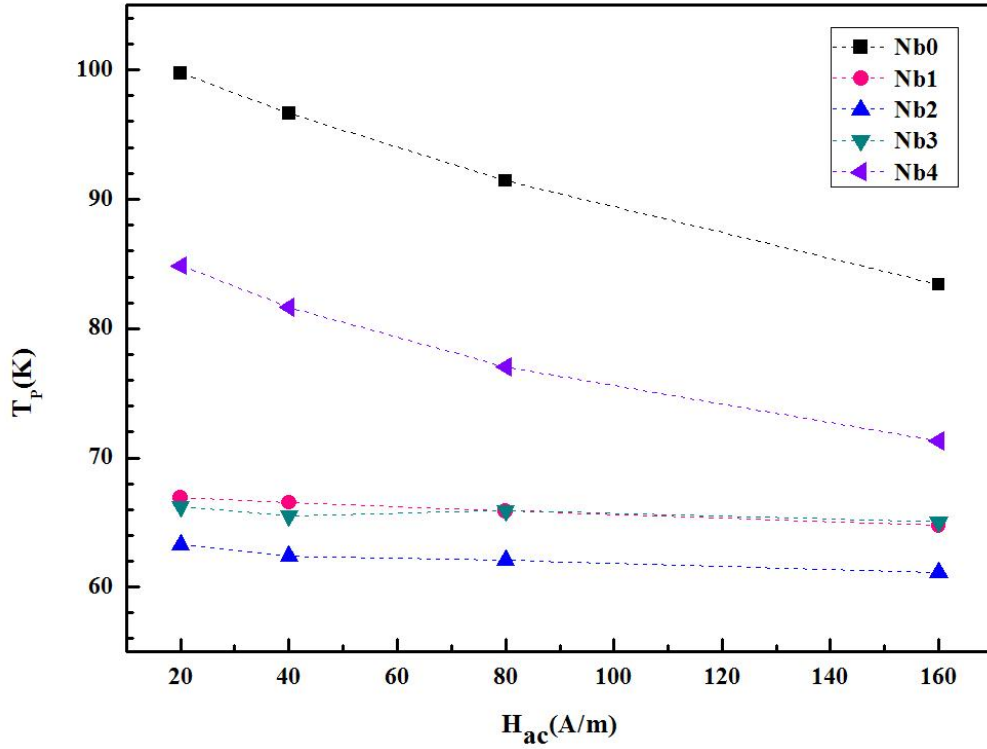




Şekil 5.1 Nb0, Nb1, Nb2, Nb3, Nb4 için ac alınganlığın gerçek ve sanal kısımları ile sıcaklık grafiği



Şekil 5.2 Nb0, Nb1, Nb2, Nb3, Nb4 için tanecikler arası pik sıcaklığı ile kritik akım yoğunluğu



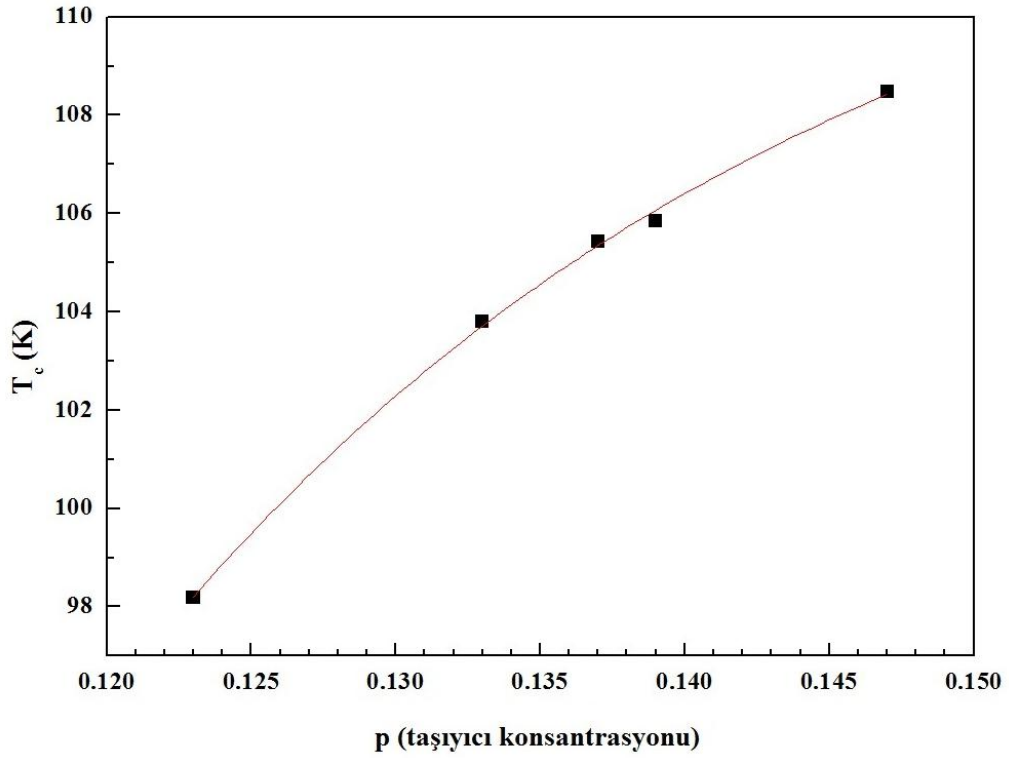
Şekil 5.3 Nb0, Nb1, Nb2, Nb3, Nb4 için  $H_{ac}$  ile  $T_p$  davranışı

Geleneksel süperiletkenlerde, kritik sıcaklık yük taşıyıcı konsantrasyonu artışı ile artar,  $T_c(p) \propto p$ . Boşluk katkılı yüksek sıcaklık süperiletkenlerde,  $T_c(p)$  bağılılığı çan benzeri şekle sahiptir ve ampirik ifade ile yaklaşık olarak elde edilebilir. Geçiş sıcaklığı ve taşıyıcı konsantrasyonu arasında parabolik bir ilişki olduğu bilinmektedir. Taşıyıcı konsantrasyonu (boşluk sayısı)  $p$  aşağıdaki bağıntı kullanılarak hesaplanır (Persland, Tallon, Buckley, Liu ve Flower, 1991).

$$T_c(p) \approx T_{c,maks} [1 - 82,6(p - 0,16)^2] \quad (5.3)$$

Burada  $T_{c,maks}$  verilen bir bileşik için maksimum kritik sıcaklıktır,  $p$  ise  $\text{CuO}_2$  tabakalarındaki birim Cu atomu başına düşen taşıyıcı konsantrasyonudur. Süperiletkenlik farklı yüksek sıcaklık süperiletkenlerde çok az değişen  $0,05 < p < 0,27$  limitlerinde meydana gelir.

Bu çalışmada, hesaplanan boşluk konsantrasyonu artan Nb içeriği ve azalan  $T_c$  ile 0,147' den 0,123' e düşmektedir. Şekil 5.4' de görüldüğü gibi, örnekler için  $T_c$  ve boşluk konsantrasyonu arasındaki ilişki paraboliktir. Böylece, Nb eklenmesi boşluk konsantrasyonunu etkileyerek taşıyıcı yoğunluğunu azaltır.



Şekil 5.4 Nb katkılı ve katkısız süperiletken örnekleri için geçiş sıcaklığına karşı taşıyıcı konsantrasyonu

### 5.1.2 $Bi_{1,7-x}Pb_{0,3}Gd_xSr_2Ca_2Cu_3O_y$ Bileşiğinin AC Manyetik Alınganlık Ölçüm Sonuçları

AC alınganlık ölçümleri materyallerin diyamanyetik başlangıç sıcaklığı ve akı dinamikleri ile ilgili bilgileri açığa çıkarmak için kullanılan önemli bir araçtır.  $\chi'$ -T eğrisi örneğin diyamanyetik başlangıç sıcaklığını gösterirken,  $\chi''$ -T eğrisi ise süperiletkene akı nüfuzunun dinamiklerini göstermektedir. Alınganlık ölçümleri manyetik alınganlık cihazı kullanılarak karşılıklı indüktans yöntemiyle, sabit frekans (1000 Hz) değeri için farklı ac alanlar (0,25, 0,5, 1, 2 Oe) uygulanarak yapıldı.

Şekil 5.5  $\text{Bi}_{1,7-x}\text{Pb}_{0,3}\text{Gd}_x\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x= 0,00, 0,05, 0,10, 0,15, 0,20$ ) yüksek sıcaklık süperiletkenlerinin tanecikler içi ve tanecikler arası özelliklerinin belirlenmesi ve karakterizasyonu için katksız ve Gd katkılı örneklerde ac alınganlığın gerçek  $\chi'$  ve sanal  $\chi''$  bileşenine karşılık sıcaklık verilerini göstermektedir. Diyamanyetik geçiş sıcaklığı (başlangıç sıcaklıkları,  $T_c^{\text{on}}$ ) sırasıyla Gd0 için yaklaşık 108 K, Gd1 için 77 K, Gd2 için 77 K, Gd3 için 72 K, Gd4 örneği için 70 K olarak gözlemlenmiştir. Süperiletken geçiş sıcaklığı Gd katkısı arttıkça düşük sıcaklıklara doğru kaymıştır. Öte yandan, örneklerin faz dışı bileşenindeki tam akı nüfuzunu temsil eden kayıp pik sıcaklıklarının ( $T_p$ ) 20 (160) A/m ac alanda, sırasıyla Gd0 için yaklaşık 100 (83) K, Gd1 için 72 (69) K, Gd2 için 67 (64) K, Gd3 için 68 (65) K, Gd4 için 63 (61) K olduğu belirlenmiştir. Bu pikin şiddeti diyamanyetik geçiş sırasında tanecikler arası bölgedeki enerji kaybıyla orantılıdır, ve kayıp bileşeni olarak adlandırılır.  $T_p$  uygulanan dış manyetik alanın örnek merkezine ulaştığı sıcaklığı gösterir.

Tablo 5.3' den görüldüğü üzere,  $T_c^{\text{on}}$  ve  $T_p$  sıcaklıklarının artan Gd eklenmesi ile azaldığı gözlenmiştir. Ayrıca  $T_p$  sıcaklıklarının artan alan ile birlikte azaldığı gözlenmiştir. Bu sonuçlar,  $\chi''$  eğrisi pikinin alana bağlı olduğunu gösterilmiştir. Buna ek olarak, tanecikler arası piklerin genişliğinin artan alan ile arttığı gözlenmiştir, bu durum alan nüfuzu (homojensizlik ve tanecik kalitesi nedeniyle) ve tanecikler arasındaki Abrikosov vortekslerinin hareketi için kayıplar olduğuna işaret eder. Örneklerin tanecik kalitesinin artan Gd eklenmesi ile bozulduğu gözlenmiştir. Ayrıca, Gd eklenmesinin geçişte bir genişlemeye ve süperiletken hacim kesrinin azalmasına neden olduğu belirlenmiştir. Sonuç olarak, süperiletken özelliklerin büyüklüklerinin artan Gd eklenmesi ile azaldığı bulunmuştur.

Gd katkılı örneklerde sıcaklığa bağlı tanecikler arası kritik akım yoğunluğu  $J_c(T)$  kritik durum modellerinden yararlanılarak bulunabilir. Bean modeline göre, pik sıcaklığı  $T_p$ ' de tanecikler arası akım yoğunluğu  $J_c(T) = H_a/\sqrt{ab}$  olarak yazılabilir, burada dikdörtgen çubuk örneğinin kesiti  $2a \times 2b$  ( $a < b$ )' dir,  $J_c$ ,  $\chi''$  pikinin  $T_p$  sıcaklığında tanecikler arası kritik akım yoğunludur,  $H_a$  uygulanan ac alanın büyüklüğüdür. Gd katkılı örnekler için kritik akım yoğunluğu  $J_c$ ' nin hesaplanan

değerleri şekil 5.6’ da gösterilmiştir. Şekil 5.6’ dan, Gd eklenmesi artışı ile örneklerin  $T_c$  değeri yakınlarında hesaplanan tanecikler arası kritik akım yoğunluğunda bir azalma olduğu görülür. Bu çalışmada, Gd0 örneğinin diğer katkılı örneklerden daha yüksek  $J_c$ ’ ye (83 K’ de  $40 \text{ A/cm}^2$ ) sahip olduğu bulunmuştur. Bu sonuçlar  $J_c$ ’ nin artan Gd eklenmesi ile azaldığını gösterir.  $J_c$ ’ nin ayrıca artan sıcaklık ile doğrusal olarak azaldığı bulunmuştur.

Tanecikler arası iğneleme kuvveti üzerinde Gd eklenmesinin etkisini çalışmak üzere, sanal eğrilerin ac manyetik alanın ( $H_{ac}$ ) fonksiyonu olarak kayıp pik sıcaklığına  $T_p$  bağıllığı incelenmiştir. Şekil 5.7, örnekler için, kayıp piklerinin  $T_p$  ac manyetik alan bağıllıklarını göstermektedir. Kritik durum modelini uyarlayarak, Müller ve arkadaşları  $T_p$ ’ nin doğrusal olarak  $H_{ac}$ ’ ye orantılı olduğunu, ancak tanecikler arası iğneleme kuvvet yoğunluğuna ters orantılı olduğunu öne sürmüştür:

$$T_p = T_{p0} - T_{p0} U^{1/2} H_{ac} \quad (5.4)$$

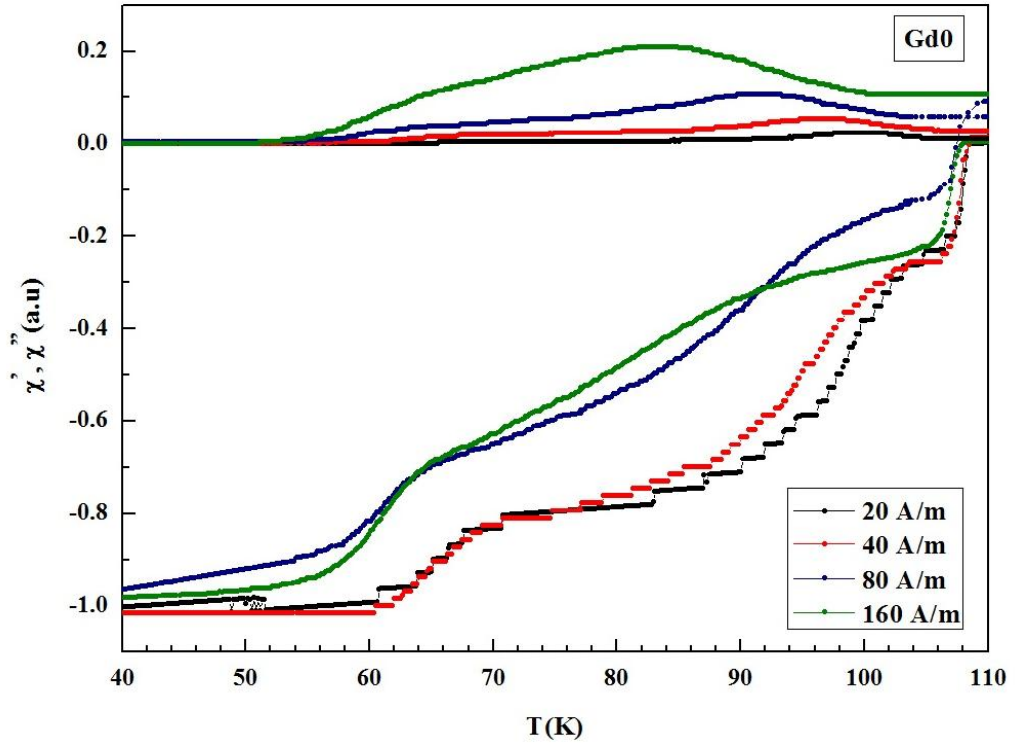
Şekil 5.7’ den görüldüğü üzere, her bir veri  $T_p$  ve  $H_{ac}$  arasında mükemmel bir doğrusal ilişki olduğunu gösterir. Her bir çizginin eğrisi  $(\alpha_j(0))^{-1/2}$ ’ e orantılıdır ve her bir çizginin dikey kesişimi sıfır ac manyetik alan büyüklüğünde pik sıcaklığı  $T_p$ ’ ye karşılık gelir. En küçük kareler uyum yönteminden, yukarıdaki denklemi kullanarak,  $T_{p0}$  ve U verisi tüm örnekler için hesaplanmıştır ve Tablo 5.5’ de gösterilmiştir. Tablodan görüldüğü üzere,  $T_{p0}$  ve U değerlerinin artan Gd eklenmesi ile azaldığı bulunmuştur. U’ daki azalma eğilimi,  $\alpha_j(0)$  değerlerinin, U ve  $\alpha_j(0)$  arasındaki ters orantıdan dolayı, Gd eklenmesindeki artış ile artışı anlamına gelirken, örneklerin artan Gd eklenmesi ile iğneleme kuvvetindeki azalma eğilimi ise daha büyük boşluklar ve bozukluklarla açıklanabilir.

