

**KARADENİZ TEKNİK ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

FİZİK ANABİLİM DALI

**GADOLİNYUM VE İTERBİYUM DİFÜZYONUNUN $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ BİLEŞİĞİNİN
YAPISAL VE SÜPERİLETKENLİK ÖZELLİKLERİNE ETKİSİ**

DOKTORA TEZİ

Kemal ÖZTÜRK

**EKİM 2006
TRABZON**

**KARADENİZ TEKNİK ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

FİZİK ANABİLİM DALI

**GADOLİNYUM VE İTERBİYUM DİFÜZYONUNUN $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ BİLEŞİĞİNİN
YAPISAL VE SÜPERİLETKENLİK ÖZELLİKLERİNE ETKİSİ**

Kemal Öztürk

**Karadeniz Teknik Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsünde
“Doktor”**

Unvanı Verilmesi İçin Kabul Edilen Tezdir.

Enstitüye Verildiği Tarih: 19.09.2006

Tezin Savunma Tarihi : 20.10.2006

Tez Danışmanı: Prof. Dr. Ekrem YANMAZ

Jüri Üyesi : Prof. Dr. Mustafa ALTUNBAŞ

Jüri Üyesi : Prof. Dr. Fazlı ARSLAN

Jüri Üyesi : Doç. Dr. Uğur ÇEVİK

Jüri Üyesi : Prof. Dr. Mehmet ERTUĞRUL

Enstitü Müdürü: Prof. Dr. Emin Zeki BAŞKENT

Trabzon 2006

ÖNSÖZ

Bu çalışmada gadolinyum ve iterbiyumun termal yolla $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ (Y123) süperiletkenine difüzyonunun, süperiletkeninin fiziksel ve yapısal özelliklerini hangi oranda değiştirdiği araştırıldı. Böylece, katkı difüzyon yöntemiyle $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 'ün süperiletkenlik mekanizmasını anlamaya ve süperiletkenlik özelliklerini geliştirmeye çalışıldı.

Yapılan deneysel çalışmalar, Karadeniz Teknik Üniversitesi Fen-Edebiyat Fakültesi Fizik Bölümü Katıhal Fiziği Araştırma Laboratuvarı ile X-Işınları Flüoresans Laboratuvarında gerçekleştirildi. Ayrıca bu çalışma, Karadeniz Teknik Üniversitesi Araştırma Fonunun 2002.111.001.6 numaralı projesi ile desteklenmiştir.

Tez danışmanlığımı üstlenerek gerek konu seçimi, gerekse çalışmaların yürütülmesi esnasında ilgi ve bilgisini esirgemeyen sayın hocam Prof.Dr. Ekrem YANMAZ'a; sorularımı cevapsız bırakmayarak yapıcı eleştirilerde bulunan sayın hocam Prof. Dr. Mustafa ALTUNBAŞ'a; yardımsever kişiliğiyle bana her türlü yardımı gösteren sayın hocam Doç.Dr. Uğur ÇEVİK'e ve Fizik Bölümü Başkanı Prof.Dr. Ali İhsan KOBYA'ya teşekkürü bir borç bilirim. Ayrıca bu çalışmanın deneysel aşamalarında yardımını esirgemeyen Arş.Gör.Dr. Şükrü ÇELİK'e; Öğr.Gör.Dr. Tayfur KÜÇÜKÖMEROĞLU'na; Yrd.Doç.Dr. Osman GÖRÜR'e; bölümdeki tüm hocalarıma ve araştırma görevlisi arkadaşlara teşekkür ederim.

Kemal ÖZTÜRK

Trabzon 2006

İÇİNDEKİLER

Sayfa No:

ÖNSÖZ	II
İÇİNDEKİLER.....	III
ÖZET	VI
SUMMARY	VII
ŞEKİLLER DİZİNİ	VIII
TABLolar DİZİNİ.....	XIII
SEMBOLLER DİZİNİ.....	XIV
1. GENEL BİLGİLER	1
1.1. Giriş.....	1
1.2. Mükemmel İletkenlik, Süperiletkenlik ve Meissner olayı	4
1.3. Süperiletkenlikte Temel Nicelikler.....	6
1.3.1. Kritik Sıcaklık.....	6
1.3.2. Nüfuz Derinliği.....	7
1.3.3. Uyum (Koherens) uzunluğu	9
1.3.4. Kritik Akım (I_c)	10
1.3.5. Termodinamik Kritik Alan (H_c)	11
1.4. I. ve II. Tip Süperiletkenler	12
1.5. Karışık Hal (Mixed State)	15
1.6. Tersinir (Reversible) ve Tersinmez (Irreversible) II. Tip Süperiletkenler	18
1.7. II. Tip Süperiletkenlerde Tersinmezlik (irreversibility) Çizgisi.....	22
1.8. Bean (Kritik Hal) Modeli	23
1.9. Akı Akışı	26
1.10. Akı Sürüklenmesi (Flux Creep) ve Isıl Destekli Akı Akışı (TAFF: Thermally Activated Flux flow)	28
1.11. Yüksek Sıcaklık Oksit Süperiletkenleri	30
1.12. $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ (Y123) Süperiletkeninin Yapısal ve Fiziksel Özellikleri	31
1.13. Y123 Süperiletkeni Üretim Teknikleri	34
1.13.1. Sinterlenmiş Bulk Y123	37
1.13.2. Eritme-Yönlendirme-Büyütme (Melt-Textured-Growth (MTG)).....	37
1.13.3. Ark-Döküm (Ark-Casting)	38

1.14.	Gd, Yb ve Bazı Katkı Maddelerinin YBCO Süperiletkeni Üzerindeki Etkileri.....	39
1.15.	Difüzyon Mekanizmaları.....	43
1.15.1.	Yüksek Sıcaklık Oksit Süperiletkenlerinde Difüzyon Mekanizmaları.....	45
2.	DENEYSEL ÇALIŞMALAR	49
2.1.	YBa ₂ Cu ₃ O _{7-x} (Y123) Bileşiğinin Hazırlanması.....	49
2.2.	Gadolinium ve İterbiyumun Y123 Süperiletkenine Difüzyonu.....	51
2.3.	Yapılan Ölçümler.....	53
2.3.1.	Diferansiyel Termal Analiz (DTA) Ölçümü	53
2.3.2.	Yoğunluk Ölçümleri	54
2.3.3.	X-Işınları Kırınımı Ölçümleri.....	56
2.3.4.	X-Işınları Flüoresans Ölçümleri	56
2.3.5.	Optik ve Taramalı Elektron Mikroskopu (SEM) Ölçümleri	58
2.3.6.	Düşük Sıcaklık Direnç ve Manyetizasyon Ölçümleri.....	58
2.3.6.1.	Düşük Sıcaklık Direnç Ölçümü.....	59
2.3.6.2.	Düşük Sıcaklık Manyetizasyon Ölçümü.....	60
3.	BULGULAR VE TARTIŞMA.....	63
3.1.	Giriş.....	63
3.2.	Gadolinium (Gd) ve İterbiyum (Yb) Difüzyonunun Y123 Süperiletkeninin Yapısal, Elektriksel ve Manyetik Özelliklerine Etkisi	63
3.2.1.	Temiz Y123 Örneğinin Özellikleri	63
3.2.2.	Gadolinium ve İterbiyum'un Y123 Süperiletkenine Difüzyonu	65
3.2.3.	Gadolinium ve İterbiyum Difüzyonunun Y123 Süperiletkeninin Yapısal Özelliklerine Etkisi	70
3.2.3.1.	Difüzyon Katkılı Y123 Süperiletkeninin XRD Desenleri.....	70
3.2.3.2.	Difüzyon Katkılı Y123 Süperiletkeninin Metalografik Analizi	74
3.2.4.	Gadolinium ve İterbiyum Difüzyonunun Y123 Süperiletkeninin Direnç ve Kritik Geçiş Sıcaklık Özelliklerine Etkisi.....	80
3.2.4.1.	Difüzyon Yapılmış Y123 Süperiletkeninde Aktivasyon Enerjisinin (U) Belirlenmesi.....	88
3.2.4.2.	Difüzyon Yapılmış Y123 Süperiletkeninde Üst Kritik Manyetik Alan (H _{c2}) Değerinin Belirlenmesi.....	92
3.2.5.	Gadolinium ve İterbiyum Difüzyonunun Y123 Süperiletkeninin Manyetizasyon Özelliklerine Etkisi.....	96
3.2.5.1.	Gadolinium ve İterbiyum Difüzyonu Yapılmış Y123 Süperiletkenlerinde Manyetizasyon Ölçümleri	96

3.2.5.2. Difüzyon Yapılmış Y123 Süperiletkenlerinde Kritik Akım Yoğunluğunun Belirlenmesi.....	103
4. SONUÇLAR.....	114
5. ÖNERİLER.....	117
6. KAYNAKLAR.....	118
ÖZGEÇMİŞ.....	125

ÖZET

Bu çalışmada, gadolinyum (Gd) ve iterbiyum'un (Yb) termal yolla polikristal yapılu $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ (Y123) süperiletkenine difüzyonunun, süperiletkenin fiziksel ve yapısal özelliklerini hangi oranda değiştirdiği araştırıldı. Böylece, katkı difüzyon yöntemiyle Y123 örneğinin süperiletkenlik mekanizmasını anlamaya ve süperiletkenlik özelliklerini geliştirmeye çalışıldı.

Katıhal tepkime yöntemiyle hazırlan Y123 süperiletkeninde gadolinyum ve iterbiyum'un difüzyon katsayısı (D) ve difüzyon katkı atomu aktivasyon enerjisi (E_a) değerleri EDXRF yönteminden yararlanarak hesaplandı. Araştırmada, Y123 külçe örneği üzerine Gd ve Yb difüzyonu uygulandıktan sonra difüzyon edilmiş örneklerin yapısal özellikleri X-ışını kırınım analizi, taramalı elektron mikroskobu ve optik mikroskop ölçümleriyle; elektriksel ve manyetik özellikleri de PPMS sistemi kullanılarak R-T ve M-H ölçümleri ile incelendi. Farklı sıcaklıklarda termal difüzyon yapılan Y123 örneklerinin direnç ölçümlerinden yararlanarak değişik manyetik alanlardaki aktivasyon enerjisi (U) ve üst kritik manyetik alan (H_{c2}) değerleri; manyetizasyon ölçümlerinden ise kritik akım yoğunluğu (J_c) değerleri hesaplandı.

Gadolinyum ve iterbiyum'un Y123 örneğine farklı sıcaklıklarda (800-900 °C) yapılan difüzyonu neticesinde elde edilen konsantrasyon dağılımı eğrilerinden, Gd ve Yb'un tane içine yavaş difüzyon katsayısı D_1 ve taneler arası yüzeylere hızlı difüzyon katsayısı D_2 gibi, iki farklı difüzyon katsayısıyla ifade edilebileceği bulundu. Yapısal özelliklerin incelenmesi sonucunda 900 °C'de Gd difüzyonu yapılmış Y123 örneğinin c örgü sabitinin, difüzyon yapılmamış örneğe göre % 0,23 oranında arttığı ve difüzyon yapılmış yüzeyden derinlere inildikçe c örgü sabitinin azaldığı saptandı. Ayrıca 900 °C'de Gd ve Yb difüzyonu yapılmış tüm örneklerin SEM fotoğraflarının incelenmesinde, taneler arası boşluk oranının azaldığı ve kristal yöneliminin arttığı görüldü. Fiziksel ölçümler neticesinde Gd ve Yb'un difüzyon tavlama sıcaklığı arttıkça, difüzyon yapılmış örneklerin U, H_{c2} ve J_c değerlerinde de artışlar belirlendi.