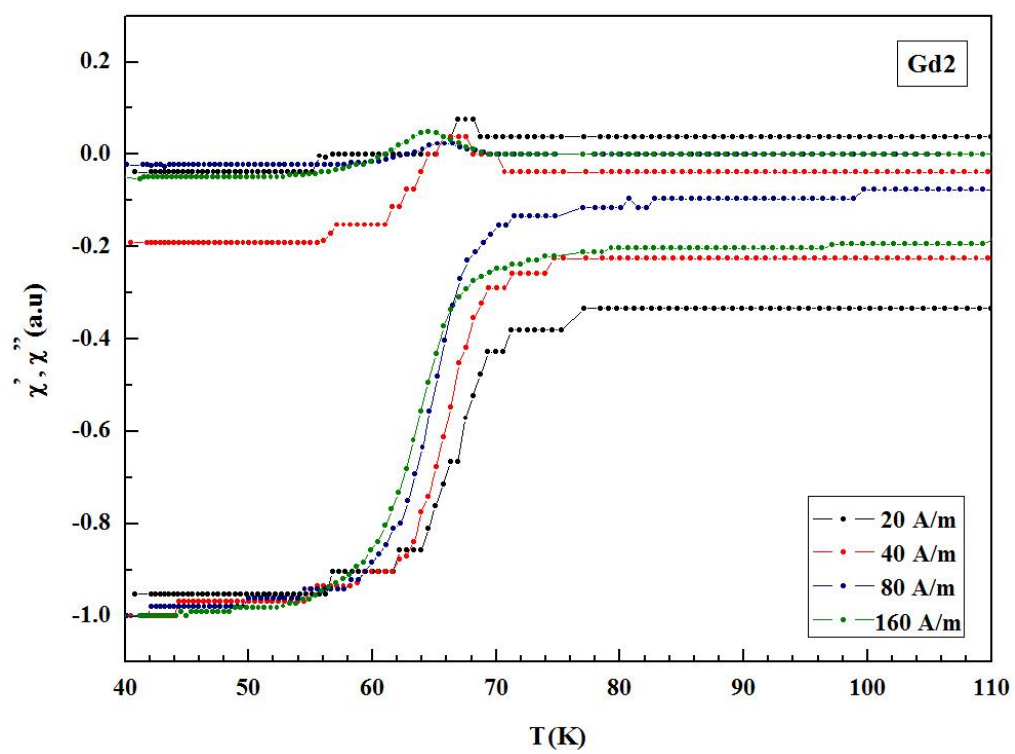
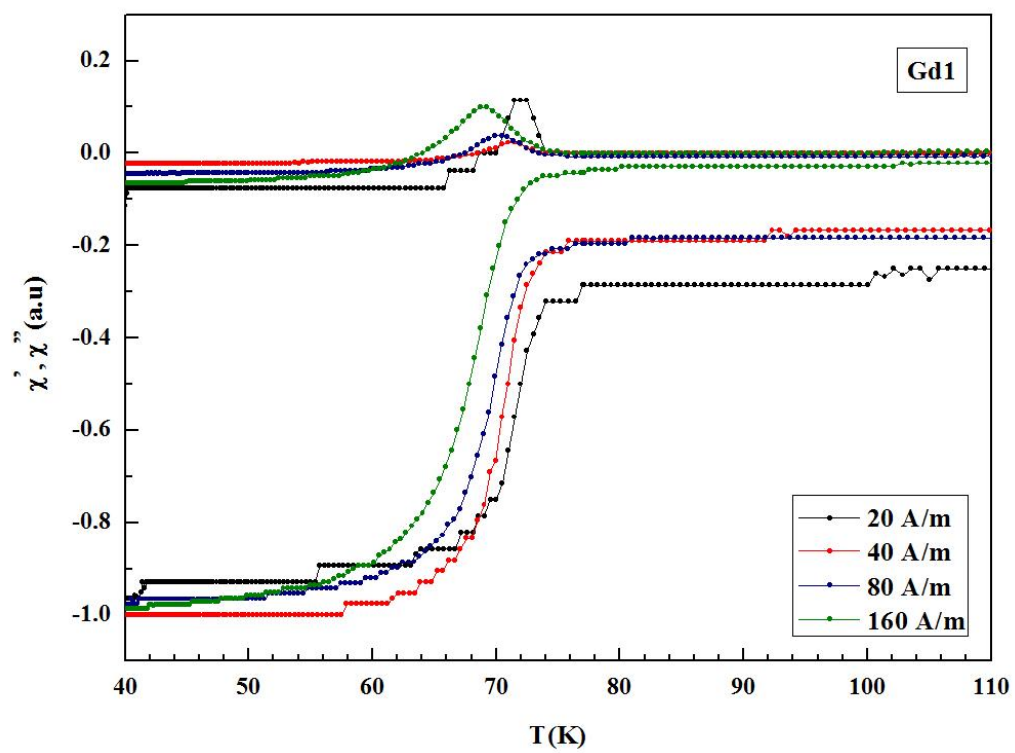
Tablo 5.4 Farklı alan büyüklüklerinde Gd0, Gd1, Gd2, Gd3 ve Gd4 örnekleri için  $T_c^{on}$  ve  $T_p$  sıcaklıkları

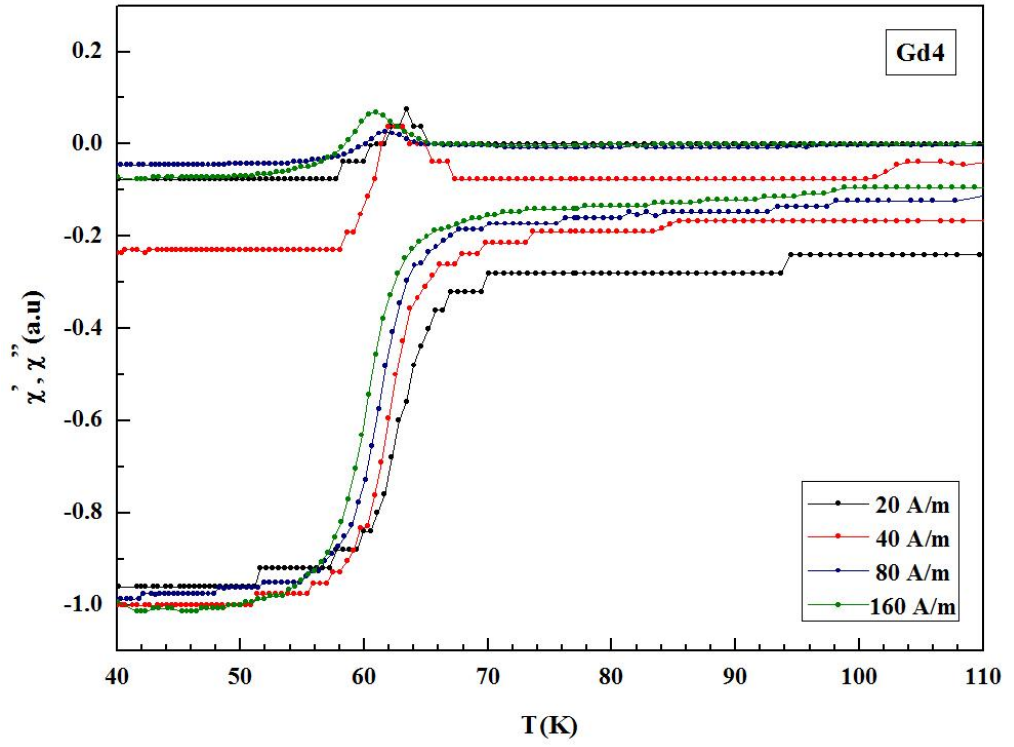
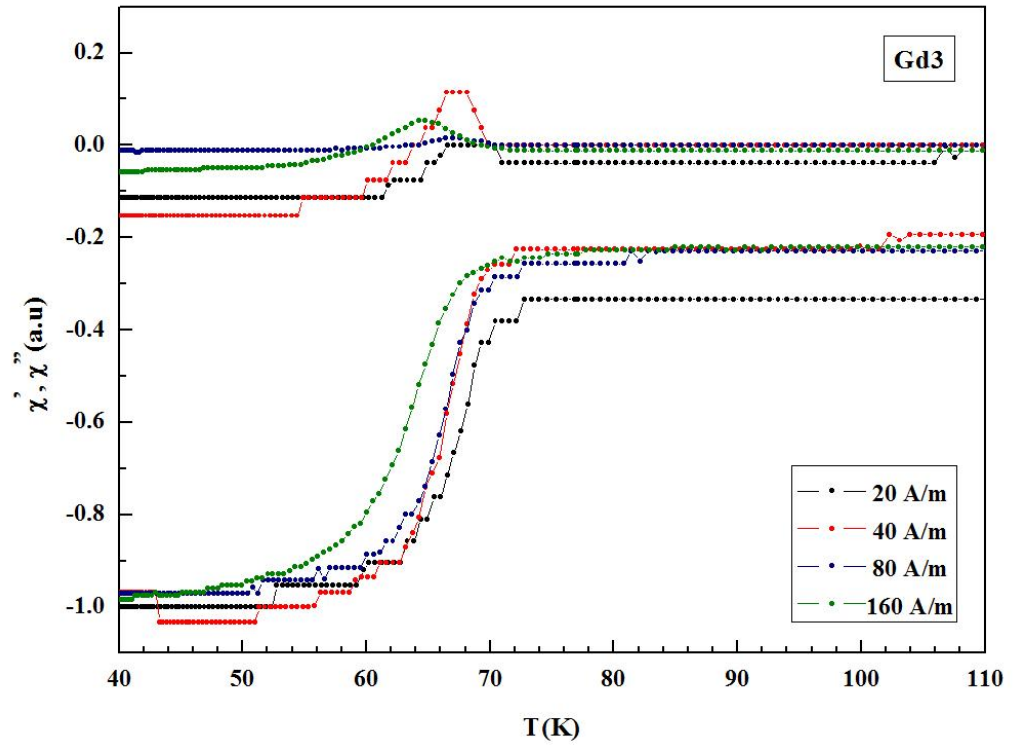
| Örnek | $T_c^{on}$ (K) | $T_p$ (K) |          |          |           |
|-------|----------------|-----------|----------|----------|-----------|
|       |                | 20 (A/m)  | 40 (A/m) | 80 (A/m) | 160 (A/m) |
| Gd0   | 108,48         | 99,756    | 96,636   | 91,429   | 83,401    |
| Gd1   | 77,016         | 71,994    | 71,452   | 69,909   | 68,75     |
| Gd2   | 77,105         | 67,53     | 66,956   | 65,855   | 64,49     |
| Gd3   | 72,756         | 67,641    | 67,016   | 66,99    | 64,767    |
| Gd4   | 70,031         | 63,396    | 62,556   | 61,712   | 60,924    |

Tablo 5.5 Gd katkılı örneklerin  $T_{p0}$  ve  $U$  değerleri

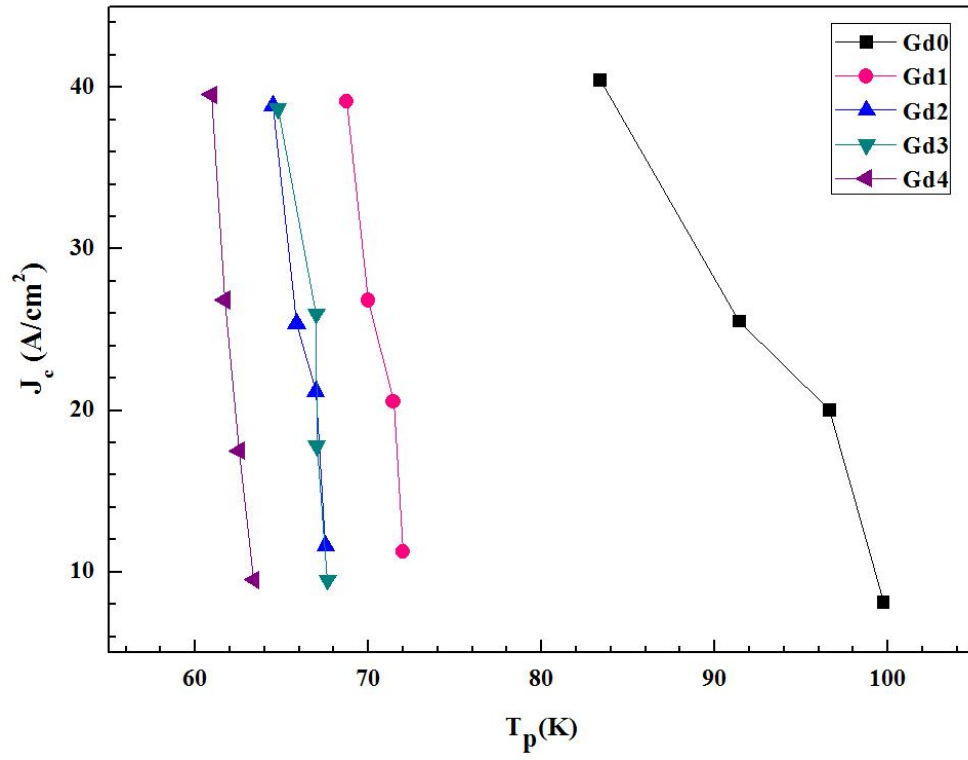
| Örnek | $T_{p0}$ (K) | $U(\alpha_j(0)^{-1/2})$ |
|-------|--------------|-------------------------|
| Gd0   | 101,431      | 0,1150                  |
| Gd1   | 72,286       | 0,0245                  |
| Gd2   | 67,816       | 0,0214                  |
| Gd3   | 68,075       | 0,0196                  |
| Gd4   | 63,380       | 0,0164                  |



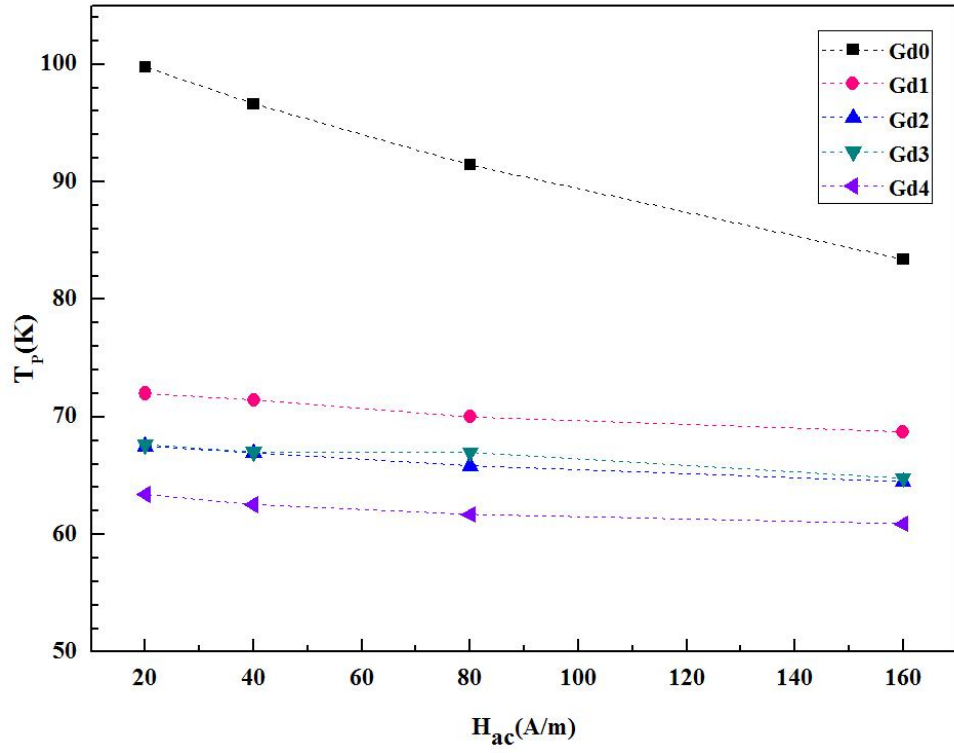




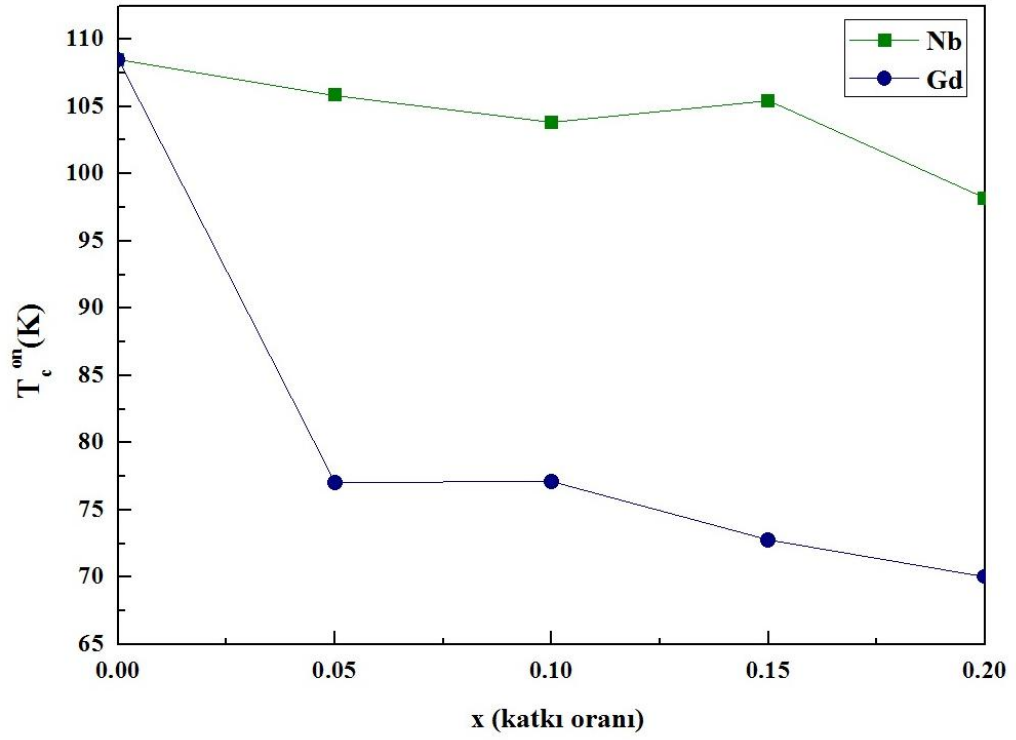
Şekil 5.5 Gd0, Gd1, Gd2, Gd3, Gd4 için ac alınganlığın gerçek ve sanal kısımları ile sıcaklık grafiği



Şekil 5.6 Gd0, Gd1, Gd2, Gd3, Gd4 için tanecikler arası pik sıcaklığı ile kritik akım yoğunluğu



Şekil 5.7 Gd0, Gd1, Gd2, Gd3, Gd4 için  $H_{ac}$  ile  $T_p$  davranışı



Şekil 5.8 Diyamanyetik geçiş sıcaklığının ( $T_c^{on}$ ) x katkı oranına göre değişimi

Yüksek sıcaklık süperiletkenlerinde, geçiş sıcaklığı  $T_c$ ' nin malzemeye yapılan katkılamaya bağımlılığını araştırmak, süperiletkenlik mekanizmasını anlamada temeldir.  $T_c$ ' yi kontrol eden anahtar parametrelerden birinin  $\text{CuO}_2$  tabakalarındaki p taşıyıcı yük yoğunluklarının olduğu düşünülmektedir.  $T_c$  ve p arasında birçok bağıntı vardır. Tüm boşluk katkılı yapılar için, boşluk konsantrasyonu ve  $T_c$  arasındaki bağıntı

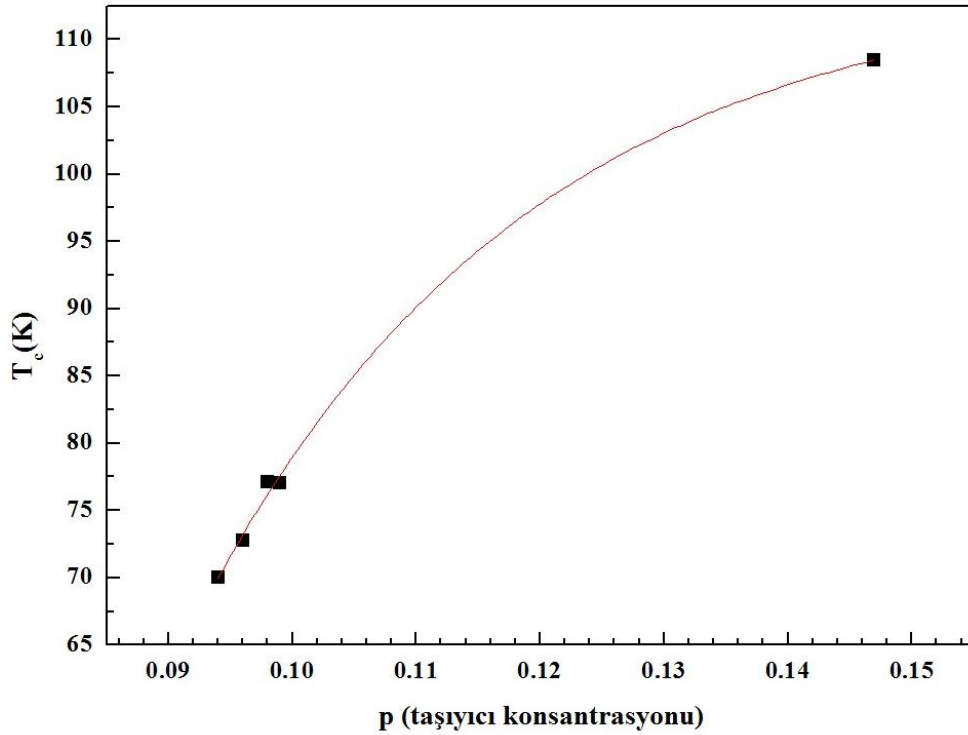
$$T_c(p) \approx T_{c,maks}[1 - 82,6(p - 0,16)^2] \quad (5.5)$$

şeklinde verilen Persland (Persland ve diğerleri, 1991) bağıntısıdır. Buradaki  $T_c$ , ulaşılan en yüksek  $T_c$  değeridir ve p ise  $\text{CuO}_2$  tabakalarındaki birim Cu atomu başına düşen boşluk konsantrasyonudur. Yüksek sıcaklık süperiletkenlerde Cu atomu başına boşluk konsantrasyonu p, aşağıdaki denklem bağıntısından yararlanarak hesaplanabilir.

$$p = 0,16 - [(1 - \frac{T_c}{T_{c,maks}})/82,6]^{1/2} \quad (5.6)$$

Burada,  $T_{c,maks}$ , Bi-2223 fazı için 110 K olarak alınır. Hesaplanan p değerleri şekil 5.9' da verilmektedir.

Bi yerine Gd katkılanması, boşluk konsantrasyonunda bir azalmaya neden olmuştur. Oksijen atmosferi altında sinterleme ve katkılamayla gelen fazlalık elektronları, hareketli hollerin hızla doldurulması beklenmektedir. Böylece örneklerin normal durum direnç değerinde bir artış ve süperiletkenlik geçiş sıcaklığı  $T_c$ ' de bir azalma oluşur. Bu çalışmada, hesaplanan boşluk konsantrasyonu artan Gd içeriği ve azalan  $T_c$  ile 0,147' den 0,094' e düşmektedir. Şekil 5.9 Gd eklenmesinin bir fonksiyonu olarak geçiş sıcaklığı ile boşluk konsantrasyonu değişimini göstermektedir. Şekil 5.9' dan görüldüğü gibi, Gd katkılı örnekler için  $T_c$  ve boşluk konsantrasyonu arasındaki ilişki paraboliktir. Böylece, Gd eklemesi boşluk konsantrasyonunu etkileyerek taşıyıcı yoğunluğunu azaltır. Kritik akım yoğunluğu ve SEM ölçümleri Gd eklenmiş örneklerin tanecikler arası bölgesinde zayıf bir bağlantı göstermiştir. Artan Gd eklenmesi ile örgü parametresi c azalır ve aynı zamanda örgü parametresi a biraz artar. Bu sonuç  $\text{CuO}_2$  tabakalarındaki boşluk konsantrasyonu azalışı ile ilişkilendirilebilir.



Şekil 5.9 Gd katkılı ve katkısız süperiletken örnekleri için geçiş sıcaklığına karşı taşıyıcı konsantrasyonu

## 5.2 X-Işını Kırınımı (XRD) Sonuçları

### 5.2.1 $Bi_{1,7-x}Pb_{0,3}Nb_xSr_2Ca_2Cu_3O_y$ Bileşiğinin XRD Sonuçları

$Bi_{1,7-x}Pb_{0,3}Nb_xSr_2Ca_2Cu_3O_y$  ( $x = 0,00, 0,05, 0,10, 0,15, 0,20$ ) süperiletken örneklerine ait süperiletken ve safsızlık fazlarını ve örgü parametrelerini belirlemek amacıyla, X-ışını kırınımı yöntemi kullanılmıştır. Bu deneysel yöntemin temeli Bragg yansımasına dayanır. Gönderilen x-ışını örnek üzerinden yansır (kırılır) ve bir detektör yardımıyla algılanan ışın yazılıma aktarılarak yansıma şiddetine karşılık  $2\theta$  değerinde grafiğe geçirilir.

Ölçümler için pellet halindeki örnekler, agat havanda homojen bir karışım elde edilinceye kadar öğütülerek toz haline getirilmiştir. XRD analizleri Rigaku D/Max-2200/PC X-ray difraktometresi ile  $CuK_{\alpha}$  ( $\lambda = 1,5418 \text{ \AA}$ ) ışınımı kullanılarak  $2\theta = 3-60^\circ$  aralığında yapılmıştır. X-ışını toz kırınım desenleri incelenerek örneklerde bulunan

düşük- $T_c$  (2212), yüksek- $T_c$  (2223) süperiletken fazları ve safsızlık fazları belirlenmiştir. Mevcut fazlar ICDD/PDF-2 kartları ile karşılaştırma yapılarak saptanmıştır.

$Bi_{1,7-x}Pb_{0,3}Nb_xSr_2Ca_2Cu_3O_y$  süperiletken örnekler için x-ışını kırınım desenleri şekil 5.10’ da verilmiştir. Örnekler düşük- $T_c$  (2212), yüksek- $T_c$  (2223) fazlarından ve küçük bir miktar  $Ca_2PbO_4$  fazından oluşmuştur.  $x= 0,20$  Nb katkılı süperiletken örnekte yüksek- $T_c$  (2223) süperiletken fazına ait pik şiddetlerinde artış gözlenmiştir. Nb katkılı örnekler için düşük- $T_c$  fazının karakteristik piki (L002)  $2\theta= 5,82^\circ$ ’de ve yüksek- $T_c$  fazının karakteristik piki (H002)  $2\theta= 4,98^\circ$ ’de görülmektedir.

Örneklerin XRD desenlerinden belirgin piklerin şiddetlerini kullanarak yüksek- $T_c$  (2223) fazı ve düşük- $T_c$  (2212) fazının hacim kesri hesaplanmıştır. Sırasıyla yüksek- $T_c$  fazının hacim kesri ve düşük- $T_c$  fazının hacim kesri

$$Bi - (2223)\% = \frac{\sum I(2223)}{\sum I(2223) + I(2212)} \times 100 \quad (5.7)$$

$$Bi - (2212)\% = \frac{\sum I(2212)}{\sum I(2223) + I(2212)} \times 100$$

kullanılarak belirlenmiştir. Burada  $I(2223)$  ve  $I(2212)$  sırasıyla yüksek- $T_c$  ve düşük- $T_c$  piklerinin şiddetini göstermektedir (Terzioğlu ve diğerleri, 2005). Katkısız örneğin Yüksek- $T_c$  fazının hacim kesri %49,46 ve düşük- $T_c$  fazının hacim kesri %50,54 olarak hesaplanmıştır. Hesaplanan yüksek- $T_c$  (2223) fazı ve düşük- $T_c$  (2212) fazının hacim kesri değerleri Tablo 5.7’ de verilmiştir. Nb4 örneğinde düşük- $T_c$  fazında azalma gözlenmiş ve yüksek- $T_c$  fazı sisteme hakim olmuştur. Sonuç olarak, XRD analizi sonucuna bakılarak  $x= 0,20$  Nb katkısıyla birlikte düşük sıcaklık fazından (2212) yüksek sıcaklık fazına (2223) doğru bir geçişin var olduğu söylenebilir.