Anahtar Kelimeler: $YBa_2Cu_3O_{7-x}$, Gd ve Yb difüzyonu, Aktivasyon enerjisi, Üst kritik manyetik alan, M-H eğrileri, Kritik akım yoğunluğu

SUMMARY

The Effect of Gadolinium and Ytterbium Diffusion on Structural and Superconducting Properties of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$

This study deals with the thermal diffusion of gadolinium (Gd) and ytterbium (Yb) into the polycrystalline Y123 superconductor to understand the diffusion-induced variation of physical and structural properties. Ultimately, attempts are made to comprehend the mechanism of superconductivity and improve the properties of the superconductivity.

The Y123 samples which were diffusion-doped at various temperatures were prepared by solid-state reaction method. Values of diffusion coefficient (D) and activation energy (E_a) for Gd and Yb diffusion were determined by EDXRF method. Structural properties of the samples subjected to Gd and Yb diffusion were determined by X-ray diffraction analysis, scanning electron microscopy and optical light microscopy while electrical and magnetic properties by the R-T and M-H measurements by means of physical properties measurement system. Values of activation energy (U) and upper critical magnetic field (H_{c2}) were computed by use of the resistance measurements, whereas critical current density (J_c) from the magnetization measurements.

Two distinct diffusion coefficients (D_1 and D_2) are defined for the Gd and Yb diffusion into the Y123 at the different temperatures (800-900 °C) whereby D_1 and D_2 represent slow intragrain and intergrain fast diffusion coefficients, respectively. The c-lattice parameter of Y123 which is subjected to Gd diffusion at 900 °C increases 0.23 % relative to pure Y123. In addition, c-lattice parameter systematically decreases from the diffusion-treated surfaces into interior of the sample. SEM imaging of all the Gd and Yb diffused samples (900 °C) revealed that the amount of the intergranular spaces decreases and crystal-orientation increases. The physical measurements clearly display that U, H_{c2} and J_c values increases with the increasing diffusion annealing temperatures.

Key Words: $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$, Gd and Yb diffusion, Activation energy, Upper critical magnetic field, M-H loops, Critical current density

ŞEKİLLER DİZİNİ

Sayfa No:

- Şekil 1.1. Süperiletkenliğin keşfinden günümüze kadar kritik sıcaklığın yıllara göre değişimi (Doss, 1989).2
- Şekil 1.2. Mükemmel bir iletkenin H_a dış manyetik alan altında soğutulması (a), (b) ve $H_a = 0$ yapılması durumunda (c) manyetik alan davranışı. I. tip süperiletkenin H_a dış manyetik alan altında soğutulması (d), (e) ve $H_a = 0$ yapılması durumunda (f) manyetik alan davranışı5
- Şekil 1.3. Süperiletkenliğe geçiş kritik sıcaklıkları7
- Şekil 1.4. Manyetik akının süperiletken yüzeyinden içeri nüfuz etmesi9
- Şekil 1.5. (a) I. tip ve (b) II. tip süperiletken için kritik manyetik alanın sıcaklıkla değişimini gösteren faz diyagramı13
- Şekil 1.6. I. tip süperiletkenlerde; ortalama manyetik akı yoğunluğunun (a), ortalama manyetizasyonun (b) ve II tip süperiletkenlerde; ortalama manyetik akı yoğunluğunun (c), ortalama manyetizasyonun (d), uygulanan manyetik alana bağıllığı.....15
- Şekil 1.7. H_{c1} 'den büyük şiddette uygulanan alan durumunda karışık hal. a-) Göbek örgüsü ve onunla ilişkili girdaplar, b-) süper elektron yoğunluğunun ve c-) akı yoğunluğunun konumla değişimi17
- Şekil 1.8. Akı girdapları üzerine etkileyen Lorentz ve çivileme kuvveti19
- Şekil 1.9. ZFC işlemi sonrası II. tip süperiletkenlerde, (a) çivileme yok iken (reversible), (b) çivileme var iken (irreversible) manyetik akı yoğunluğu görüntüsü20
- Şekil 1.10. II. tip süperiletkenlerde (a) çivileme yok iken tersinir (reversible), (b) çivileme olması durumunda yarı-tersinir (semi-reversible) ve (c) şiddetli çivileme olması durumunda tersinmez (irreversible) davranış özelliklerinin $\langle M \rangle - H$ histeresis çevrimleri.....21
- Şekil 1.11. Yüksek sıcaklık süperiletkenlerinde, a-) H-T ve b-) M-H faz diyagramlarında tersinmezlik çizgisi.....23
- Şekil 1.12. Silindir geometrisi için Bean Modeli' nin şematik gösterimi. (a) Manyetizasyonun uygulanan alanla değişimi. Uygulanan alan ilk tam nüfuz alanına ulaştığında ($H_a = H^*$), manyetizasyon eğrisi sabit bir değer almaktadır. Akı çizgilerinin (b) girmesini, (c) terk etmesini gösteren akı profilleri (şekildeki rakamlar (a)'da görülen manyetizasyon eğrisindeki rakamlara karşılık gelmektedir). (d) Akı nüfuzu, (e) akı çıkışı esnasında numunede dolaşan kritik akım.....25
- Şekil 1.13. Bir Nb-Ta örneğinde, farklı $t = T/T_c$ değerleri için, B'nin fonksiyonu olarak akı akış direnci. Noktalı çizgiler $t = 0$ için beklenen davranışı temsil ederken, dikey çizgiler $B_{c2}(t)$ değerini göstermektedir27
- Şekil 1.14. Farklı rejimler için akım-gerilim karakteristiğinin şematik gösterimi ...30
- Şekil 1.15. Ortorombik $YBa_2Cu_3O_7$ süperiletken bileşiğinin kristal yapısı.....33

Şekil 1.16. Geliştirilmiş MTG yönteminin şematik gösterimi (Murakami, 1992)...	38
Şekil 1.17. AQPG yönteminin şematik gösterimi	39
Şekil 1.18. (a) Seramik süperiletkenlerde; gözenek yüzeylerine (1), tane sınırlarına (2), ikizlenme sınırları boyunca (3), ve tane içlerine difüzyon (4) hareketinin şematik gösterimi. (b) CuO_2 düzleminde $\text{Cu}(2)$ konumlarına iki değerlikli bir geçiş metal iyonunun yerleşmesi	46
Şekil 1.19. $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ süperiletkeninde, Ag (1,◻), Au (2,△), Cu (3,●) ve Fe (4,◇) elementlerinin sıcaklığa bağlı difüzyon katsayıları	48
Şekil 2.1. Toz karışımın kalsinasyon işlemi sıcaklık-zaman grafiği	50
Şekil 2.2. Saf $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ örneğinin sinterleme ve oksijen verme işlemi sıcaklık-zaman grafiği	50
Şekil 2.3. (a) VARIAN VT-422 elektron demetli buharlaştırma sisteminin optik fotoğraf ve (b) bu sistemde kullanılan elektron tabancası ve potaların şematik görüntüsü.....	52
Şekil 2.4. Örnek hazırlama ve difüzyon işleminin şematik görünümü.....	53
Şekil 2.5. Diferansiyel termal analiz aletinin(DTA) sistem geometrisi.....	54
Şekil 2.6. Arshimed yoğunluk ölçüm yöntemi deney düzeneği	55
Şekil 2.7. X-ışınları floresans (EDXRF) ölçümleri için deney geometrisi	57
Şekil 2.8. X-ışınları flüoresans ölçüm sisteminin blok diyagramı.....	57
Şekil 2.9. Quantum Design PPMS sistemi	59
Şekil 2.10. Quantum Design direnç ölçümü için örnek tutucunun üstten ve alttan görünümü	60
Şekil 2.11. VSM modülünün sıvı azot ceketli sıvı helyum tankındaki konumları. Üst taraf gradiyometre, alt taraf ise algılama bobininin büyütülmüş halini göstermektedir (Çelik, 2006).....	62
Şekil 3.1. Katıhal tepkime yöntemiyle üretilen Y123 süperiletken örneğinin başlangıç toz bileşiminden alınan DTA eğrisi	64
Şekil 3.2. Gadolinyumun Y123 örneğine difüzyon sonrası yüzeyden itibaren konsantrasyon dağılımı (900 °C’de 12 saat)	65
Şekil 3.3. Y123’ün yüzeye yakın bölgesinde (1) ve iç bölgesinde (2) gadolinyumun difüzyon katsayısının sıcaklıkla değişimi	67
Şekil 3.4. İterbiyumun Y123 örneğine difüzyon sonrası yüzeyden itibaren konsantrasyon dağılımı (900 °C’de 12 saat)	68
Şekil 3.5. Y123’ün yüzeye yakın bölgesinde (1) ve iç bölgesinde (2) iterbiyumun difüzyon katsayısının sıcaklıkla değişimi	69
Şekil 3.6. Temiz Y123 örneği ile farklı sıcaklıklarda 12 saat gadolinyum difüzyonu yapılmış Y123 örneklerinin, yüzeylerinden 30 µm film çıkarıldıktan sonra alınmış XRD desenleri	71
Şekil 3.7. 600-900 °C sıcaklık aralığında 12 saat Gd difüzyonu yapılmış örneklerin c-örgü sabitlerinin difüzyon sıcaklığıyla değişimi (20 µm)..	72