Elde edilen kırınım desenlerinden ilgili düzlemlerin (hkl) Miller indisleri belirlenmiştir. X-ışını kırınım desenlerindeki indisler ve düzlemler arası mesafeler kullanılarak örgü parametreleri (a, b, c) hesaplanmıştır. Örgü parametreleri en küçük

kareler metodu kullanılarak ve bilgisayar programı yardımı ile hesaplanmıştır. X-powder bilgisayar programı ile yapılan analiz sonucunda katkısız örnek için yapıyı oluşturan fazlara ait birim hücre parametreleri, 2212 fazı için; a=5,397 Å b=5,397 Å c=30,807 Å ve 2223 fazı için; a=5,405 Å b=5,405 Å c=37,298 Å olarak bulunmuştur. Aynı program ile yapılan analiz sonucunda da birim hücre hacim parametresinin düşük sıcaklık fazı için 897,3342 Å<sup>3</sup> ve yüksek sıcaklık fazı için 1089,625 Å<sup>3</sup> olduğu bulunmuştur. Hazırlanan örneklerin kristal yapısı ortorombik olup birim hücre parametreleri tablo 5.6' da verilmiştir.

Ayrıca, hazırlanan süperiletken örneklerin X-ışını toz kırınım desenlerindeki piklerin genişliğinden de tanecik büyüklükleri Scherrer eşitliği kullanılarak (Barnard, 1967, Anis-ur-Rehman, 2009),

$$L = \frac{0,9\lambda}{t\cos\theta} \quad (5.8)$$

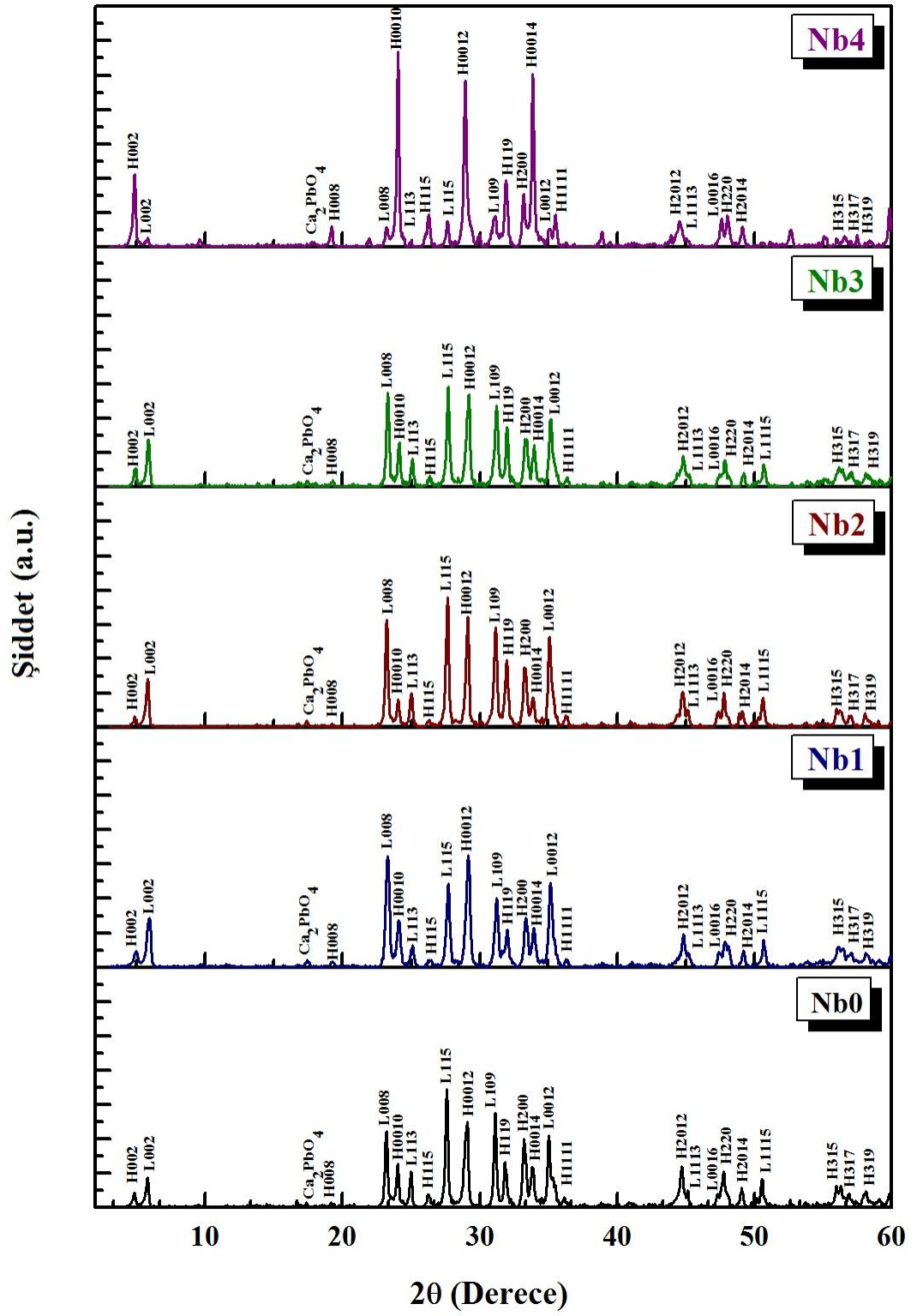
hesaplanmıştır. Burada L; Kristal büyüklüğü,  $\lambda$ ; kullanılan x-ışını kaynağının dalga boyu, t; x-ışını desenlerindeki piklerin yarı yükseklik pik genişliği (Full Width Half Maximum, FWHM) ve  $\theta$ ; pik açısıdır. Boyutsuz biçim faktörünün değeri yaklaşık 0,9' dur. Kristal büyüklükleri doğrudan kristalin kalitesi hakkında bilgi verir ve XRD ile elde edilen kırınım pikinin yarı yükseklik pik genişliği ile ters orantılıdır. Kırınım pikinin oldukça dar olması kristal büyüklüğünün büyük olmasını sağlayacaktır. Örneklerin tanecik boyutları Scherrer eşitliği kullanılarak 9,96 nm ve 30,16 nm arasında bulunmuştur.

Tablo 5.6 Nb0, Nb1, Nb2, Nb3 ve Nb4 örnekleri için örgü parametreleri

| x (Katki oranı) | Örgü Parametreleri (Bi-2223 fazı) |       |        |                    | Örgü Parametreleri (Bi-2212 fazı) |        |        |                    |
|-----------------|-----------------------------------|-------|--------|--------------------|-----------------------------------|--------|--------|--------------------|
|                 | a (Å)                             | b(Å)  | c (Å)  | V(Å <sup>3</sup> ) | a (Å)                             | b(Å)   | c (Å)  | V(Å <sup>3</sup> ) |
| <b>0,00</b>     | 5,405                             | 5,405 | 37,298 | 1089,625           | 5,3970                            | 5,3970 | 30,807 | 897,3342           |
| <b>0,05</b>     | 5,408                             | 5,408 | 37,015 | 1082,558           | 5,3946                            | 5,3895 | 30,649 | 891,0951           |
| <b>0,10</b>     | 5,399                             | 5,413 | 37,130 | 1085,116           | 5,3979                            | 5,3979 | 30,685 | 894,0788           |
| <b>0,15</b>     | 5,410                             | 5,410 | 37,129 | 1086,744           | 5,3946                            | 5,3895 | 30,649 | 891,0951           |
| <b>0,20</b>     | 5,400                             | 5,420 | 37,154 | 1087,423           | 5,3979                            | 5,3979 | 30,685 | 894,0788           |

Tablo 5.7 Nb0, Nb1, Nb2, Nb3 ve Nb4 örnekleri için Bi-2223, Bi-2212 fazlarının hacim kesirleri

| x (Katki oranı) | Hacim Kesri (%) |         |
|-----------------|-----------------|---------|
|                 | Bi-2223         | Bi-2212 |
| <b>0,00</b>     | 49,46           | 50,54   |
| <b>0,05</b>     | 48,30           | 51,70   |
| <b>0,10</b>     | 43,66           | 56,34   |
| <b>0,15</b>     | 48,81           | 51,19   |
| <b>0,20</b>     | 86,20           | 13,80   |



Şekil 5.10 Nb0, Nb1, Nb2, Nb3, Nb4 örneklerinin XRD desenleri

### 5.2.2 $Bi_{1,7-x}Pb_{0,3}Gd_xSr_2Ca_2Cu_3O_y$ Bileşiminin XRD Sonuçları

$Bi_{1,7-x}Pb_{0,3}Gd_xSr_2Ca_2Cu_3O_y$  süperiletken örneklerle ait x-ışını toz difraktometresi yardımıyla elde edilen XRD desenleri şekil 5.12’ de verilmiştir. XRD deseni analizi ile süperiletken örneklerin düşük- $T_c$ , yüksek- $T_c$  ve az miktarda  $Ca_2PbO_4$  safsızlık fazı içerdiği saptanmıştır. Şekil 5.12’ de kapalı halkalar (●), içi dolu kare (■), yıldızlar (\*) sırasıyla düşük- $T_c$ , yüksek- $T_c$  ve  $Ca_2PbO_4$  fazına işaret eder. Mevcut fazlar ICDD/PDF-2 kartları ile karşılaştırma yapılarak tespit edilmiştir. Ayrıca x-powder programı kullanılarak süperiletken örneklerle ait örgü parametreleri hesaplanmıştır.

Örneklerin XRD desenlerinden belirgin piklerin şiddetlerini kullanarak yüksek- $T_c$  (2223) fazı ve düşük- $T_c$  (2212) fazının hacim kesri hesaplanmıştır. Sırasıyla Yüksek- $T_c$  fazının hacim kesri ve düşük- $T_c$  fazının hacim kesri denklem (5.7) kullanarak belirlenmiştir. Burada I(2223) ve I(2212) sırasıyla yüksek- $T_c$  ve düşük- $T_c$  piklerinin şiddetini göstermektedir. Katkısız örneğin Yüksek- $T_c$  fazının hacim kesri %49,46 ve düşük- $T_c$  fazının hacim kesri %50,54 olarak hesaplanmıştır. Tablo 5.8’ de Gd0, Gd1, Gd2, Gd3, Gd4 örnekleri için hesaplanan Bi-2223, Bi-2212 fazlarının hacim kesirleri verilmiştir.

Gd katkılı örneklerle ait ilk düşük- $T_c$  fazı piki  $2\theta = 5,8^\circ$  de ve ilk yüksek- $T_c$  fazı  $2\theta = 4,88^\circ$  de görülmektedir. Katkı oranının artması ile birlikte yüksek- $T_c$  fazına ait pik gözlenmemiştir. Artan Gd eklenmesi ile Bi-2223 fazına karşılık gelen piklerin şiddetlerinin azaldığı ve Bi-2212 fazına karşılık gelen piklerin şiddetlerinin arttığı gözlenmiştir. Gd katkılı örneklerde yüksek- $T_c$  fazı yansımaları tamamen yok olmuştur ve yalnızca düşük- $T_c$  fazına ait olanlar kalmıştır. Katkısız ve Gd katkılı örneklerle ait hacim kesirleri tablo 5.8’ de özetlenmiştir. Tablodan da görüldüğü üzere,  $x=0,05$  Gd katkılı örneğinin, Bi-2223 fazının hacim kesri azalmıştır ve Bi-2212 fazının ise artmıştır. Katkı oranının artması ile birlikte Bi-2223 fazına ait pikler yok olmuş ve Bi-2212 fazına ait pikler artmıştır. Bu sonuç Gd eklenmesinin Bi-2212 fazının gelişmesine destek olduğunu gösterir. Örneğe Gd eklenmesi yüksek- $T_c$  Bi-2223 fazının oluşumunu olumsuz etkilemiştir.

a, b ve c örgü parametreleri Bi-2223 ve Bi-2212 fazları için d değerleri ve (hkl) parametrelerini kullanarak hesaplanmıştır ve tablo 5.8’ de sınıflandırılmıştır. Bu hesaplamalar en küçük kareler metodu ve XRD ölçümlerinden çıkarılan veri kullanılarak yapılmıştır. Gd katkısının artmasıyla, c örgü parametresinde bir düşüş, a örgü parametresinde küçük bir artış gözlenmiştir. Gd katkılı örnekler (Gd1-Gd4) katkısız örnek (Gd0) ile karşılaştırıldığında, daha küçük bir c örgü parametresi, daha düşük yoğunlukta XRD pikleri ve yüksek- $T_c$  fazının yokluğu ortaya çıkmıştır. Bu sonuçlar daha önceki bazı çalışmalarla uyumludur. (Terzioğlu ve diğerleri, 2008, Aydın, Cakiroglu, Nursoy ve Terzioğlu, 2009).  $Gd^{3+}$  (0,97 Å) iyonik yarıçapı  $Ca^{2+}$  (0,99 Å),  $Sr^{2+}$  (1,12 Å) ve  $Bi^{3+}$  (0,96 Å) iyonlarınınki ile karşılaştırıldığında,  $Gd^{3+}$  iyonları yukarıdakilerin herhangi birinin yerine geçebilir. Ancak  $Gd^{3+}$  yerine  $Bi^{3+}$  yer değiştirilmesi süperiletken özelliklerde güçlü bir değişime neden olmaz. Artan Gd eklenmeleri ile, XRD piklerinin şiddeti konumları daha geniş açılara değişerek azalır.

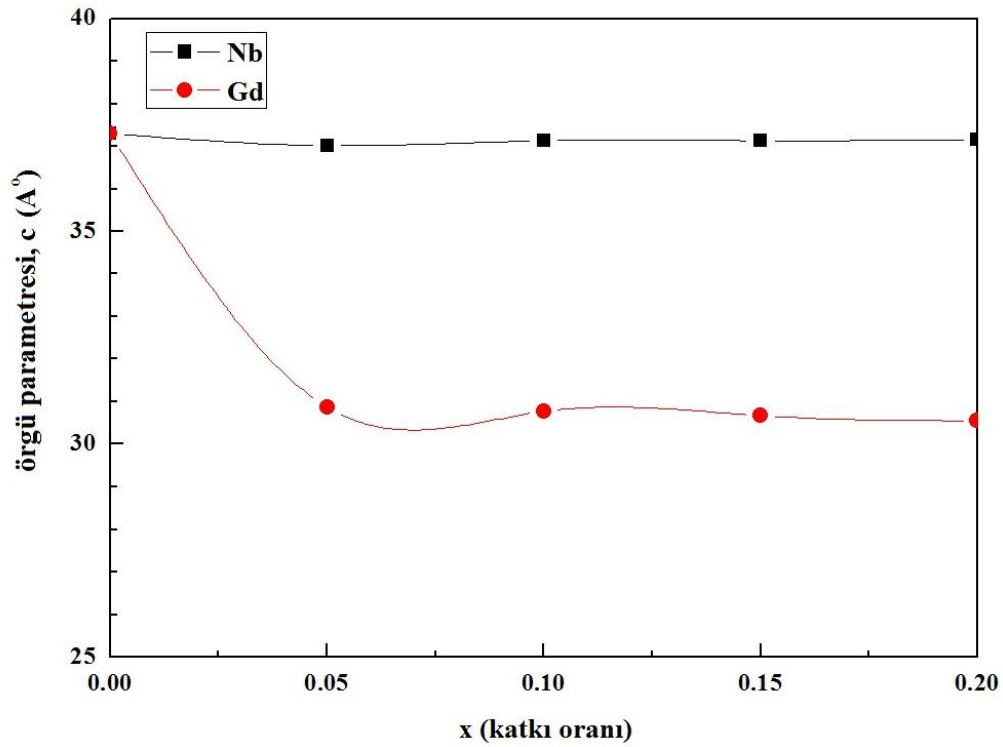
Gd katkısının artmasıyla (2223) fazında azalma gözlenmiş ve düşük sıcaklık fazı sisteme hakim olmuştur. Sonuçlar göstermiştir ki Bi yerine yapılan Gd katkısı boşluk konsantrasyonunun azalmasıyla 2223 fazında ve süperiletkenlik özelliklerinde azalmaya sebep olmuştur. Sonuç olarak, XRD analizi sonucuna bakılarak Gd katkısıyla birlikte yüksek sıcaklık fazından (2223) düşük sıcaklık fazına (2212) doğru bir geçişin var olduğu söylenebilir.