Şekil 3.8. Gd900 örneğinin x yüzey derinliği ile c-örgü sabiti arasındaki değişim.....	72
Şekil 3.9. Yüzeyinden 30 µm film çıkarılmış temiz Y123 örneği (a) ile 900 °C ((b) ve (c)) ve 800 °C (d) sıcaklıklarında 12 saat iterbiyum difüzyonu yapılmış Y123 örneklerinin, yüzeylerinden 30 µm ve 5 µm film çıkarıldıktan sonra alınmış XRD desenleri.....	74
Şekil 3.10. 900 °C’de 12 saat difüzyon yapılmış Gd900 örneğinin (a) gadolinyum katkılanmış ve (b) katkılanmamış yüzeyinin 20 µm derinliğinden çekilmiş SEM fotoğrafları	76
Şekil 3.11. 900 °C’de 12 saat difüzyon yapılmış Gd900 örneğinin (a) gadolinyum katkılanmış ve (b) katkılanmamış yüzeyinin 20 µm derinliğinden çekilmiş optik mikroskop fotoğrafları.....	77
Şekil 3.12. 900 °C’de 12 saat difüzyon yapılmış Yb900 örneğinin (a) iterbiyum katkılanmış ve (b) katkılanmamış yüzeyinin 20 µm derinliğinden çekilmiş SEM fotoğrafları.....	78
Şekil 3.13. 900 °C’de 12 saat difüzyon yapılmış Yb900 örneğinin (a) iterbiyum katkılanmış ve (b) katkılanmamış yüzeyinin 20 µm derinliğinden çekilmiş optik mikroskop fotoğrafları	79
Şekil 3.14. Temiz Y123 örneğinin H=0.0 – 2,0 T (0,5 T aralıklarla) manyetik alan altındaki direncinin sıcaklığa göre değişimi	82
Şekil 3.15. Gd900 örneğinin (900 °C’de 12h Gd difüzyonu) H=0.0 – 2,0 T manyetik alan altındaki direncinin sıcaklığa göre değişimi.....	82
Şekil 3.16. Gd800 örneğinin (800 °C’de 12h Gd difüzyonu) H=0.0 – 2,0 T manyetik alan altındaki direncinin sıcaklığa göre değişimi.....	83
Şekil 3.17. Gd600 örneğinin (600 °C’de 12h Gd difüzyonu) H=0.0 – 2,0 T manyetik alan altındaki direncinin sıcaklığa göre değişimi.....	83
Şekil 3.18. (a) Temiz Y123 ve Gd900, Gd800, Gd600 örneklerinin alansız halde direnç değerlerinin sıcaklığa göre değişimleri, (b) $T_{c\text{ sıfır}}$ ve ilgili ΔT_c değerlerinin difüzyon tavlama sıcaklığına göre değişimi	84
Şekil 3.19. Temiz Y123 ve Gd900, Gd800, Gd600 örneklerinin 0,5 T manyetik alan altında direnç değerlerinin sıcaklığa göre değişimleri	85
Şekil 3.20. 800 °C’de 12, 24 ve 48 saat Gd difüzyonu yapılmış Y123 örnekleri direnç değerlerinin sıcaklığa göre değişimleri	85
Şekil 3.21. Yb900 örneğinin H=0.0 – 2,0 T manyetik alan altındaki direncinin sıcaklığa göre değişimi	86
Şekil 3.22. Yb800 örneğinin H=0.0 – 2,0 T manyetik alan altındaki direncinin sıcaklığa göre değişimi	86
Şekil 3.23. Yb600 örneğinin H=0.0 – 2,0 T manyetik alan altındaki direncinin sıcaklığa göre değişimi	87
Şekil 3.24. Temiz Y123 ve Yb900, Yb800, Yb600 örneklerinin alansız halde direnç değerlerinin sıcaklığa göre değişimleri	87

Şekil 3.25. Temiz Y123 ve Yb900, Yb800, Yb600 örneklerinin 0,5 T manyetik alan altında direnç değerlerinin sıcaklığa göre değişimleri	88
Şekil 3.26. Y123 örneğinin farklı manyetik alanlarda aktivasyon enerjilerinin hesaplandığı doğrular.....	89
Şekil 3.27. (a) Gd900, (b) Gd800 ve (c) Gd600 örneklerinin farklı manyetik alanlardaki aktivasyon enerjilerinin hesaplandığı doğrular	90
Şekil 3.28. Y123, Gd900, Gd800 ve Gd600 örneklerinin aktivasyon enerjilerinin (U) uygulanan manyetik alana göre değişimi	91
Şekil 3.29. (a) Yb900 ve (b) Yb800 örneklerinin farklı manyetik alanlarda aktivasyon enerjilerinin hesaplandığı doğrular	91
Şekil 3.30. Y123, Yb900 ve Yb800 örneklerinin aktivasyon enerjilerinin (U) uygulanan manyetik alana göre değişimi.....	92
Şekil 3.31. Y123, Gd900,Gd800 ve Gd600 örneklerinin üst kritik manyetik alanının (H_{c2}) sıcaklığa göre değişimi	94
Şekil 3.32. Y123, Gd900,Gd800 ve Gd600 örneklerinin üst kritik manyetik alanının $1-T/T_c$ ile değişimi (doğruların eğimi mutlak sıfır sıcaklığındaki üst kritik manyetik alan ($H_{c2}(0)$) değeridir).....	94
Şekil 3.33. Y123, Gd900,Gd800 ve Gd600 örneklerinin hesaplanan $H_{c2}(0)$ değerlerinin difüzyon tavlama sıcaklığına göre değişimi	95
Şekil 3.34. Y123, Yb900 ve Yb800 örneklerinin üst kritik manyetik alanının (H_{c2}) sıcaklığa göre değişimi.....	95
Şekil 3.35. Y123, Yb900 ve Yb800 örneklerinin üst kritik manyetik alanı H_{c2} 'nin $1-T/T_c$ ile değişimi.....	96
Şekil 3.36. Temiz Y123 örneğinin 5, 25, 50, 77 K sıcaklıklarındaki M-H ilmekleri ($H_{maks} = 3 T$)	98
Şekil 3.37. Gd900 örneğinin 5, 25, 50, 77 K sıcaklıklarındaki M-H ilmekleri ($H_{maks} = 3 T$)	98
Şekil 3.38. Gd800 örneğinin 5, 25, 50, 77 K sıcaklıklarındaki M-H ilmekleri ($H_{maks} = 3 T$)	99
Şekil 3.39. Gd900, Gd800 ve Y123 örneklerinin 5 K'deki M-H ilmekleri	99
Şekil 3.40. Gd900, Gd800 ve Y123 örneklerinin 25 K'deki M-H ilmekleri ($H_{maks} = 3 T$)	100
Şekil 3.41. Gd900, Gd800 ve Y123 örneklerinin 77 K'deki M-H ilmekleri ($H_{maks} = 3 T$)	100
Şekil 3.42. 800 °C'de 12 ve 48 saat gadolinyum difüzyonu yapılan Y123 örneğinin 5 K deki M-H ilmekleri.....	101
Şekil 3.43. Yb900 örneğinin 5, 25, 50, 77 K sıcaklıklarındaki M-H ilmekleri.....	101
Şekil 3.44. Yb800 örneğinin 5, 25, 50, 77 K sıcaklıklarındaki M-H ilmekleri.....	102
Şekil 3.45. Yb900 ve Y123 örneklerinin 5 K sıcaklığındaki M-H ilmekleri	102
Şekil 3.46. Yb900 ve Y123 örneklerinin 77 K sıcaklığındaki M-H ilmekleri	103

Şekil 3.47. Y123 örneğinin 5, 25, 50, 77 K sıcaklıklarındaki J_c -H grafikleri	106
Şekil 3.48. Gd900 örneğinin 5, 25, 50, 77 K sıcaklıklarındaki J_c -H grafikleri	106
Şekil 3.49. Gd800 örneğinin 5, 25, 50, 77 K sıcaklıklarındaki J_c -H grafikleri	107
Şekil 3.50. Gd900, Gd800 ve Y123 örneklerinin 5 K sıcaklığındaki kritik akım yoğunluğunun (J_c) manyetik alana göre değişimi	107
Şekil 3.51. Gd900, Gd800 ve Y123 örneklerinin 25 K sıcaklığındaki kritik akım yoğunluğunun (J_c) manyetik alana göre değişimi	108
Şekil 3.52. Gd900, Gd800 ve Y123 örneklerinin 77 K sıcaklığındaki kritik akım yoğunluğunun (J_c) manyetik alana göre değişimi	108
Şekil 3.53. 800 °C’de 12 ve 48 saat gadolinyum difüzyonu yapılan Y123 örneklerinin 5 K sıcaklığındaki J_c -H grafikleri	109
Şekil 3.54. 800 °C’de 12 ve 48 saat gadolinyum difüzyonu yapılan Y123 örneklerinin 50 K sıcaklığındaki J_c -H grafikleri	109
Şekil 3.55. Yb900 örneğinin 5, 25, 50, 77 K sıcaklıklarındaki kritik akım yoğunluğunun (J_c) manyetik alana göre değişimi	110
Şekil 3.56. Yb800 örneğinin 5, 25, 50, 77 K sıcaklıklarındaki kritik akım yoğunluğunun (J_c) manyetik alana göre değişimi	110
Şekil 3.57. Yb900 ve Y123 örneklerinin 5 K sıcaklığındaki kritik akım yoğunluğunun (J_c) manyetik alana göre değişimi	111
Şekil 3.58. Yb900 ve Y123 örneklerinin 25 K sıcaklığındaki kritik akım yoğunluğunun (J_c) manyetik alana göre değişimi	111
Şekil 3.59. Yb900 ve Y123 örneklerinin 77 K sıcaklığındaki kritik akım yoğunluğunun (J_c) manyetik alana göre değişimi	112
Şekil 3.60. 800 °C’de 12 ve 48 saat iterbiyum difüzyonu yapılan Y123 örneklerinin 5 K sıcaklığındaki J_c -H grafikleri	112
Şekil 3.61. 800 °C’de 12 ve 48 saat iterbiyum difüzyonu yapılan Y123 örneklerinin 50 K sıcaklığındaki J_c -H grafikleri	113
Şekil 3.62. Gd900, Yb900 ve Y123 örneklerinin 5 K sıcaklığındaki kritik akım yoğunluğunun (J_c) manyetik alana göre değişimi	113

TABLolar DİZİNİ

Sayfa No:

Tablo 1.1. Yüksek sıcaklık oksit süperiletkenlerinin bazı özellikleri.....	31
Tablo 1.2. $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ 'nun (Y123) <i>ab</i> -düzlemi ve <i>c</i> -ekseni yönünde mutlak sıfır sıcaklıktaki süperiletkenlik temel parametreleri: ξ , koherens uzunluğu; λ , manyetik alan girme derinliği; H_c , termodinamik kritik manyetik alan; J_c , kritik akım yoğunluğu; H_{c1} ve H_{c2} ise sırasıyla alt ve üst kritik manyetik alan değerleri (Ginsberg, 1994; Poole, 2000).....	34
Tablo 1.3. YBCO toz yapımında çeşitli toz üretim yöntemlerinin avantaj ve dezavantajları (Pathak ve Mishra, 2005).	36
Tablo 1.4. $(Yb_{1-x},Gd_x)Ba_2Cu_3O_y$ örneklerinin farklı sinterleme sıcaklıklarındaki T_c (başlangıç), T_c (sıfır) ve ΔT_c değerleri (Yokoyama ve Kita, 2004).	42
Tablo 1.5. $D=D_0\exp(-E_a/kT)$ olmak üzere yüksek sıcaklık külçe (bulk) süperiletkenlerinde difüzyon katsayısının, difüzyon tavlama sıcaklığına bağlılığı.....	48
Tablo 2.1. Başlangıç kompozisyonunun hazırlanmasında kullanılan toz bileşimleri ve miktarları.....	49
Tablo 3.1. Farklı difüzyon tavlama sıcaklığında (12 saatlik sabit sürede) gadolinyum ve iterbiyum difüzyonunun Y123 örneğindeki difüzyon parametreleri	69

SEMBOLLER DİZİNİ

a, b, c	: Örgü parametreleri
B	: Numune içindeki indüksiyon (manyetik akı yoğunluğu)
D	: Difüzyon katsayısı
D_0	: Üstel fonksiyon ön çarpanı
E	: Elektrik alan
E_a	: Difüzyon katkı atomu aktivasyon enerjisi
F_L	: Lorentz kuvveti
F_p	: Akı çivileme kuvveti
H	: Dış manyetik alan
H_a	: Uygulanan manyetik alan
H_c	: I. tip süperiletkenlerde termodinamik kritik manyetik alan
H_{c1}	: II. tip süperiletkenlerde alt kritik manyetik alan
H_{c2}	: II. tip süperiletkenlerde üst kritik manyetik alan
$H_{c2}(0)$: Mutlak sıfır sıcaklığındaki üst kritik manyetik alan
H^*	: İlk tam girme alanı
I_c	: Kritik akım
J	: Akım yoğunluğu
J_c	: Kritik akım yoğunluğu
J_s	: Perdeleme kritik akım yoğunluğu
J_t	: İletim kritik akım yoğunluğu
K	: Kelvin
k_B	: Boltzman sabiti
M	: Manyetizasyon
N	: Konsantrasyon
N_0	: Yüzeydeki katkı atomları konsantrasyonu
PPMS	: Fiziksel özellik ölçüm sistemi
R	: Direnç
T	: Sıcaklık
TAFF	: Termal olarak uyarılmış akı akışı

T_c	: Kritik sıcaklık
t	: Difüzyon tavlama süresi
U	: Aktivasyon enerjisi
V	: Gerilim
v	: Akı akış hızı
VSM	: Titreşim örnekleme manyetometre
ZFC	: Manyetik alan yokken soğutma
η	: Viskozite katsayısı
ϕ_0	: Akı kuantumu
κ	: Ginzburg-Landau parametresi
λ	: Girme derinliği
μ_0	: Boşluğun manyetik geçirgenlik katsayısı
ρ	: Özdirenç
ρ_f	: Akı akış özdirenci
ρ_n	: Normal hal özdirenci
ξ	: Koherens (uyum) uzunluğu

1. GENEL BİLGİLER

1.1. Giriş

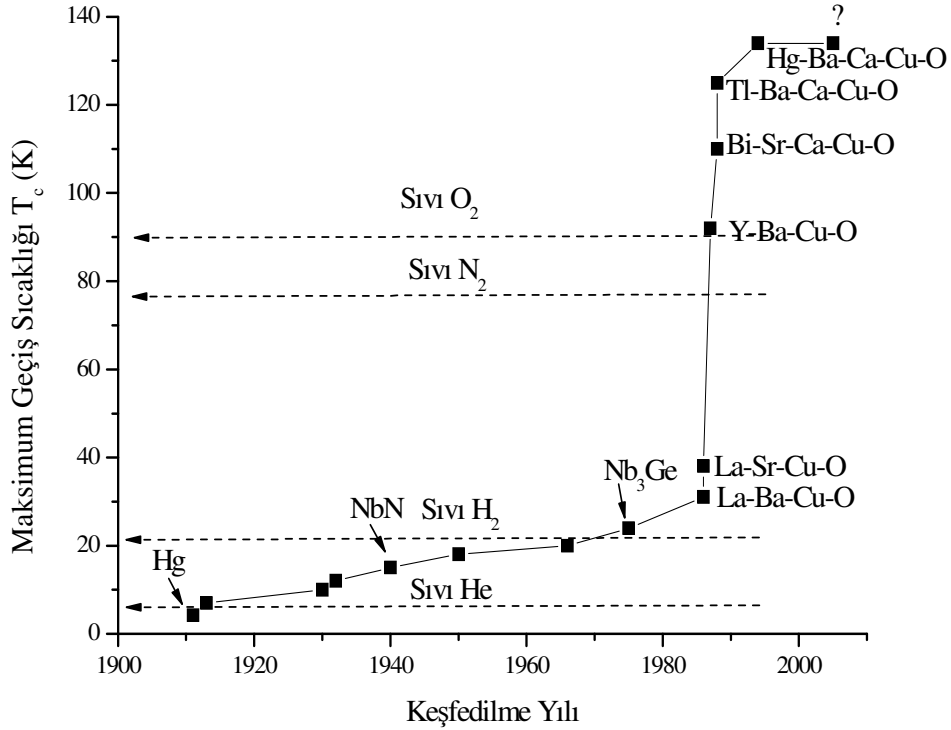
Süperiletkenler, T_c kritik sıcaklık olarak bilinen belli bir sıcaklığın altında sıfır direnç gösteren maddelerdir. Süperiletkenliğin H. K. Onnes tarafından cıvanın sıvı helyum sıcaklığına (4,2 K) soğutulmasıyla ilk kez gözlemlendiği 1911 tarihi, aynı zamanda düşük sıcaklık fizik araştırmalarının da başlangıcı olmuştur (Onnes, 1911). Bu tarihten sonra yapılan çalışmalar çoğunlukla, süperiletkenlik mekanizmasının anlaşılmasına yönelik elektrik ve manyetik özellikleri üzerine olmuştur. W.H. Meissner ve R. Ochsenfeld 1933 yılında süperiletkenlerin manyetik özelliklerini incelediklerinde, manyetik alan altında soğutulan bir süperiletkenin manyetik akıyı dışarıladığını gözlemlediler. Bu olay Meissner olayı olarak bilinir ve ayrıca bu malzemelerin, kritik H_c (T) manyetik alanlarından daha büyük manyetik alanlarda süperiletkenlik özelliklerini kaybettikleri bulunmuştur (Meissner ve Ochsenfeld, 1933).

1950 yılında, Ginzburg ve Landau (GL) normal hal ile süperiletken hal arasında bir düzen parametresinin varlığını kabul eden bir teori ortaya attı. Bu teori, süperiletkenliğin makroskobik bir kuantum durumu olduğunu ileri sürer (Ginzburg ve Kirznits, 1982). Aynı yıllarda pek çok araştırma grubu, özellikle aynı elementin farklı izotoplarının geçiş sıcaklıklarını inceledi ve atomik kütleler arttıkça geçiş sıcaklığının azaldığını buldular. İzotop olayı olarak bilinen bu gözlem, örgü hareketlerinin süperiletkenlik mekanizmasında önemli bir rol oynadığını göstermektedir (elektron-fonon etkileşmesi).

Mikroskobik anlamda Süperiletkenliğin doğası ve kökeni Bardeen, Cooper ve Schrieffer tarafından ilk defa 1957 yılında açıklanmıştır (Bardeen vd., 1957). BCS teorisi olarak bilinen bu teorinin ana teması, iki elektron arasında 'Cooper Çiftleri' olarak bilinen bağlı bir durumun oluşmasıdır. Daha sonraki yıllarda Bean, süperiletkenlerin manyetik özellikleriyle ilgili çalışmalarında, süperiletkenleri karakterize eden kritik akım yoğunluğunun, alınganlık ve manyetizasyon eğrilerinden hesaplanmasıyla ilgili pratik yöntemler ileri sürdü (Bean, 1964).

Yüksek-sıcaklık süperiletkenliğin 1986 yılında Bednorz ve Müller (Bednorz ve Müller, 1986) tarafından geçiş sıcaklığı 30 K olan seramik La-Ba-Cu-O sisteminde bulunması, bu alanda son yıllarda beklenilmeyen ölçüde araştırmaya ve heyecana sebep

olmuştur. 1987 yılında, dünyanın çeşitli yerlerindeki çalışma grupları tarafından 92 K geçiş sıcaklığına sahip itriyum, baryum, bakır ve oksijenden oluşan seramik $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ süperiletkeni bulundu. Bu bileşiğin geçiş sıcaklığının, sıvı azotun kaynama sıcaklığı olan 77 K'nin üzerinde olması daha sonra yapılan süperiletkenlik çalışmalarına büyük bir ivme kazandırmıştır. Araştırmacıların aynı yıllarda, 110 K geçiş sıcaklığına sahip $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10}$ ile 125 K geçiş sıcaklığına sahip $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10}$ seramik süperiletkenlerini bulmaları bu alanda yapılan çalışmaların başarısını göstermektedir. Şekil 1.1, farklı geçiş sıcaklığına sahip süperiletken malzemelerin bulunuşundan günümüze kadar geçirdiği değişimi, yıllara göre vermektedir (Wu vd., 1987; Maeda vd., 1988).



Şekil 1.1. Süperiletkenliğin keşfinden günümüze kadar kritik sıcaklığın yıllara göre değişimi (Doss, 1989).

Günümüzde yüksek-sıcaklık süperiletkenlerinin teknolojide kullanılabilir hale getirilmesi için birçok yeni çalışmalar yapılmaktadır. Malzemelerin mekanik performansının ve süperiletkenlik özelliklerinin iyileştirilmesinde, özellikle malzeme üretim aşamasında; katıhal toz, tüp içinde toz, eritme-yönlendirme-büyütme, kimyasal

reaksiyon ve ince film üretim tekniği gibi birçok yeni yöntem geliştirildi ve kullanıldı. Değişik çalışma grupları bu yöntemlerle üretilen yüksek-sıcaklık süperiletken malzemelerine; Au, Ni, Ag, Fe, Gd, Yb, Zn, Co gibi farklı metalik element katkılama, kimileri de bu elementleri ısı veya elektro-difüzyon yoluyla doping yapmaktadırlar. Bazı araştırmacılar süperiletken bileşiği oluşturan metalik elementlerin stokiometrisinde, bazıları da malzemenin üretimi aşamasındaki ısı işlemlerde ve üretim şartlarında (ortam basıncı ve gaz cinsi gibi) değişiklik yaparak süperiletkenliğin gelişimine katkıda bulunmaktadır.

Yüksek manyetik alan altında yüksek kritik akım yoğunluğuna sahip süperiletkenler teknolojik uygulamalarda oldukça yaygın olarak kullanılmaktadır. YBCO süperiletkenlerinde Y yerine nadir toprak (RE) elementleri kullanılması (RE = Nd, Sm, Eu, Gd, Yb), kritik akım yoğunluğu ve üretim sıcaklığı yönünden önemlidir (Murakami vd., 1996). Temiz YBCO yapısında Y ile Gd (gadolinium) ve Yb' nin (iterbiyum), Ba ve Y ile Gd'nin (Nishida vd., 2002; Miyachi vd., 2003) yer değiştirmesi literatürde mevcuttur. Ayrıca, büyük iyonik yarıçapa sahip RE elementlerinin yer değiştirmesi, (Y, RE)₁₂₃ ve (Yb, RE)₁₂₃ saf fazlarının oluşumunda ve bu seramik süperiletkenlerin sentezleme sıcaklık aralığının genişlemesinde etkili olmuştur (Yokoyama ve Kita, 2004).

Yüksek T_c süperiletkenlerin çeşitli uygulamalarında, taneler arası zayıf bağ etkisi aşılması gereken bir engel olarak karşımıza çıkmaktadır. Bu engel, özellikle bulk süperiletkenlerde çeşitli ısı işlemler uygulanarak aşılmaya çalışılmıştır. Ayrıca, Süperiletken polikristallerde, tane sınırlarının doğasını iyileştirmede ve dolayısıyla süperiletken özelliklerin gelişiminde, katkı ve yerdeğiştirme mekanizması da önemli rol oynar.