Ayrıca, hazırlanan süperiletken örneklerin X-ışını toz kırınım desenlerindeki piklerin genişliğinden de tanecik büyüklükleri Scherrer eşitliği kullanılarak, denklem (5.8)’ den hesaplanmıştır. Burada L; Kristal büyüklüğü,  $\lambda$ ; kullanılan x-ışını kaynağının dalga boyu, t; x-ışını desenlerindeki piklerin yarı yükseklik pik genişliği (Full Width Half Maximum, FWHM) ve  $\theta$ ; pik açısıdır. Boyutsuz biçim faktörünün değeri yaklaşık 0,9’ dur. Scherrer formülü X-ışını kırınım deseninden yararlanarak parçacıkların büyüklüklerinin bulunmasını sağlar. X-ışını alınacak bir örnekteki parçacıkların boyutları ne kadar küçülürse, X-ışını kırınım desenindeki piklerde de buna bağlı olarak bir genişleme söz konusu olur. Scherrer formülünden hesapladığımız parçacık büyüklüğü ile SEM ölçümlerinden elde edilen ortalama parçacık büyüklüğünün uyumlu olması beklenir. Formülde görüldüğü gibi pik yarı

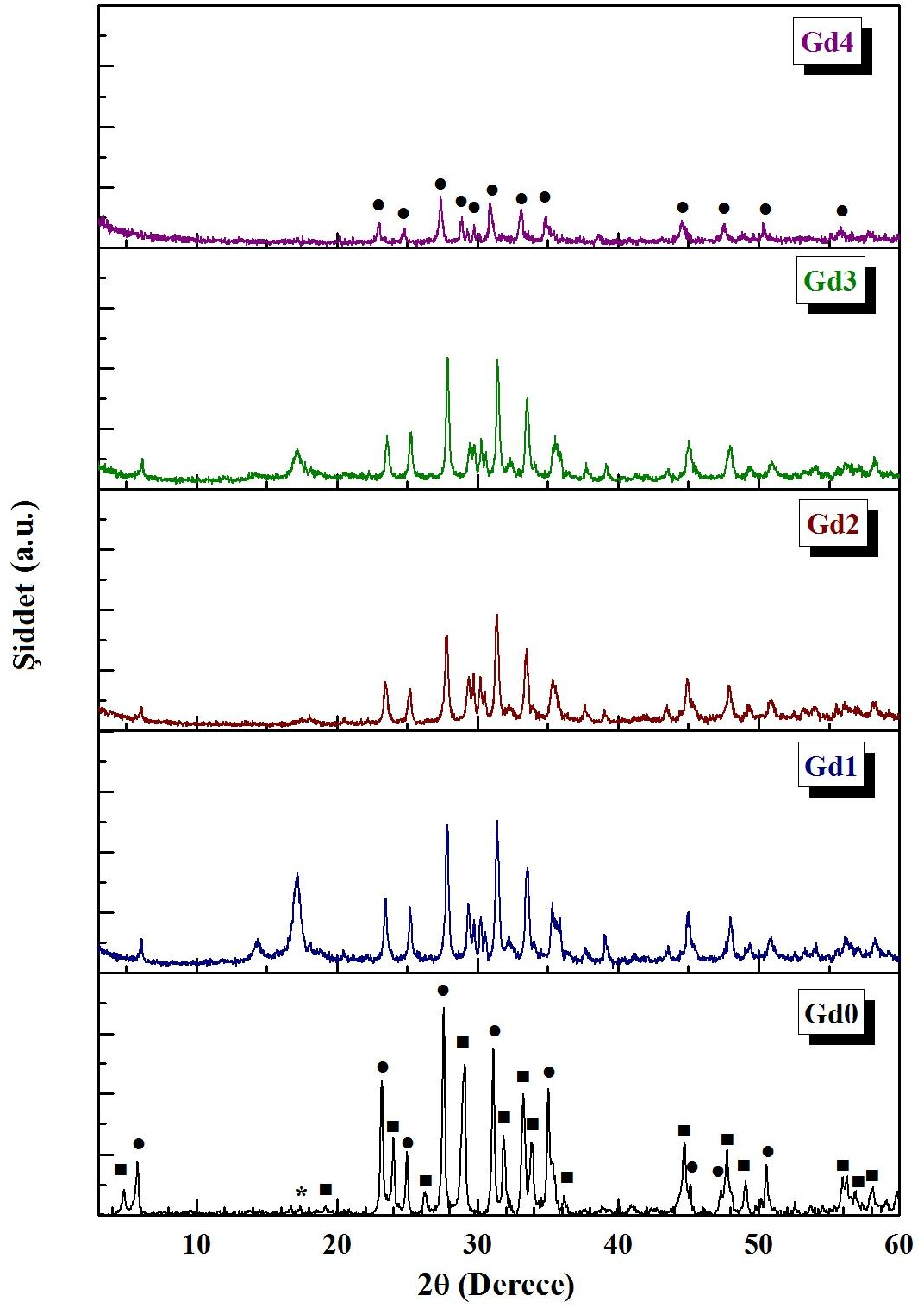
geniřlięi arttıķa paracıkların da boyutları t ile ters orantılı olarak azalmaktadır. Kristal büyüklükleri doğrudan kristalin kalitesi hakkında bilgi verir ve XRD ile elde edilen kırınım pikinin yarı yükseklik pik genişlięi ile ters orantılıdır. Kırınım pikinin oldukça dar olması kristal büyüklüğünün büyük olmasını sağlayacaktır ve bu durumda kristalin kaliteli bir yapıya sahip olduğunu göstermektedir. Örneklerin tanecik boyutları Scherrer eřitlięi kullanılarak 25 nm ve 35 nm arasında bulunmuřtur.

Tablo 5.8 Gd0, Gd1, Gd2, Gd3, Gd4 örnekleri için örgü parametreleri ve Bi-2223, Bi-2212 fazlarının hacim kesirleri

| x<br>(Katkı oranı) | Örgü Parametreleri |       |        |          | Hacim Kesri (%) |         |
|--------------------|--------------------|-------|--------|----------|-----------------|---------|
|                    | a (Å°)             | b(Å°) | c (Å°) | V(Å°³)   | Bi-2223         | Bi-2212 |
| 0,00               | 5,405              | 5,405 | 37,298 | 1089,625 | 49,46           | 50,54   |
| 0,05               | 5,408              | 5,413 | 30,871 | 903,702  | 25,32           | 74,68   |
| 0,10               | 5,407              | 5,412 | 30,771 | 901,275  | -               | 100     |
| 0,15               | 5,405              | 5,405 | 30,670 | 896,060  | -               | 100     |
| 0,20               | 5,408              | 5,408 | 30,550 | 890,340  | -               | 100     |



Şekil 5.11 Örgü parametresi, c' nin katkı oranı x ile deęiřimi



Şekil 5.12 Gd0, Gd1, Gd2, Gd3, Gd4 örneklerinin XRD desenleri

### 5.3 Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM) Sonuçları

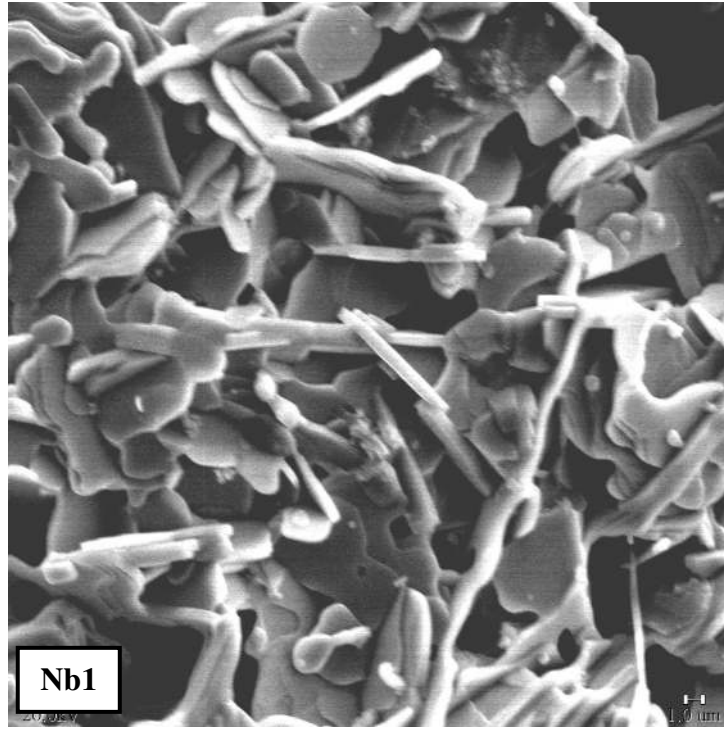
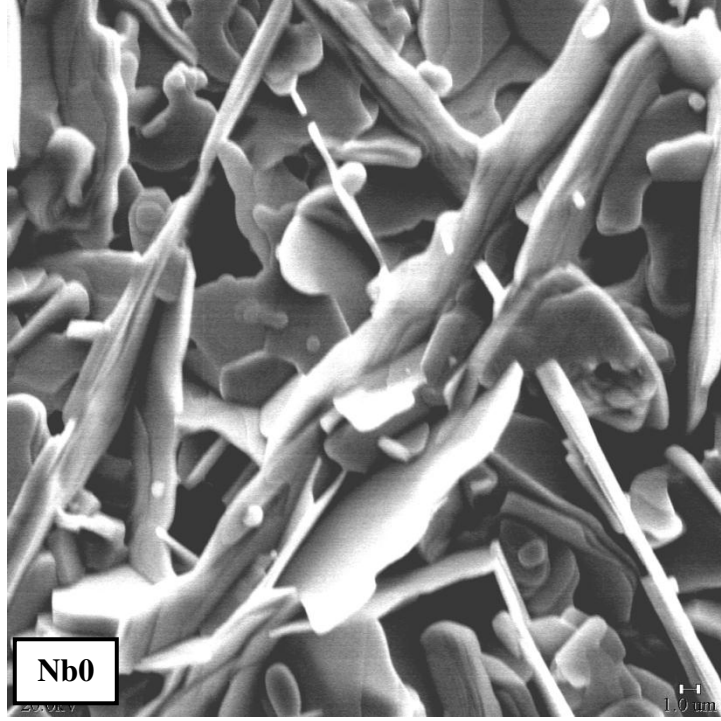
#### 5.3.1 $Bi_{1,7-x}Pb_{0,3}Nb_xSr_2Ca_2Cu_3O_y$ Bileşiğinin SEM Sonuçları

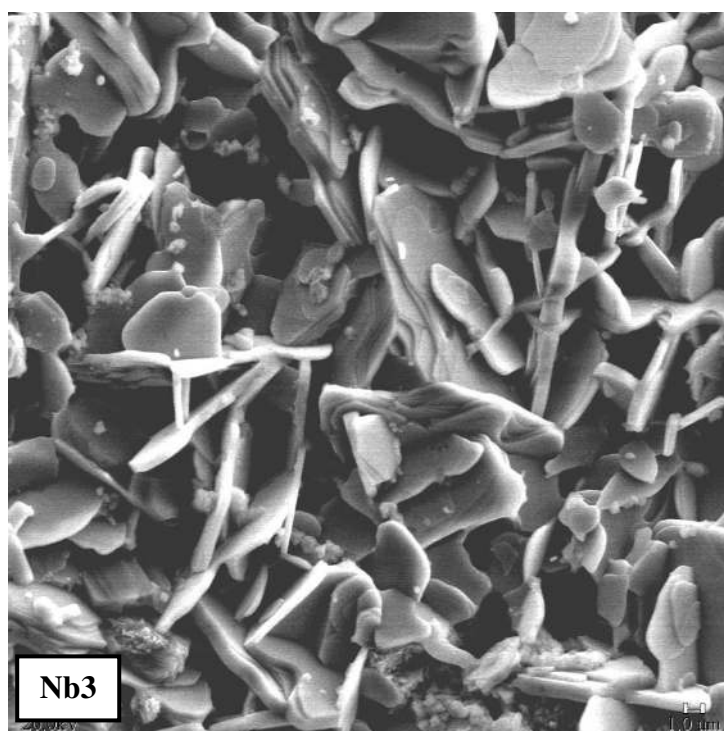
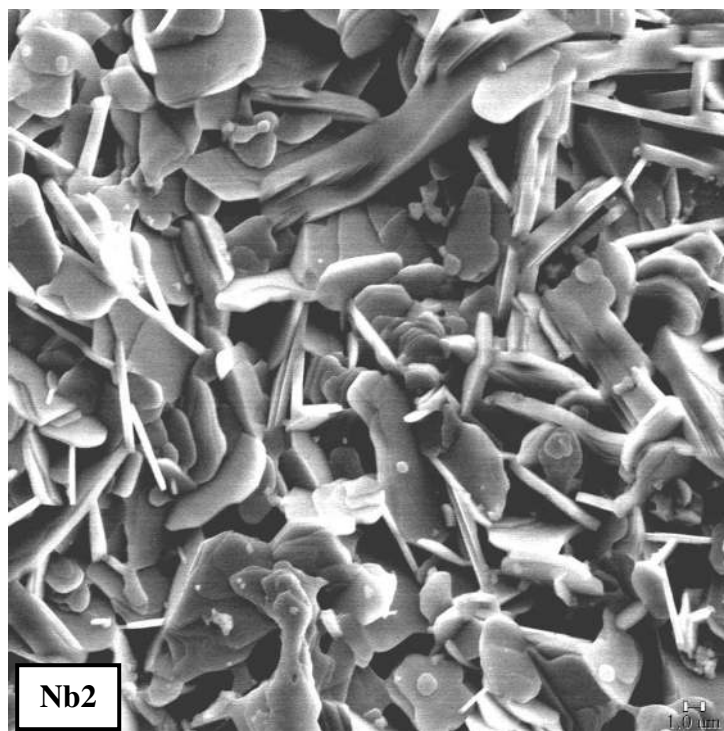
Taramalı Elektron Mikroskobunda (SEM) görüntü, yüksek voltaj ile hızlandırılmış elektronların malzeme üzerinde odaklanması, bu elektron demetinin malzeme yüzeyinde taratılması sonucunda meydana gelen etkilerin uygun algılayıcılarda toplanması ve sinyal güçlendiricilerinden geçirildikten sonra bir katot ışınları tüpünün ekranına aktarılmasıyla elde edilir. Daha gelişmiş SEM cihazlarında bu algılayıcılardan gelen sinyaller dijital sinyallere dönüştürülüp bir bilgisayar monitörüne verilebilmektedir.