Difüzyon yoluyla katkılama tekniği, iyileştirme özellikleriyle süperiletkenlerin üretimine ve kullanım alanlarına yeni ihtimaller katar. Ayrıca, difüzyon parametreleri ve katkı yerdeğiştirme mekanizması, süperiletkenlerin özelliklerini ve kristal yapısını kontrol etmek için kullanılabilir (Dzhafarov, 1996). Yüksek sıcaklık süperiletkenlerin ortaya çıkışından günümüze kadar YBCO süperiletkenlerinin üretim şartlarını ve fiziksel özelliklerini iyileştirmek için değişik elementlerle (Ag, Ca, Fe, Co vs.) difüzyon çalışmaları yapılmıştır (Berenov vd., 2003; Görür vd., 2005; Dzhafarov vd., 1996).

Bu çalışmanın amacı Yb ve Gd'un termal yolla difüzyonunun, Y123 süperiletkeninin fiziksel ve yapısal özelliklerini hangi oranda değiştirdiğini incelemek ve böylece katkı difüzyon yöntemiyle süperiletkenlik mekanizmasını anlamaya ve süperiletkenlik

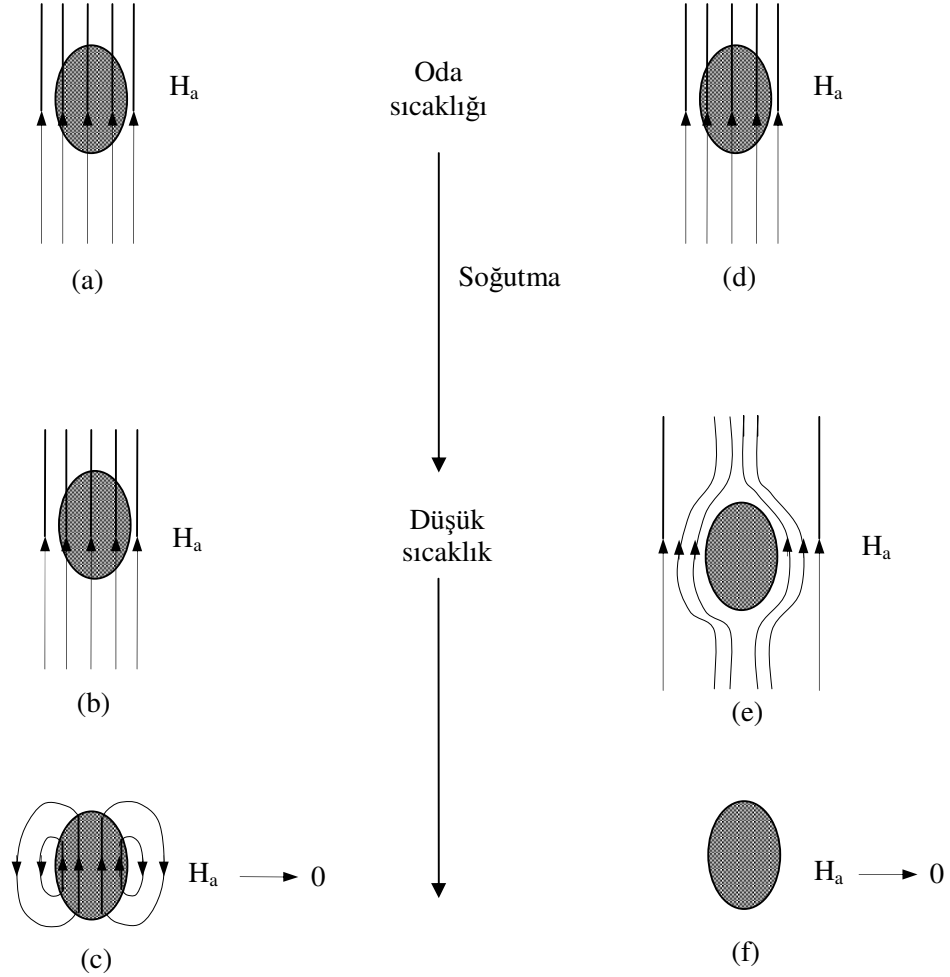
özelliklerini geliştirmeye çalışmaktadır. Çalışmada, Y123 külçe örneği üzerine Gd ve Yb difüzyonu uygulandıktan sonra, difüzyon edilmiş örneklerin yapısal özellikleri X-ışını kırınım analizi ve optik mikroskop ölçümleriyle, elektriksel ve manyetik özellikleri de PPMS (fiziksel özellikler ölçüm sistemi) kullanılarak R-T ve M-H ölçümleri ile incelendi.

1.2. Mükemmel İletkenlik, Süperiletkenlik ve Meissner olayı

Süperiletkenliğin keşfedildiği 1911 yılını izleyen 22 yıl boyunca süperiletkenlik, mükemmel iletkenliğin bir görünümü olarak kabul ediliyordu. Mükemmel bir iletken Şekil 1.2 (a)-(c)'de görüldüğü gibi manyetik alan altında (H_a) direnci sıfır olacak şekilde soğutulmuş olsun. Direncin sıfır olmasının manyetizasyon üzerine hiçbir etkisi olmaz ve akı dağılımı örnek içerisinde değişmeden kalır. Daha sonra uygulanan manyetik alan sıfır yapılırsa, mükemmel iletken metal içerisindeki akı yoğunluğunun değişmemesi için, örnek üzerinde sürekli akımlar oluşur ve bunun sonucunda da örnek sürekli manyetik özellik kazanır (Şekil 1.2 (c)). Başka bir deyişle mükemmel bir iletken, manyetik alan uygulanmışken kritik sıcaklığın altına kadar soğutulursa, alan kaldırıldıktan sonra bile iletkenin içerisinde manyetik alan tuzaklanır. Mükemmel bir iletken için denge termodinamiği uygulanamaz. Bunun nedeni, maddenin manyetik alandaki son halinin, önce alan uygulanıp sonra soğutulduğu namı, yoksa kritik sıcaklığın altına kadar soğutulup daha sonra alan uygulandığına mı bağlı olmasıdır. Süperiletkenler için beklenen durum, maddenin son hali bu işlemlerin yapılaş sırasına bağlı olduğundan, alan T_c 'nin altına soğutulduktan sonra uygulanırsa, alanın süperiletkenden dışarlanması gerekir şeklindedir. Diğer taraftan, önce alan uygulanıp sonra T_c nin altına soğutulursa, alanın süperiletkenden, mükemmel iletkende olduğu gibi dışarlanmaması gerekir şeklindedir.

Süperiletkenlerin manyetik özelliklerinin anlaşılmasıyla ilgili 1933 lı yıllarda yapılan deneyler farklı sonuçlar vermiştir. Meissner ve Ochsenfeld'in yaptığı deneyde, zayıf bir manyetik alanda (H_a) soğutulan metal süperiletken olduğunda, madde içinde her noktada manyetik alan sıfır olacak şekilde ($\mathbf{B} = 0$) uygulanan alanın dışarılandığını keşfettiler (Şekil 1.2 (d)-(f)). Böylece alan, ister süperiletken madde kritik sıcaklığın altına soğutulmadan önce, ister soğutulduktan sonra uygulanmış olsun, aynı $\mathbf{B} = 0$ durumuna erişildiği bulunmuş oldu. Sıcaklık T_c den büyük iken, uygulanan alan Şekil 1.2 (d)'de görüldüğü gibi tüm örneğe nüfuz etmektedir. Bununla beraber, sıcaklık T_c nin altına düşürüldüğünde, alan çizgilerinin Şekil 1.2 (e)'deki gibi süperiletkenin iç noktalarından uzaklaştırıldığı

görülmektedir. Bu duruma, örnek içerisindeki alanı sıfırlamak için zıt yönde alan oluşturan ve örnek yüzeyinde oluşan perdeleme akımları sebep olur. Beklenildiği gibi dış alan kaldırıldığında yüzey akımları da ortadan kaybolur.



Şekil 1.2. Mükemmel bir iletkenin H_a dış manyetik alan altında soğutulması (a), (b) ve $H_a = 0$ yapılması durumunda (c) manyetik alan davranışı. I. tip süperiletkenin H_a dış manyetik alan altında soğutulması (d), (e) ve $H_a = 0$ yapılması durumunda (f) manyetik alan davranışı

Şekil 1.2 (d)-(f) de anlatılanlar I. tip olarak tanımlanan süperiletkenlerin özellikleri olup bu maddeler özdirenci $\rho = 0$ karşılık gelen mükemmel bir iletken olmanın ötesinde, aynı zamanda $\mathbf{B} = 0$ olan mükemmel diamanyetik maddelerdir. Manyetik alanın

süperiletkenden dışarlanması olayı ‘Meissner Olayı’ olarak bilinmektedir. I. tip süperiletken içinde $\mathbf{B} = 0$ olması, bu maddenin direncinin sıfır olması kadar temel bir olgudur. Meissner olayı, elektrik ve manyetizma kanunlarına dayanan basit tartışmalarla bile açıklanabilir. Ohm kanununa göre, bir iletken içerisindeki elektrik alan, o iletkenin öz direnci ile orantılıdır ve bu ifade aşağıda gibi yazılabilir;

$$\mathbf{E} = \rho \mathbf{J} \quad (1.1)$$

Burada, \mathbf{E} elektrik alanı, ρ öz direnci ve \mathbf{J} elektriksel akım yoğunluğunu göstermektedir. Dolayısı ile bir süperiletken için $\rho = 0$ olduğundan, süperiletken içerisinde elektrik alan da sıfır olmak zorundadır. Aşağıdaki Maxwell denkleminden,

$$\text{curl } \mathbf{E} = -\partial \mathbf{B} / \partial t \quad (1.2)$$

ve yukarıdaki ifadeden $-\partial \mathbf{B} / \partial t = 0$ elde edilir. Buradan süperiletken içerisindeki manyetik alanın zamanla değişmeyeceği sonucu çıkar. Bir dış manyetik alan altında soğutulan süperiletken numunenin alana karşı davranışı mükemmel iletkenlerden farklı olacaktır. Başlangıçta numune içerisinde alan mevcut iken, son durumda sıfır olmak zorundadır. Soğutma ve alan uygulama olaylarının sırasına bakılmaksızın numunenin aynı termodinamik durumda olması süperiletken içindeki alanın dışarlanması ile mümkün olur (Rose ve Rhoderick, 1980; Cyrot ve Pavuna, 1992).

1.3. Süperiletkenlikte Temel Nicelikler

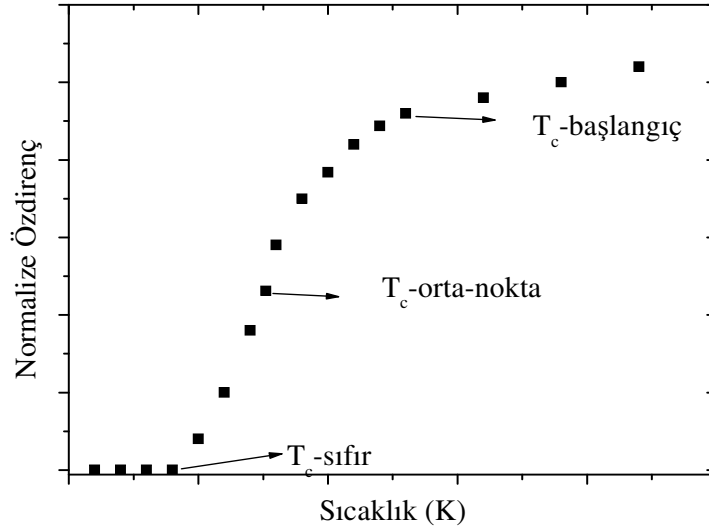
1.3.1. Kritik Sıcaklık

Kritik sıcaklık veya süperiletkenliğe geçiş sıcaklığı, süperiletken bir malzemenin düşük sıcaklıklara soğutulmasıyla direncini kaybettiği sıcaklık olup T_c ile gösterilir.

Manyetik safsızlıklar geçiş sıcaklığını düşürmesine rağmen (elektron spinlerinin paralel düzenlendiği ferromanyetik özellik ile süperiletken özellik birbiriyle bağdaşmaz), genel olarak geçiş sıcaklığı küçük miktardaki safsızlığa duyarlı değildir. Saf metallerin tümü süperiletken özellik göstermez; örneğin bakır, demir ve sodyum ulaşılan en düşük sıcaklığa soğutulduğunda bile süperiletkenlik göstermemişlerdir. Bununla beraber,

süperiletkenlik nadir bir olay değildir; metalik elementlerin yaklaşık yarısı ve alaşımların büyük çoğunluğu süperiletken özellik gösterirler.

Bir malzemenin metal-süperiletken geçiş durumu için iki önemli aşama vardır. Bunlar, taneli yapının karakteristik yapısal özelliği olan taneler ve taneler arası bağlanmalardan kaynaklanan etkileşimlerdir. Soğuma işlemi yapılan malzemede, süperiletkenliğe ilk geçiş yapan tanelerdir ve birinci aşamada tanelerden ileri gelen geçiş sıcaklığı görülür. Tanelerin süperiletken olmasıyla geçişin başladığı ve malzemenin direncini kaybetmeye başladığı ilk geçiş sıcaklığı başlangıç kritik sıcaklığı (T_c -başlangıç) olarak adlandırılır. Soğumayla tanelerin tamamen süperiletken olduğu ve taneler arası etkileşmeden kaynaklanan geçişin başladığı sıcaklık, orta-nokta kritik sıcaklığı (T_c -orta nokta) olarak adlandırılır. Malzemenin tamamının süperiletken geçişinin tamamlandığı ve direncini tamamen kaybettiği sıcaklık, sıfır direnç geçiş sıcaklığı (T_c -sıfır) olarak adlandırılır (Şekil 1.3).



Şekil 1.3. Süperiletkenliğe geçiş kritik sıcaklıkları

1.3.2. Nüfuz Derinliği

Süperiletkenlerde (I. tip), numune içerisinde mükemmel diamanyetik özellik yüzey akımlarıyla oluşur. Diğer taraftan akım yalnızca yüzeyde oluşur şeklinde sınırlandırılmaz. Akımın sadece yüzeyde olması, akım tabakasının belli bir kalınlığa sahip olmaması ve akım yoğunluğunun sonsuz olması demektir ki bu durum fiziksel olarak mümkün değildir.

Gerçekte ise akım, farklı metallere değişik değerler almasına karşın yaklaşık 10-100 nm kalınlığa sahip ince bir yüzey tabakasında akar. Bu durumda akı yoğunluğu metalin sınırında aniden sıfıra düşmez, bunun yerine akı perdeleyici yüzey akımlarının aktığı bölgede yavaş yavaş ortadan kalkar. Süper akımların (perdeleyici akımlar) numunede aktığı kalınlık manyetik alanın nüfuz derinliği (λ) olarak adlandırılır. Numune yüzeyine paralel uygulanan akı yoğunluğunun Yarı-sonsuz dikdörtgenler prizması şeklindeki bir süperiletken içinde, numune yüzeyinden olan x uzaklığı ile değişimi Şekil 1.4 de verilmektedir. Metal içindeki akı yoğunluğu x mesafesinde $B(x)$ değerine düşerse bu durumda λ nüfuz derinliği,

$$B(x)dx = \lambda B(0) \quad (1.3)$$

ifadesiyle belirlenir. Burada $B(0)$ metalin yüzeyindeki akı yoğunluğudur. Başka bir deyişle dış alanın akı yoğunluğu metalin içindeki bir λ mesafesinde sabit kalırsa, süperiletken içinde de aynı miktarda akı olur.

Süperiletkenliğin London teorisi, nüfuz derinliğinden daha kalın bir numunedeki manyetik akı yoğunluğunun metale nüfuzunun, konumla üstel olarak azaldığını öngörür ve bu matematiksel olarak;

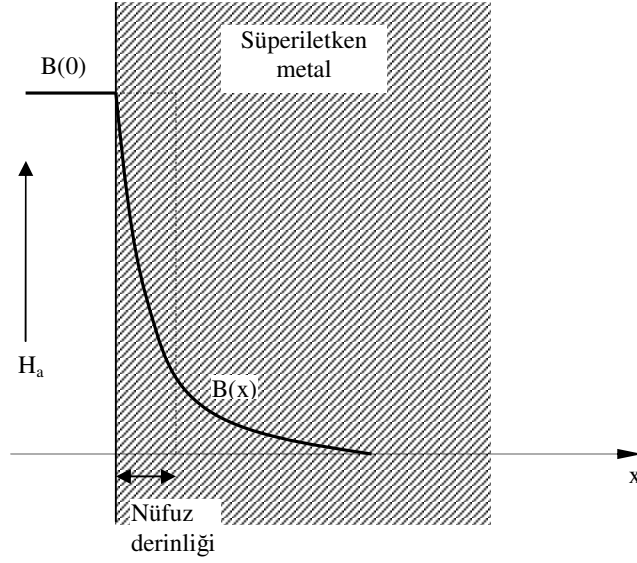
$$B(x) = B(0)e^{-x/\lambda} \quad (1.4)$$

şeklinde ifade edilir. Ancak basit hesaplamalarda, uygulanan alanın $B(0)$ akı yoğunluğunun metalin içine doğru belli bir λ mesafesinde sabit kalması ve aniden sıfıra düşmesi yaklaşımının kullanılması genellikle yeterli olmaktadır. Alanın nüfuz etmesi olayı, özellikle ince film ya da ince toz süperiletkenlerle çalışırken önem kazanır. Örneğin, film kalınlığı λ mertebesinde veya bu değerden küçükse, uygulanan alan numunenin tamamına kolaylıkla nüfuz eder ve böylece akı dışarlanması tam olmaz.

Nüfuz derinliği sabit bir değere sahip değildir ve sıcaklıkla,

$$\lambda(T) = \lambda_0 \left[1 - \left(\frac{T}{T_c} \right)^4 \right]^{\frac{1}{2}} \quad (1.5)$$

ifadesiyle deęişir. Düşük sıcaklıklarda nüfuz derinlięi sıcaklıktan hemen hemen bağımsızdır ve metallerin karakteristik deęeri olan $\lambda(0)$ (0 K'de λ deęeri) deęerine sahiptir. Sıcaklık, süperiletkenin kritik sıcaklığına yaklaştıkça, uygulanan bir alan madde içinde daha derin noktalara nüfuz eder ve sonuçta alan tüm numuneyi kapsayarak onun normal hale gelmesini sağlar (Müller ve Ustinov, 1997).



Şekil 1.4. Manyetik akının süperiletken yüzeyinden içeri nüfuz etmesi

1.3.3. Uyum (Koherens) Uzunluęu

Süperiletkenlerle ilgili önemli parametrelerden birisi de uyum (koherens) uzunluęu olarak bilinen ξ dir. Uyum uzunluęu, üzerinde süperiletkenlięin oluşturulabildięi veya yok edilebildięi en küçük boyut olarak düşünülebilir. Ayrıca, uyum uzunluęuna üzerinde Cooper çiftindeki elektronların birlikte kalabildięi uzunluk olarak da bakılabilir. BCS teorisinde uyum uzunluęu, Cooper çiftindeki iki elektronun birbirleri ile baęlı olarak kaldıęı mesafe ile doğrudan ilgilidir.

Uyum uzunluęu, nüfuz derinlięinden büyükse madde I. tip bir süperiletkendir ve pek çok metalik süperiletken bu gruba girmektedir. Dięer taraftan λ/ξ oranındaki bir artma, II. tip süperiletkenlięi öne çıkarır. Ayrıntılı analizler, uyum uzunluęu ve nüfuz derinlięinin, normal bir metalin elektronlarının ortalama serbest yoluna baęlı olduęunu göstermiştir.

Bir metaldeki ortalama serbest yol, metale safsızlıklar katılarak kısaltılabilir. Metale safsızlıklar eklendikçe, nüfuz etme derinliği artar, uyum uzunluğu azalır. Bu şekilde, bir metale başka bir metal ekleyerek metalin I. tipten II. tip süperiletkene geçişi sağlanabilir. Sözelimi saf kurşun I. tip bir süperiletken olmasına rağmen, ağırlık olarak % 2 indiyum eklenmesiyle, T_c de önemli bir değişiklik olmadan II. tip süperiletkene dönüştürülebilir. Saf bir süperiletken içindeki uyum uzunluğu ξ_0 olmak üzere uyum uzunluğunun sıcaklığa bağıllığı,

$$\xi \approx \frac{\xi_0}{\left(1 - \frac{T}{T_c}\right)^{1/2}} \quad (1.6)$$

ifadesiyle verilir (Hook ve Hall, 1990).

1.3.4. Kritik Akım (I_c)

Süperiletkenlik üzerine yapılan çalışmalarda, numune yüzeyinde nüfuz derinliğinde dirençsiz akan akımı sınırlayan bir üst limit vardır ve değer kritik akım olarak adlandırılır. Kritik akım, süperiletkenlerin önemli karakteristik özelliklerinden biridir ve I_c ile gösterilir. Kritik akımı şiddeti numune geometrisine ve numunenin yapısal özelliklerine bağlıdır. Akım şiddeti bu kritik değeri aşarsa direnç ortaya çıkar.

Genelde bir süperiletkenin yüzeyindeki akıma iki katkı olabilir. Örneğin, batarya gibi dış kaynak vasıtasıyla süperiletken tel boyunca geçirilen akım ele alınsın. Bu akım, yükleri telin içine ve dışına taşıdığı için, iletim (transport) akımı olarak adlandırılır. Tel, uygulanan bir manyetik alan içerisinde ise perdeleyici akımlar metalin içindeki akı yoğunluğunu yok edecek şekilde dolanırlar. Bu perdeleyici akımlar, iletim akımının üzerine ilave olurlar ve herhangi bir noktadaki akım yoğunluğu \vec{J} ; iletim akımından kaynaklanan \vec{J}_t ve perdeleyici akımlardan kaynaklanan \vec{J}_s akım yoğunluğu bileşenlerinin $\vec{J} = \vec{J}_t + \vec{J}_s$ şeklinde verilen toplam ifadesinden bulunur. Herhangi bir noktadaki toplam akım yoğunluğu \vec{J} 'nin büyüklüğü, kritik akım yoğunluğu \vec{J}_c değerini aşarsa süperiletkenlik bozulur.