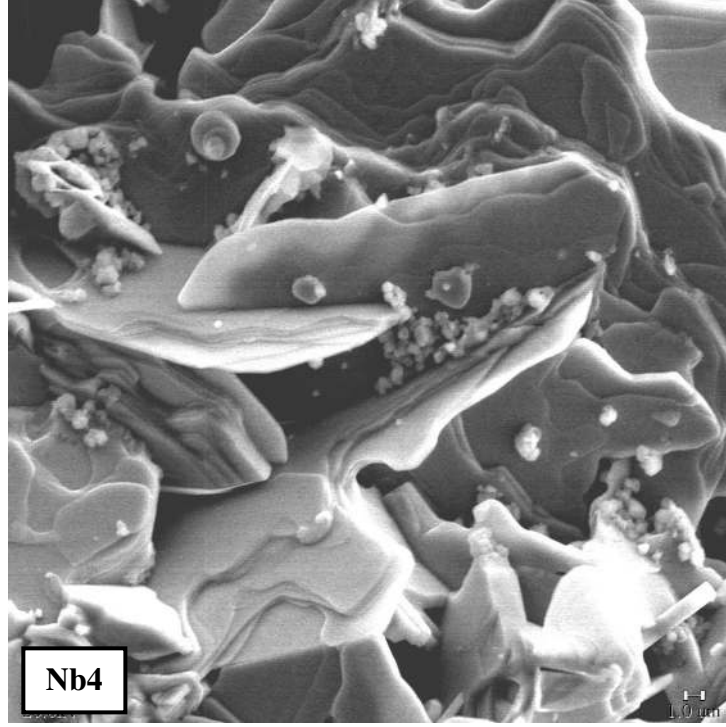
Bu bölümde, SEM (Taramalı Elektron Mikroskop) görüntülerinden tanecik büyüklükleri, tanecik yönelimleri, tanecik sınırları, tanecikler arası boşluklar incelenerek Nb katkısının seramik yapı üzerindeki etkileri incelenmiştir. Mikroskobik ölçümler materyallerde ısıtma işlemleri süresince meydana gelen değişiklikler hakkında (kristal büyümesi, kristal yapısı gibi) bize ayrıntılı bilgiler sağlamaktadır.

$Bi_{1,7-x}Pb_{0,3}Nb_xSr_2Ca_2Cu_3O_y$  (0,00, 0,05, 0,10, 0,15, 0,20) süperiletken örneklerin x2000 büyütme ile çekilen yüzey fotoğrafları (SEM) sırasıyla şekil 5.13' de verilmiştir.  $Bi_{1,7-x}Pb_{0,3}Nb_xSr_2Ca_2Cu_3O_y$  süperiletken örnekler için SEM fotoğraflarında yapının tabakalı biçimde olduğu açıkça görülmektedir. Bu tip yapılanma BSCCO sisteminin genel yapısıdır. x= 0,00–0,20 Nb katkısı ile hazırlanan örneklerin rasgele yönelmiş taneciklerden oluştuğu ve tanecik sınırlarının birbirleri ile zayıf bağlar oluşturacak şekilde temas halinde olduğu görülmektedir. Katkısız örnek, homojen ve az miktarda poroziteye (gözeneklilik) sahiptir. Nb0, Nb1, Nb2, Nb3, Nb4 örneklerine baktığımızda katkı oranı arttıkça porozitenin azaldığı görülmektedir. Porozitelerin azalmış olması tanecikler arası bağlantıların iyileştiğinin belirtisidir. x=0,20 katkılı örnekte tabaka şeklinde yapılar yanında bazı bölgelerde erime olmuştur. Erimenin olması kristalleşmeyi önlemiş olabilir. x=0,05 katkılı

örneğin tanecik boyutu diğer örneklere göre daha küçüktür ve tanecikler arası boşluklar diğer örneklere göre daha fazladır.







Şekil 5.13  $\text{Bi}_{1,7-x}\text{Pb}_{0,3}\text{Nb}_x\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  örneklerine ait SEM fotoğrafları (x2000)

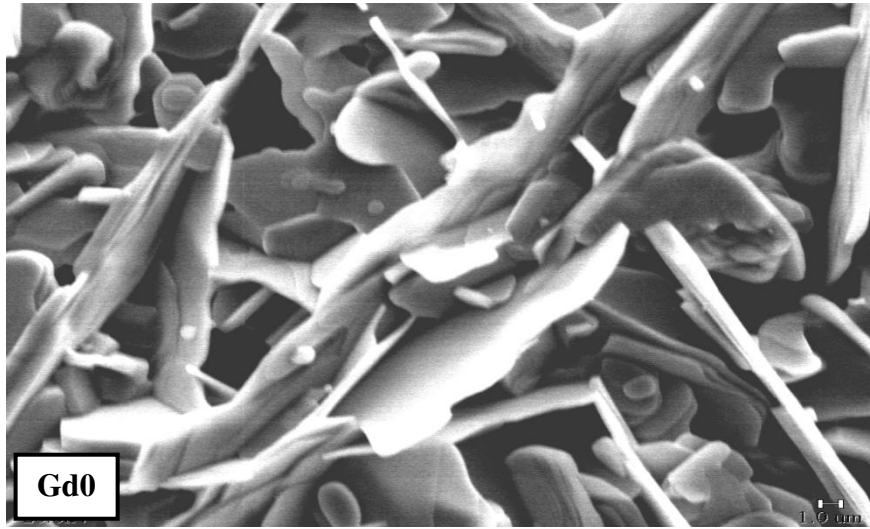
### 5.3.2 $\text{Bi}_{1,7-x}\text{Pb}_{0,3}\text{Gd}_x\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ Bileşiğinin SEM Sonuçları

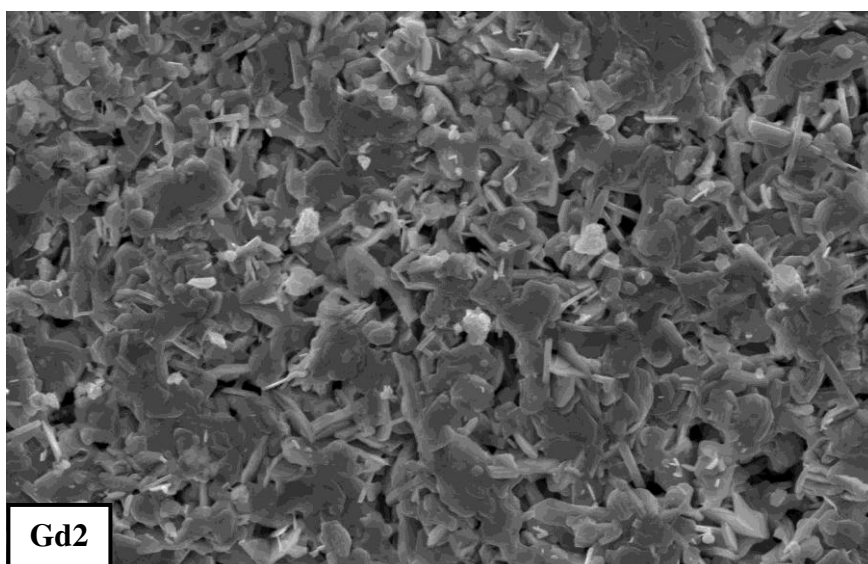
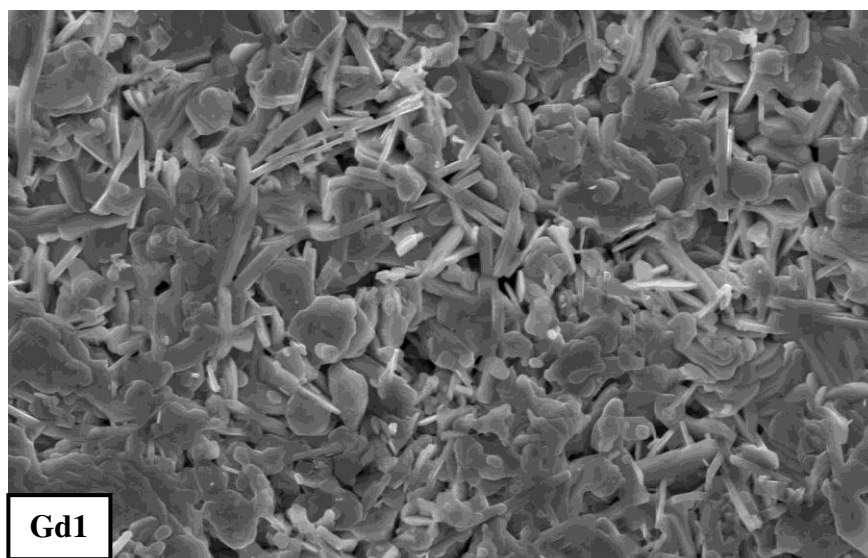
$\text{Bi}_{1,7-x}\text{Pb}_{0,3}\text{Gd}_x\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  (0,00, 0,05, 0,10, 0,15, 0,20) süperiletken örneklerinin yüzey morfolojisi SEM ile incelenmiştir. Şekil 5.14’ de  $\text{Bi}_{1,7-x}\text{Pb}_{0,3}\text{Gd}_x\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  örneklerine ait SEM fotoğrafları görülmektedir. SEM çalışması süperiletken örneklerin kesit alanından x2000 defa büyütme ile elde edilmiştir. Fotoğraftaki ölçekleme ise 10  $\mu\text{m}$ ’ dir.

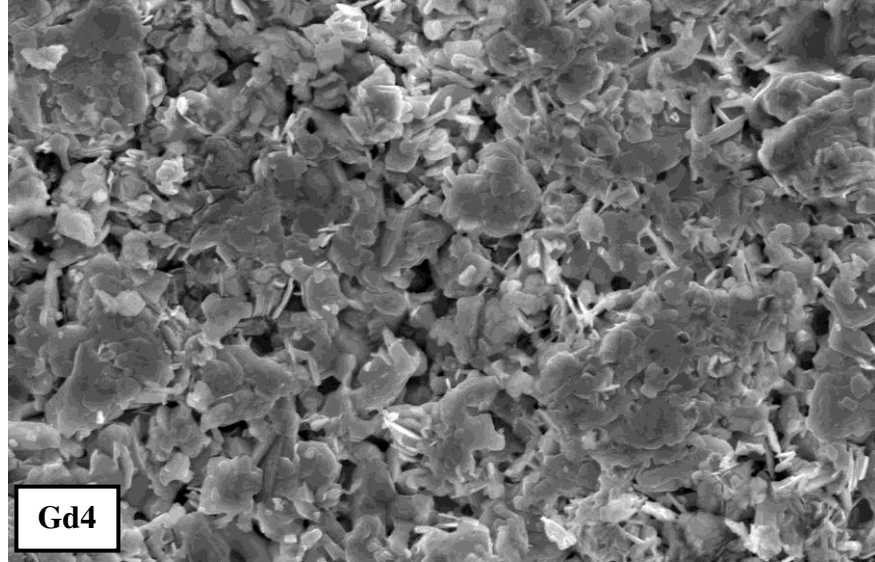
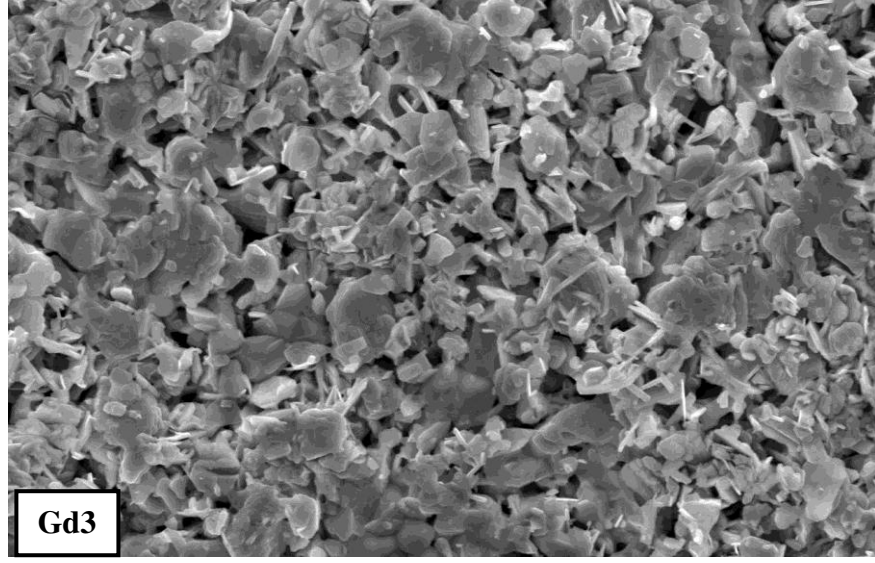
Gd katkılı ve katkısız süperiletken örneklere ait SEM fotoğraflarında yapının tabakalı biçimde olduğu açıkça görülmektedir. Bu tip yapılanma BSCCO sisteminin genel yapısıdır. Tüm örneklerin tanecikli yapıda ve homojen bir tanecik dağılımına sahip olduğunu söyleyebiliriz. Katkısız örneğin daha homojen, yoğun ve az poroziteye sahip olduğu, süperiletkenlik özelliklerinin daha iyi olduğu görülmektedir. Katkılı örnekte ise homojenliğin biraz bozulduğu ve bazı tanelerin büyüdüğü görülmektedir. Artan Gd katkısı ile tanecik bağlanabilirliğinin bozulduğu gözlenmiştir. Gd0 örneğinin yüzeyi taneciklerin daha iyi dizilimi ile daha düzgündür.

Daha yüksek miktarda Gd eklenen örneklerin tanecik boyutu daha küçüktür. Gd4 örneğinde kısmi erime işaretleri ve boşluklar vardır.

Bu sonuçlar örneğin yüzey morfolojisinin artan Gd eklenmesi ile bozulduğuna işaret eder. Gd katkılı örneklerin, katkısız örneklere göre daha fazla porozite içerdiği ve yer yer boşlukların varlığı görülmektedir. Ayrıca, katkılama ile birlikte örneklerin homojenliğinin giderek azaldığı, bunun yanı sıra bazı tanelerde büyüme olduğu göze çarpmaktadır. Yer yer oluşan siyah boşlukların süperiletken olmayan bölgeler olarak değerlendirildiği ve bunların tanecikler arasındaki bağlantıların kesilmesi sonucu oluştuğu düşünülmektedir. Boşlukların artmış olması tanecikler arası bağlantıların zayıflamasının belirtisidir. Gd konsantrasyonunun artmasıyla porozitelerin hacminde artma olmuştur. Bu nedenden dolayı Gd1, Gd2, Gd3 ve Gd4 örneklerinde düşük sıcaklık fazı baskındır.