Süperiletken üzerinde akan toplam akım yeterince büyükse, numune yüzeyindeki akım yoğunluğu \vec{J}_c kritik değerine ulaşacak ve böylece yüzeyde bununla ilişkili manyetik alan şiddeti de H_c değerine sahip olacaktır. Bunun tersi durumda, yüzeydeki bir H_c

manyetik alan şiddeti daima yüzey süperakım yoğunluğu \vec{J}_c ile ilişkilidir. Bu şu genel hipotezi üretir; yüzeydeki herhangi bir noktada, iletim akımı ve uygulanan manyetik alandan kaynaklanan toplam manyetik alan şiddeti, kritik alan şiddet H_c 'yi aştığında süperiletken sıfır direncini kaybeder (Rose ve Rhoderick, 1980). Bu durumda, süperiletkenin bir parçası boyunca direnç oluşturmaksızın geçirilebilecek maksimum iletim akımı, bu parçanın kritik akımının ne olduğuna bağlıdır. Açıkça, uygulanan manyetik alan ne kadar büyük ise kritik akım o kadar küçük olacaktır denilebilir.

Kritik manyetik alan şiddeti H_c 'nin sıcaklığa bağlı olduğu, sıcaklık arttıkça değerinin azaldığı ve geçiş sıcaklığı T_c 'de sıfıra düştüğü bilinmektedir. Bu, kritik akım yoğunluğunun da sıcaklığa benzer şekilde bağlı olduğunu dolayısıyla kritik akım yoğunluğunun yüksek sıcaklıklarda azaldığını ifade eder. Bunun tersi durumda, akım geçiren bir süperiletkenin geçiş sıcaklığının azaldığı görülür.

1.3.5. Termodinamik Kritik Alan (H_c)

Bulk bir süperiletkenin önemli bir manyetik karakteristiği termodinamik kritik alandır ve H_c ile gösterilir. Meissner olayının keşfi ile Fritz ve Heinr London, I. tip süperiletkenler için denge termodinamiğine dayanan bazı ifadeler geliştirdiler ve böylece kritik manyetik alanı da enerji kavramından hareketle açıkladılar. Bunun için, normal halde süperiletkene nüfuz edebilen akımın, süperiletken halde iken dışarlanmasında ortaya çıkan enerji artırımını kullandılar. Denge hali termodinamiğine göre, bir sistem serbest enerjisini en düşük yapan halde bulunmak isteyeceğinden, süperiletken halin serbest enerjisi, normal halin serbest enerjisine göre daha düşük olmalıdır. E_s , süperiletken halin; E_n de normal halin birim hacim başına düşen serbest enerjilerini göstermek üzere, T_c 'nin altında $E_s < E_n$ olur. B'nin dışarlanması, süperiletken halin birim hacim başına toplam serbest enerjisinin $(\mu_0 H_c^2)/2$ kadar artmasına neden olur ve bu durumda termodinamik kritik alan değeri,

$$E_s + \frac{\mu_0 H_c^2}{2} = E_n \quad (1.7)$$

eşitliği ile tanımlanır. Uygulanan manyetik alan H_c değerini aştığında, süperiletkenlik ortadan kalkar ve söz konusu madde sanki direnci olan normal bir iletken gibi davranır.

$H_c(0)$ mutlak sıfırdaki kritik alan olmak üzere, kritik manyetik alan H_c 'nin sıcaklığa bağılılığı,

$$H_c(T) = H_c(0) \left[1 - \left(\frac{T}{T_c} \right)^2 \right] \quad (1.8)$$

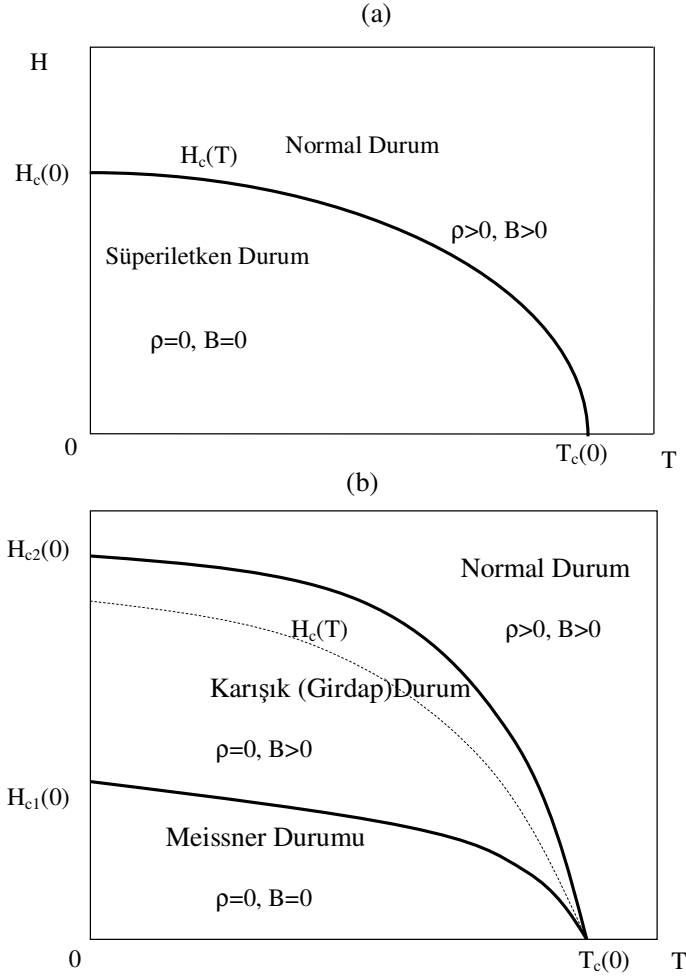
eşitliğiyle ifade edilir (Seeber, 1998; Rose ve Rhoderick, 1980). $H_c(0)$ değeri, verilen bir malzemede süperiletkenliğin ortadan kaldırılması için gereken maksimum alan olarak da tanımlanır. I. tip süperiletkenler için $H_c(0)$ değeri oldukça düşük olup genelde $0,2 T$ 'nin altındadır. Her süperiletken kendi H_c ve T_c değerleri ile karakterize edilir. H_c nin sıcaklığa bağılılığı şematik olarak Şekil 1.5 (a)'da verilmektedir.

1.4. I. ve II. Tip Süperiletkenler

Manyetik alan davranışları ile ayırt edilebilen iki tip süperiletken vardır ve bunlar I. ve II. tip süperiletken olarak adlandırılırlar. Süperiletkenlik özelliği gösteren niyobyum (Nb) ve vanadyum (V) dışındaki tüm metalik elementler I. tip süperiletken sınıfındadırlar. I. tip süperiletkenlerde, uygulanan dış alan $H < H_c(T)$ durumunda, yüzeydeki λ nüfuz derinliği hariç numune içindeki tüm noktalarda manyetik akı dışarlanır. Böylece, nüfuz derinliği ihmal edildiğinde (yaklaşık 100 nm) numune içindeki manyetik akı için,

$$\langle B \rangle = \mu_0(H + \langle M \rangle) \quad (1.9)$$

bağıntısı yazılır. Burada M , manyetizasyon veya birim hacimdeki manyetik moment, μ_0 ise boşluğun manyetik geçirgenliğidir. H_c , numuneyi karakterize eden ve sıcaklığa bağlı kritik manyetik alan olmak üzere, I. tip süperiletkenlerde $H < H_c(T)$ durumunda tüm numune üzerindeki ortalama manyetik akı yoğunluğu $\langle B \rangle = 0$ olacağından (Meissner olayı), 1.9 ifadesinden manyetizasyon için $\langle M \rangle = -H$ ifadesi bulunur. Uygulanan manyetik alan $H > H_c(T)$ eşitsizliğini sağladığında ise numune normal haldedir ($\langle M \rangle = 0$) ve artık $\langle B \rangle = \mu_0 H$ eşitliği geçerlidir. Şekil 1.5 (a), I. tip süperiletkenler, Şekil 1.5 (b) ise II. tip süperiletkenler için manyetik alanın sıcaklığa göre (H-T) faz diyagramını göstermektedir.



Şekil 1.5. (a) I. tip ve (b) II. tip süperiletken için kritik manyetik alanın sıcaklıkla değişimini gösteren faz diyagramı

Süperiletkenlerde nüfuz derinliğinin, uyum (koherens) uzunluğuna oranı Ginzburg-Landau sabiti ($\kappa = \lambda/\xi$) olarak bilinir ve bu sabit süperiletkenlerin tipini belirlemede önemli bir parametredir. Süperiletkenlerde, $\kappa < 0,71$ oranı için I. tip, $\kappa > 0,71$ için ise II. tip süperiletkenlik söz konusudur.

II. tip süperiletkenlerde iki kritik alan mevcut olup, H_{c1} , H_{c2} sırasıyla alt ve üst kritik alanı temsil ederler. İdeal (tersinir = reversible) II. tip süperiletkenlerde $H < H_{c1}(T)$ iken I. tip süperiletkenlerde olduğu gibi numune mükemmel diyamanyetik özellik gösterir (Meissner durumu) ve bu durumda $\langle B \rangle = 0$ dır. H_{c1} alt kritik alan, manyetik alanda bulunan II. tip bir süperiletkenin enerji yönünden daha uygun olan karışık duruma geçebilmesi için örneğe uygulanması gereken minimum alandır. Karışık durumda; manyetik akı, akı

kuantum değeri $\Phi_0 = h/2e = 2,07 \times 10^{-15} \text{ Tm}^2$ (h Planck sabiti, $2e$ Cooper çifti yükü) olan akı çizgilerinden oluşur (Girdap durum). Ginzburg-Landau sabiti $\kappa = \lambda/\xi$ olmak üzere alt kritik alan,

$$H_{c1} = \frac{\Phi_0}{4\pi\lambda^2} \ln\kappa \quad (1.10)$$

ile verilir. Ayrıca II. tip süperiletkenlerde termodinamik kritik alan H_c ile H_{c1} ve H_{c2} arasında,

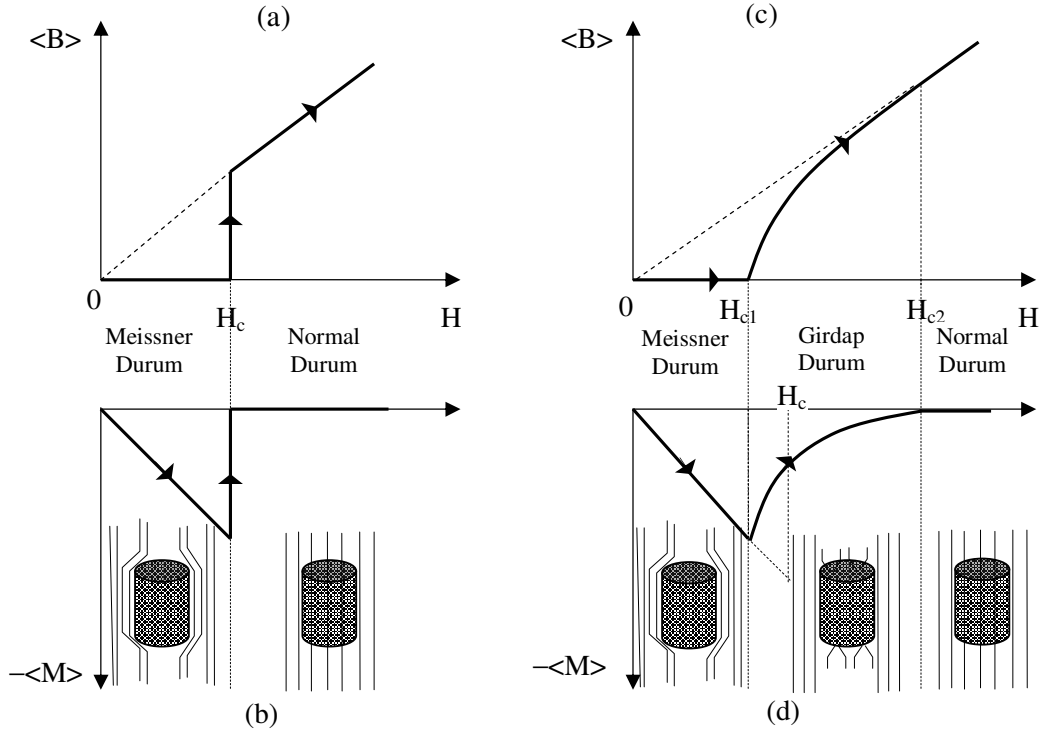
$$H_c = \frac{\Phi_0}{2\sqrt{2}\pi\lambda\xi} \quad (1.11)$$

$$H_{c1} = \frac{H_c \ln\kappa}{\sqrt{2} \ln\kappa}, \text{ ve} \quad (1.12)$$

$$H_{c2} = \frac{\Phi_0}{2\pi\xi^2} \text{ den } H_{c2} = \sqrt{2}\kappa H_c \quad (1.13)$$

ilişkisi vardır (Poole, 2000; Seeber, 1998).