Şekil 5.14  $\text{Bi}_{1,7-x}\text{Pb}_{0,3}\text{Gd}_x\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  örneklerine ait SEM fotoğrafları (x2000)

#### 5.4 Yoğunluk Ölçüm Sonuçları

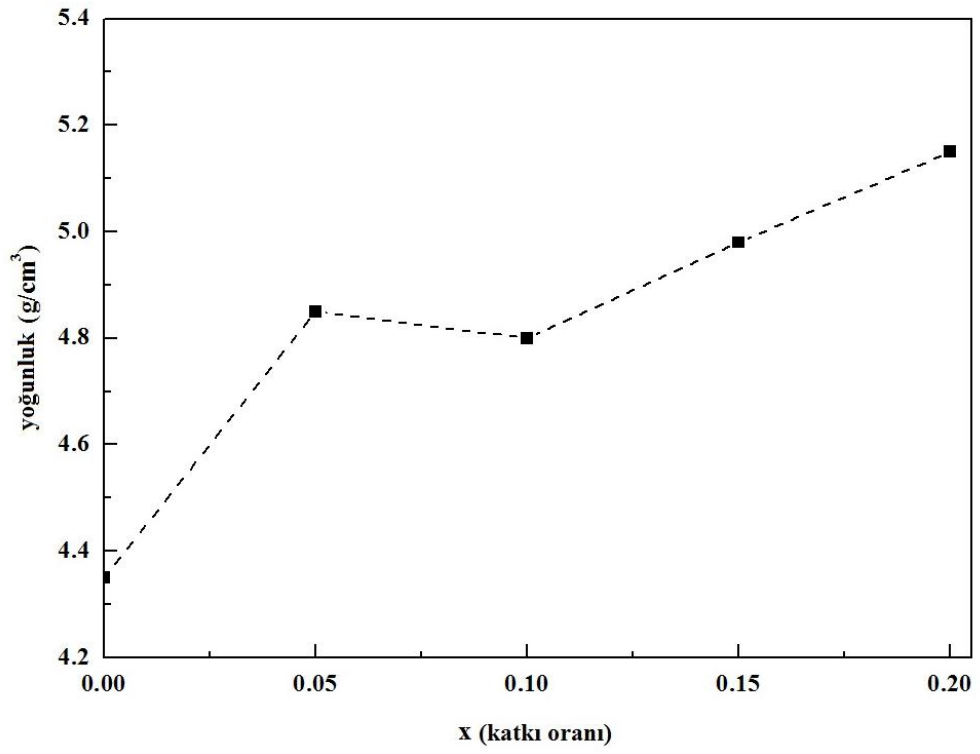
Nb ve Gd katkılı süperiletken örneklerin yoğunluklarını, Arsimed prensibinden, saf sudaki ve hava ortamdaki ağırlık farkına göre belirledi. Bu yöntemle örneğin yoğunluğu

$$\rho = \frac{W(h)[\rho(s) - \rho(h)]}{0,99983[W(s) - W(h)]} + \rho(h) \quad (5.8)$$

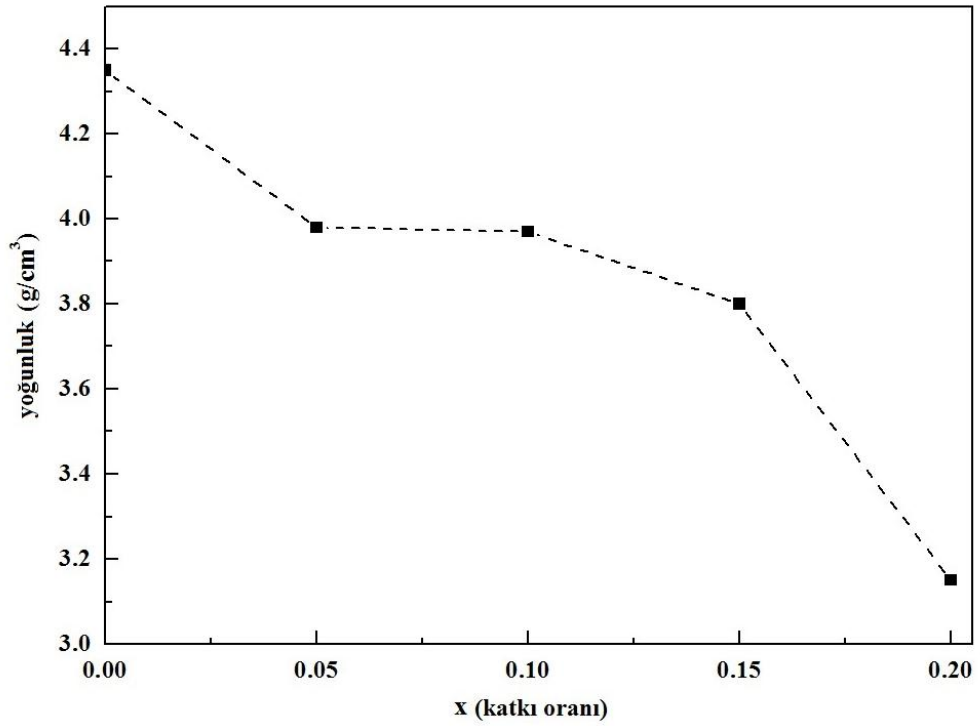
eşitliği kullanılarak hesaplandı (Verma, Rawat, Ganesan, Phase ve Das, 2012). Pb katkılı BSCCO pelletlerinin teorik yoğunluğu 6,45 g/cm<sup>3</sup>' dür (Kocabaş, Özkan, Bilgili, Kadioğlu ve Yılmaz, 2010, Bilgili, Selamet ve Kocabaş, 2008, Kocabaş ve Çiftçioğlu, 2000).

Bu çalışmada Arsimed yöntemi kullanılarak yapılan yoğunluk ölçümlerinde katkısız örneğin yoğunluğu 4,35 g/cm<sup>3</sup> olmak üzere, Nb katkılı örneklerinin yoğunlukları sırasıyla 4,85 g/cm<sup>3</sup>, 4,80 g/cm<sup>3</sup>, 4,98 g/cm<sup>3</sup>, 5,15 g/cm<sup>3</sup> olarak belirlendi. Şekil 5.15 yoğunluğun x katkı oranına göre değişimi gösterilmektedir. Gd katkılı örneklerinin yoğunlukları ise sırasıyla 3,98 g/cm<sup>3</sup>, 3,97 g/cm<sup>3</sup>, 3,80 g/cm<sup>3</sup>, 3,15 g/cm<sup>3</sup> olarak belirlendi (Şekil 5.16).

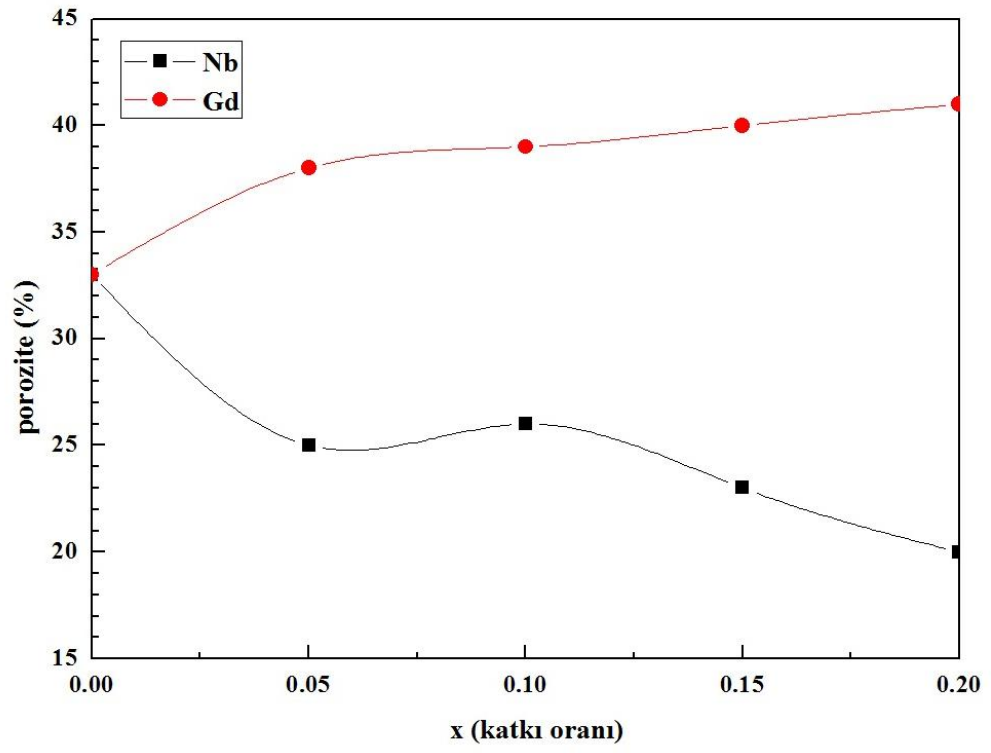
Nb0, Nb1, Nb2, Nb3, Nb4 örneklerinin poroziteleri sırasıyla, %33, %25, %26, %23, %20 ve Gd0, Gd1, Gd2, Gd3 ve Gd4 örneklerinin poroziteleri sırasıyla %33, %38, %39, %40, %41 olarak belirlendi. Şekil 5.17' de porozitenin katkı oranına göre değişimi gösterilmiştir. Nb katkılı örneklerde katkı miktarının artması ile birlikte porozite azalmıştır. Gözenekli yapının göstergesi olan porozitenin azalması, tanecikler arası bağların geliştiği anlamına gelmektedir. Gd katkılı örneklerde ise porozitenin artması ile tanecikler arası bağlar azalmıştır.



Şekil 5.15  $\text{Bi}_{1,7-x}\text{Pb}_{0,3}\text{Nb}_x\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  örneklerinde yoğunluğun x katkı oranına göre değişimi



Şekil 5.16  $\text{Bi}_{1,7-x}\text{Pb}_{0,3}\text{Gd}_x\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  örneklerinde yoğunluğun x katkı oranına göre değişimi



Şekil 5.17 Porozitenin x katkı oranına göre değişimi

## BÖLÜM ALTI

### SONUÇLAR

Bu çalışmada  $\text{Bi}_{1,7}\text{Pb}_{0,3}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  süperiletken bileşiğine Nb ve Gd katkısının süperiletkenlik, yapısal ve manyetik özellikleri üzerine etkisi incelenmiştir. Katıhal Reaksiyon Yöntemi ile hazırlanan  $\text{Bi}_{1,7-x}\text{Pb}_{0,3}\text{Nb}_x\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  ve  $\text{Bi}_{1,7-x}\text{Pb}_{0,3}\text{Gd}_x\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  süperiletken örneklerinin yapısal ve manyetik özelliklerini araştırmak amacıyla X-Işını Kırınımı (XRD), Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM), manyetik alınganlık ve yoğunluk ölçümleri yapılmıştır.

Katkısız, Nb ve Gd katkılı süperiletken örneklerin ac alınganlık ölçümlerinden süperiletken geçişin başladığı sıcaklık değeri tespit edilmiştir.  $T_p$  pik sıcaklığı ve tanecikler arası kritik akım yoğunlukları  $J_c$  teorik olarak kritik durum modelleri ve ac alınganlık grafiklerinden hesaplanmıştır. Taşıyıcı konsantrasyonu (boşluk sayısı)  $p$ , ac alınganlık ölçümlerinden elde edilen verilerden yararlanarak hesaplanmıştır. Taramalı elektron mikroskobu (SEM) fotoğrafları ile örneklerin mikro yapıları, tanecik boyutları ve tanecik yönelimleri incelenmiştir. Yapıdaki süperiletken ve diğer fazlar XRD desenleri yardımıyla belirlenmiştir. Ayrıca, hazırlanan süperiletken örneklerin X-ışını toz kırınım desenlerindeki piklerin genişliğinden de tanecik büyüklükleri Scherrer eşitliği kullanılarak hesaplanmıştır.

$\text{Bi}_{1,7-x}\text{Pb}_{0,3}\text{Nb}_x\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  süperiletkenleri  $x = 0,00$ ' dan  $0,20$ ' ye değişen Nb konsantrasyonları ile hazırlanmıştır. Nb eklenmesinin yüksek- $T_c$  2223 faz oluşumunu arttırdığı ve kritik parametreler  $T_c$  ve  $J_c$ ' yi geliştirdiği gözlenmiştir. Nb4 örneği için, tanecikler arası geçiş diğer örneklerle kıyasla daha keskindir ve tanecikler arası eşleşmesi daha iyidir. 2223 fazının hacim kesri,  $x=0,20$  Nb konsantrasyonu ile % 86,20' ye ulaşmıştır. Hem ac alınganlık hem de diğer ölçümler optimum Nb konsantrasyonun  $x=0,20$  olduğunu göstermiştir. Ayrıca Nb katkısının BSCCO sistemlerinin daha iyi süperiletken özellikleri ile sonuçlanan tanecikler arası bağı geliştirdiği gözlenmiştir. SEM fotoğraflarından katkı miktarı arttıkça porozitenin azaldığı ve tanecikler arası bağlantıların iyileştiği görülmektedir. Yoğunluk ölçümleri de SEM sonuçlarını desteklemektedir.

Benzer şekilde Nasu ve arkadaşları (1990)  $\text{Bi}_{1,6-x}\text{Nb}_x\text{Pb}_{0,4}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_8$  süperiletken örneğinde Nb katkısı  $x=0,2$  ye kadar arttırıldığında kritik başlangıç sıcaklığının 89 K' den 102 K' e yükseldiğini ve 2223 fazının hacim kesrinin arttığını gözlemlemişlerdir. Sözeri ve arkadaşlarının (2007) yaptığı çalışmada Nb konsantrasyonu arttıkça örneklerin yüksek- $T_c$  (2223) fazı hacim kesrinin arttığı, düşük- $T_c$  (2212) fazı hacim kesrinin azaldığı rapor edilmiştir. Katkı konsantrasyonu  $x=0,05$  den 0,10' a kadar arttırıldığında yaklaşık tek 2223 fazı örneği (%96) elde edilmiştir. Hazırlanan süperiletken örneklerin yapısal, manyetik ve fiziksel özelliklerinin Nb katkısının aynı miktarı için bile, başlangıç bileşiği, sinterleme sıcaklığı, ısı uygulamasının süresi değişikçe kayda değer ölçüde değiştiği gözlenmiştir.

Katıhal reaksiyon yöntemi ile hazırlanan süperiletken örnekler Gd katkısının deneysel sonuçları Gd katkısının Bi-2212 faz gelişimine yardımcı olduğunu, taneciklerin eşleşmesini zayıflatabileceğini ve bunun örneklerin mikroyapı ve süperiletkenlik özelliklerinde bozulmaya neden olacağını ortaya çıkarmıştır. Süperiletkenlik özelliklerin bozulması hem azalan yüksek- $T_c$  fazı yüzdesi hem de Gd iyonlarının varlığından ötürü tanecik sınırlarının elektronik özelliklerinin değişimi ile ilişkilendirilebilir. Sonuçlar örneklerin süperiletken özelliklerinin artan Gd katkısı ile azaldığını göstermektedir. Alınanlık sıcaklık eğrilerinden elde ettiğimiz  $T_c$  değerlerinin azalması,  $\text{CuO}_2$  düzlemlerinde boşluk konsantrasyonunun azalmasına neden olmuş olabilir. Bir başka deyişle, sonuçlar Bi yerine Gd katkılanmasının  $\text{CuO}_2$  düzlemlerinde yük dengesini değiştirdiğini göstermektedir. Artan Gd katkısı ile düşük sıcaklık fazı sisteme hakim olmuştur. Gd katkısıyla birlikte belli bir katkılama oranına kadar yüksek sıcaklık fazının sistemdeki hakimiyetini sürdürdüğü, artan katkı miktarı ile birlikte yerini düşük sıcaklık fazına (2212) bıraktığı söylenebilir. Artan katkı ile birlikte c örgü parametresinin azaldığı belirlenmiştir. SEM fotoğraflarından katkı miktarı arttıkça porozitenin arttığı, homojenliğin bozulduğu görülmüştür. Yoğunluk ölçümleri de Gd katkılı örneklerde artan katkı oranı ile porozitenin arttığını göstermektedir.

Terzioğlu ve arkadaşlarının (2008) yaptığı çalışmada da katıhal reaksiyon yöntemi ile hazırlanan  $\text{Bi}_{1.8}\text{Pb}_{0.35}\text{Sr}_{1.9}\text{Ca}_{2.1}\text{Cu}_3\text{Gd}_x\text{O}_y$  süperiletken örnekleri katkısız örnek ile karşılaştırıldığında, Bi-2212 fazının hacim kesrinin arttığı, c örgü parametresinin azaldığı, oda sıcaklığı direncinin arttığı ve geçiş sıcaklığının 105 K' den 42 K' e düştüğü gözlenmiştir. Aydın ve arkadaşlarının (2009) yaptığı çalışmada  $\text{Bi}_{1.8}\text{Pb}_{0.35}\text{Sr}_{1.9}\text{Ca}_{2.1}\text{Cu}_3\text{Gd}_x\text{O}_y$  süperiletken örneklerine Gd katkısının Bi-2223 fazı hacim kesrini azalttığı, Bi-2212 fazı hacim kesrini arttırdığı, süperiletken ve mekanik özellikleri bozduğu gözlenmiştir. Süperiletken özelliklerin tanecikler arasındaki bağlantıların azalması ile, mekanik özelliklerin ise boşluklardaki artış ile bozulduğu belirtilmiştir.

Bu çalışmanın sonucunda, Nb katkısının yapısal, manyetik ve süperiletken özellikleri olumlu etkilediği, Gd katkısının ise olumsuz etkilediği gözlenmiştir. Tüm bu sonuçlar BPSCCO sistemine yabancı element katkısının yüksek- $T_c$  ve düşük- $T_c$  fazlarının oluşumunu etkileyerek yapısal değişikliklere neden olduğunu ve diyamanyetik geçiş sıcaklığı gibi süperiletkenlik özelliklerini değiştirdiğini ortaya koymaktadır. Sonuç olarak, katkılama örneklerin geçiş sıcaklığı, pik sıcaklığı, kritik akım yoğunlukları, yüzey morfolojisi ve tanecik bağlanabilirliği üzerinde önemli bir etkiye sahiptir. Bu çalışma Nb ve Gd eklenmesinin BSCCO süperiletkeninin manyetik ve yapısal özellikleri üzerindeki açık etkisini raporlamaktadır.

## KAYNAKLAR

- Abrikosov, A. A. (1957). On the magnetic properties of superconductors of the second group. *Soviet Physics Journal of Experimental and Theoretical Physics*, 5, 1174.
- Abd-Shukor, R. (2009). *High temperature superconductors: Materials, Mechanisms and Applications*. Malaysia: Academy of Sciences.
- Anis-ur-Rehman, M. (2009). Thermal and electrothermal characterization of bismuth based high- $T_c$  superconductors. *Journal of Alloys and Compounds*, 469, 66–72.
- Askerzade, İ. (2005). *Süperiletkenlik fiziğine giriş*. Ankara: Gazi Kitabevi.
- Aydin, H., Cakiroglu, O., Nursoy, M., ve Terzioglu, C. (2009). Mechanical and superconducting properties of the  $\text{Bi}_{1.8}\text{Pb}_{0.35}\text{Sr}_{1.9}\text{Ca}_{2.1}\text{Cu}_3\text{Gd}_x\text{O}_y$  system. *Chinese Journal of Physics*, 47, 2.
- Barnard, B., D. (1967). *Elements of X-ray diffraction* (3th ed.). London: Addison-Wesley Publishing Company Inc.
- Bean, C. P. (1962). Magnetization of hard superconductors. *Physical Review Letters*, 8, 250.
- Bean, C. P. (1964). Magnetization of high-field superconductors. *Reviews of Modern Physics*, 36, 31.
- Biju, A., Aloysius, R. P., ve Syamaprasad, U. (2005). Enhanced critical current density in Gd-added (Bi, Pb)-2212 bulk superconductor. *Superconductor Science and Technology*, 18, 1454–1459.
- Biju, A., Kumar, R. G. A., Aloysius, R. P., ve Syamaprasad, U. (2006). Structural and superconducting properties of  $\text{Bi}_{1.7}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_{2-x}\text{Gd}_x\text{Ca}_{1.1}\text{Cu}_{2.1}\text{O}_y$  system. *Physica C*, 449, 109–115.

- Bilgili, O., Selamet, Y., ve Kocabaş, K. (2008). Effects of Li substitution in Bi-2223 superconductors. *Journal of Superconductivity and Novel Magnetism*, 21, 439-449.
- Çelebi, S., Karaca, I., Aksu, E., ve Gencer, A. (1998). Frequency dependence of the intergranular AC loss peak in a high- $T_c$  Bi-(Pb)-Sr-Ca-Cu-O bulk superconductor. *Physica C*, 309, 131-137.
- Çelebi, S. (1999). Comparative ac susceptibility analysis on Bi-(Pb)-Sr-Ca-Cu-O high- $T_c$  superconductors. *Physica C*, 316, 251-256.
- Das, B. (2012). *Study on  $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8/CoFe_2O_4$  composites*. National Institute of Technology, Rourkela.
- Ekicibil, A., Coşkun, A., Özçelik, B., ve Kiymaç, K. (2005). The Effect of Gd concentration on the physical and magnetic properties of  $Bi_{1.7}Pb_{0.3-x}Gd_xSr_2Ca_3Cu_4O_{12+y}$  Superconductors. *Journal of Low Temperature Physics*, 140, 105-117.
- Erdem, M., Ozturk, O., Yucel, E., Altintas, S. P., Varilci, A., Terzioglu, C., ve diğer. (2011). Effect of Gd addition on the activation energies of Bi-2223 superconductor. *Physica B*, 406, 705-709
- Ghazanfari, N., Kılıç, A., Gencer, A., ve Özkan, H. (2007). Effects of  $Nb_2O_5$  addition on superconducting properties of BSCCO. *Solid State Communications*, 144, 210-214.
- Gul, I. H., Anis-ur-Rehman, M., ve Maqsood, A. (2006). Temperature dependence of thermal and electrical conductivity of Bi-based high- $T_c$  (2223) superconductor. *Physica C*, 450, 83-87.
- Gul, I. H., Amin, F., Abbasi, A. Z., Anis-ur-Rehman, M., ve Maqsood, A. (2006). Effect of  $Ag_2CO_3$  addition on the morphology and physical properties of Bi-based (2223) high- $T_c$  superconductors. *Physica C*, 449, 139-147.

- Kameli, P., Salamati, H., ve Abdolhosseini, I. (2008). AC susceptibility study of  $\text{Bi}_{1.66}\text{Pb}_{0.34}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Mg}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  ( $x= 0, 0,2$  and  $0,4$ ) superconductor systems. *Journal of Alloys and Compounds*, 458, 61–65.
- Kameli, P., Salamati, H., ve Eslami, M. (2006). The effect of sintering temperature on the intergranular properties of Bi2223 superconductors. *Solid State Communications*, 137, 30-35.
- Kocabaş, K., Bilgili, O., ve Yaşar, N. (2009). The effect of sintering temperature of the  $\text{Bi}_{1.7}\text{Pb}_{0.2}\text{Sb}_{0.1}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ . *Journal of Superconductivity and Novel Magnetism*, 22, 643-650.
- Kocabaş, K., Özkan, O., Bilgili, O., Kadioğlu, Y., ve Yılmaz, H. (2010). The effects of Mg substitution in Bi–2223 superconductors. *Journal of Superconductivity and Novel Magnetism*, 23, 1485-1492.
- Kocabaş, K., ve Çiftçioğlu, M. (2000). The effect of Sb substitution of Cu in  $\text{Bi}_{1.7}\text{Pb}_{0.3}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_{3-x}\text{Sb}_x\text{O}_y$  superconductors. *Physica Status Solidi (a)*, 177, 539.
- Mahmood, R., ve Iqbal, M. J. (2012). Synthesis and characterization of Ga-doped bismuth based superconducting materials. *World Applied Sciences Journal*, 17, 1510-1515.
- Margiani, N. G., Metskhvarishvili, I. R., Papunashvili, N. A., Dzanashvili, D. I., ve Shurgaia, G. A. (2011). Superconducting properties of  $\text{B}_2\text{O}_3$ -added (Bi,Pb)-2223 HTSs prepared on alumina plates. *Journal of Superconductivity and Novel Magnetism*, 24, 2275-2278.
- Mihalache, V., Deac, I. G., Pop, A.V., ve Miu, L. (2011). The pinning force density in polycrystalline  $\text{Bi}_{1.8}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Y}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  multiphase systems. *Current Applied Physics*, 1-5.
- Mishra, D. R. (2008). Gd-substituted Bi-2223 superconductor. *Journal of Physics*, 70, 535-541.

- Mishra, D. R., Upadhyay, P. L., ve Sharma, R. G. (1998). Superconductivity of Nb-substituted Bi-2223 superconductor. *Physica C*, 304, 293-306.
- Mourachkine, A. (2002). *High temperature superconductivity in cuprates. The nonlinear mechanism and tunneling measurements*. USA: Kluwer Academic.
- Müller, P., Ustinov A. V., ve Schmidt V. V. (1997). *The physics of superconductors, introduction to fundamentals and applications*. Germany: Springer.
- Naser, I. A., Saleh, A. M., ve Abu-Samreh, M. M. (2005). Influence of growth conditions and weak fields on the electrical properties of the vortex and superconducting states of Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>x</sub> thick tapes. *Physica C*, 425, 121-129.
- Nasu, H., Kuriyama, N., ve Kamiya, K. (1990). Influences of Nb addition on superconducting properties in Bi,Pb-Sr-Ca-Cu-O glass-ceramics. *Japanese Journal of Applied Physics*, 29, 1415.
- Nikolo, M. (1994). *Superconductivity: A guide to alternating current susceptibility measurements and alternating current susceptometer design*. Missouri: St. Louis University.
- Persland, M. R., Tallon, J. L., Buckley, R. G., Liu, R. S., ve Flower, N. E. (1991). General trends in oxygen stoichiometry effect on T<sub>c</sub> in Bi and Tl superconductor. *Physica C*, 176, 95-105.
- Poole, C. P., Farach, H. A., ve Creswick, R. J. (1995). *Superconductivity*. USA: Academic Press.
- Salem, A., Al-Salami, A. E., Ziq, K. A., ve Adrian, H. (2011). Preparation and characterization of nanometer grained high temperature superconducting high-quality epitaxial Bi-2223 thin films grown by DC sputtering. *Journal of Superconductivity and Novel Magnetism*, 24, 159-163.
- Saoudel, A., Amira, A., Boudjadja, Y., Amirouche, L., Mahamdioua, N., Varilci, A., ve diğer. (2013). On the effect of carbon nano-tubes addition on structure and

- superconducting properties of Bi(Pb)-2223 phase. *Journal of Superconductivity and Novel Magnetism*, 26, 861-865.
- Sheahan, T. P. (1994). *Introduction to high-temperature superconductivity*. New York: Plenum Press.
- Shoushtari, M. Z., Bahrami, A., ve Farbod, M. (2006). The effect of silver doping on the critical current density of Bi-Pb-Sr-Ca-Cu-O ceramic superconductor. *Physica Status Solidi*, 3, 2994-2998.
- Sözeri, H., Ghazanfari, N., Özkan, H., ve Kılıç, A. (2007). Enhancement in the high-T<sub>c</sub> phase of BSCCO superconductors by Nb addition. *Superconductor Science and Technology*, 20, 522-528.
- Ozturk, O., Küçükömeroğlu, T., ve Terzioğlu, C. (2007). Calculation of the diffusion coefficient of Au in Bi-2223 superconductors. *Journal of Physics Condensed Matter*, 19, 346-205
- Ozturk, O., Cetinkara, H. A., Asikuzun, E., Akdogan, M., Yilmazlar, M., ve Terzioğlu, C. (2011). Investigation of mechanical and superconducting properties of iron diffusion-doped Bi-2223 superconductors. *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, 22, 1501-1508.
- Özkurt, B. (2013). The mechanical properties of Y-doped Bi-2223 superconductors. *Journal of Superconductivity and Novel Magnetism*, 26, 261–266
- Taghipour, J., Abbasi, H., ve Sedghi, H. (2010). The effect of Sb substitution on properties of Bi<sub>1.6</sub>Pb<sub>0.4</sub>Sr<sub>2-x</sub>Sb<sub>x</sub>Ca<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>y</sub> superconductors. *Physica B*, 405 1349-1352.
- Terzioğlu, C., Aydin, H., Ozturk, O., Bekiroğlu, E., ve Belenli, I. (2008). The influence of Gd addition on microstructure and transport properties of Bi-2223. *Physica B*, 403, 3354-3359.

- Terzioglu, C., Yegen, D., Yilmazlar, M., Gorur, O., Akdogan, M., ve Varilci, A. (2007). Investigation of Sm-Ca substitution in Bi(Pb)SrCaCuO high temperature superconductor by low field ac magnetic susceptibility. *Journal of Materials Science*, 42, 4636-4641.
- Terzioglu, C., Yilmazlar, M., Ozturk, O., ve Yanmaz, E. (2005). Structural and physical properties of Sm-doped  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Sm}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  superconductors. *Physica C*, 423, 119-126.
- Tinkham, M., (1976). *Introduction to superconductivity* (2nd ed.). New York: McGraw-Hill Inc.
- Yazıcı, D., Özçelik, B., ve Yakıncı, M. E. (2011). Improvement of high- $T_c$  phase formation in BPSCCO superconductor by adding vanadium and substituting Titanium. *Journal of Low Temperature Physics*, 163, 370-379.
- Yıldırım, G., Zalaoglu, Y., Akdogan, M., Altintas, S. P., Varilci, A., ve Terzioglu, C. (2011). Investigation of Gd addition added on magnetic and structural properties of  $\text{Bi}_{1.8}\text{Pb}_{0.35}\text{Sr}_{1.9}\text{Ca}_{2.1}\text{Cu}_3\text{Gd}_x\text{O}_y$  superconductors by ac susceptibility. *Journal of Superconductivity and Novel Magnetism*, 24, 2153-2159.
- Yıldırım, G., Bal, S., Yucel, E., Dogruer, M., Akdogan, M., Varilci, A., ve diğer. (2012). Effect of Mn addition on structural and superconducting properties of (Bi, Pb)-2223 superconducting ceramics. *Journal of Superconductivity and Novel Magnetism*, 25, 381-390.
- Youssif, M. I., Bahgat, A. A., ve Ali, I. A. (2000). AC magnetic susceptibility technique for the characterization of high temperature superconductors. *Egyptian Journal of Solids*, 23, 2.
- Verma, I., Rawat, R., Ganesan, V., Phase, D. M., ve Das, B. (2012). The effect of Mn substitution on properties of  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{2-x}\text{Mn}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$  superconductors. *Journal of Superconductivity and Novel Magnetism*, 25, 85-90.