Şekil 1.5 (b)' de görüldüğü gibi uygulanan manyetik alan $H_{c1}(T) < H < H_{c2}(T)$ şartını sağladığında, süperiletkenin karışık halde (mixed state) olduğu söylenir. Karışık halde numune içindeki ortalama manyetik akı yoğunluğu $\langle B \rangle$ artık sıfır değildir ve $\langle B \rangle \leq \mu_0 H$ olan bir denge değerine sahiptir. II. tip bir süperiletken, alt kritik alan şiddeti H_{c1} in üzerinde akı girdaplarından oluşan karışık duruma geçer. Uygulanan alan şiddeti H_{c1} 'i aşarsa, akı göbekleri birbirine yaklaşır ve her göbek belli miktar akı taşıdığından süperiletkenin ortalama akı yoğunluğu artar. II. tip süperiletkenlerde karışık durumdan sonra süperiletkenin normal hale geçtiği yüksek manyetik alan şiddeti, üst kritik alan (H_{c2}) olarak adlandırılır. Şekil 1.6'da I. tip süperiletkenlerde; ortalama manyetik akı yoğunluğunun (a), ortalama manyetizasyonun (b) ve II tip süperiletkenlerde; ortalama manyetik akı yoğunluğunun (c), ortalama manyetizasyonun (d), uygulanan manyetik alana bağıllığı gösterilmiştir.



Şekil 1.6. I. tip süperiletkenlerde; ortalama manyetik akı yoğunluğunun (a), ortalama manyetizasyonunun (b) ve II. tip süperiletkenlerde; ortalama manyetik akı yoğunluğunun (c), ortalama manyetizasyonunun (d), uygulanan manyetik alana bağlılığı

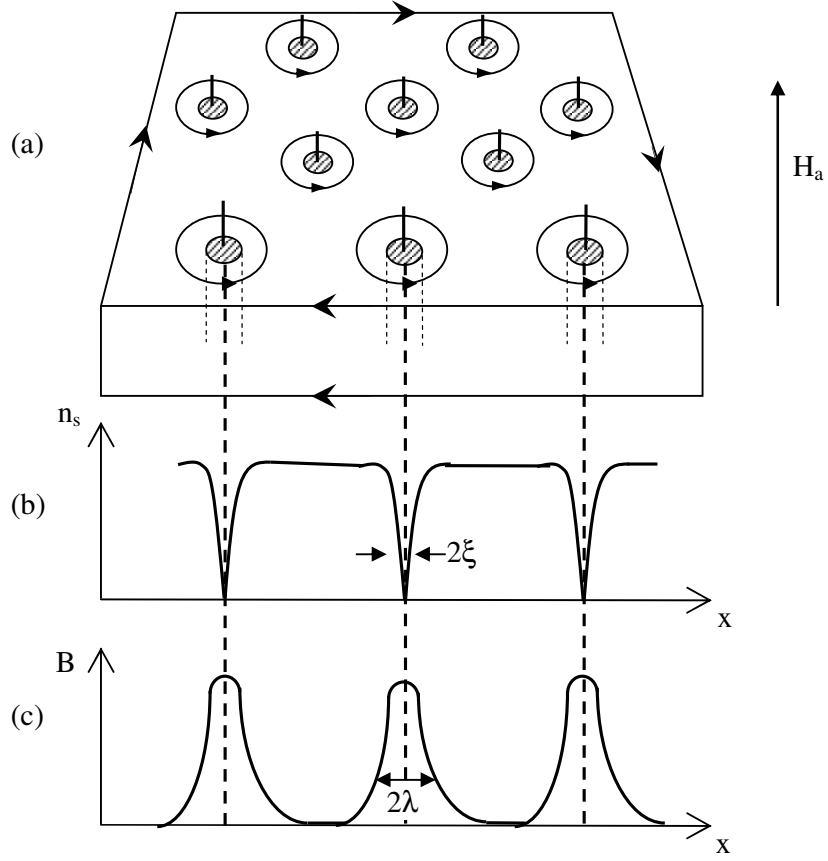
1.5. Karışık Hal (Mixed State)

İdeal diamanyetizmanın oluşum mekanizması, metalde herhangi bir normal ve süperiletken bölgeler arasındaki sınırdaki yüzey enerjisinin varlığını ortaya koyar. Bu yüzey enerjisi, süperiletkenin davranışını belirlemede önemli bir parametredir ve malzemenin I. tip veya II. tip olmasını belirler.

Manyetik alan altındaki bir malzemenin en düşük toplam serbest enerjili duruma sahip olduğu varsayılır. Bu yüzden yeterince negatif yüzey enerjili bir durumda, süperiletken malzemenin minimum serbest enerjili durumu oluşturmak için, çok sayıda normal bölgeler oluşturması beklenir. Düzenlenme, normal malzemenin hacmine göre maksimum sınır alanı verecek şekilde olur. Bunun için elverişli konfigürasyon, manyetik akının uygulanan alana paralel olarak normal malzemenin silindirleri biçiminde süperiletkene girmeye zorlanması halidir. Silindirler normal göbekler (core) olarak isimlendirilirler ve bunlar düzenli girdap örgüsü oluştururlar (Şekil 1.7). Böylece

süperiletken malzeme, sınırları uygulanan manyetik alana paralel uzanan çok küçük ölçekli normal ve süperiletken bölgelerden oluşan karışım haline ayrılır. Bu durum karışık durum olarak adlandırılır. Enerji yönünden elverişli durum, normal göbeklerin oldukça küçük bir yarıçapa sahip olmasını gerektirir; silindirin yarıçapı ne kadar küçük olursa, onun yüzeyinin hacmine oranı o kadar büyük olur. Uygulanan alan sebebiyle oluşan akı, malzemenin yüzeyinde dolanan diamanyetik bir yüzey akımı tarafından engellenir. Bu diamanyetik malzemedeki, uygulanan alana paralel olan normal göbekler oluşur ve her göbeğin içinde uygulanan manyetik alanla aynı yönlü manyetik akı mevcuttur. Göbeklerin içindeki akı, diamanyetik yüzey akımına zıt yönde ve göbeğin etrafında dolanan kalıcı bir akım girdabı (vortex) tarafından oluşturulur. Ayrıca her bir girdap, $\Phi_0 = h/2e$ büyüklüğünde bir manyetik akı (fluxon) taşır.

Normal bir göbek etrafında dolanan girdap akımı, herhangi bir başka göbek ile çevrelenen girdap akımı tarafından üretilen manyetik alan ile etkileşir ve bunun sonucu olarak iki göbek, yani paralel iki akı çizgisi birbirlerini iterler. Bu durum, paralel iki solenoid veya iki çubuk mıknatısın birbirini itmesi olayına biraz benzerlik gösterir. Bu karşılıklı etkileşmeden dolayı, girdap halde süperiletken içindeki göbekler rastgele yayılmazlar ve kendilerini Şekil 1.7'de görüldüğü gibi düzenli bir periyodik hegzagonal (altıgen) düzene sokarlar. Girdap hal için, süperiletken malzeme içerisinde ince silindirik normal göbeklerin oluşması ile verilen anlatım pek çok amaç için yeterli bir yaklaşım olmasına rağmen yapısal detayları henüz tam olarak açıklayamamaktadır. Süperiletken ile normal bölgeler arasında 1.4 ifadesinde verildiği gibi kesin bir sınır yoktur ve manyetik akı, süperiletken bölge içinde nüfuz derinliğiyle üstel olarak azalır. Geçiş, kabaca uyum uzunluğu ξ 'ya eşit olan bir mesafede gerçekleşir. Her bir girdaba eşlik eden manyetik akı, girme derinliği λ 'ya eşit olan bir mesafede malzeme içinde yayılır. Her bir girdabın merkezine doğru, süper elektronların n_s konsantrasyonu yaklaşık ξ mesafesinde sıfır olur ve böylece normal malzemedeki her bir girdabın merkezi oldukça incedir (bir çizgi gibi). Bu durum Şekil 1.7 (b)'de görülmekte olup, süper elektron konsantrasyonundaki çukurlar yaklaşık iki uyum uzunluğu genişliğindedir. Uygulanan manyetik alan sebebiyle oluşan akı yoğunluğu, normal göbekler içinde ihmal edilemez ve göbeklerden uzaklığı yaklaşık λ girme derinliğinde küçük bir değere düşer (Şekil 1.7 c).



Şekil 1.7. H_{c1} 'den büyük şiddette uygulanan alan durumunda karışık hal.
 a-) Göbek örgüsü ve onunla ilişkili girdaplar, b-) süper elektron yoğunluğunun ve c-) akı yoğunluğunun konumla değişimi

II. tip süperiletkenlerde, uygulanan manyetik alan ile sınır bölgedeki serbest enerjiyi düşünerek göbeklerin oluşum mekanizmasını inceleyelim. Her göbekte elektron yoğunluğu n_s azalır ve çiftlerin ayrılması için enerji gereklidir. Bir yaklaşım olarak, her göbek ξ yarıçaplı bir normal malzeme silindiri gibi düşünülebilir. Normal bir göbeğin ortaya çıkması ile elektron yoğunluğundaki azalmadan dolayı, göbeğin birim uzunluk başına $(1/2) \pi \xi^2 \mu_0 H_c^2$ serbest enerjisinde yerel olarak bir artış meydana gelir. Bununla birlikte malzeme yaklaşık λ yarıçapı mesafesinde diamanyetik değildir ve böylece yerel manyetik enerjide birim uzunluk başına H_a uygulanan alanın şiddeti olmak üzere, yaklaşık $(1/2) \pi \lambda^2 \mu_0 H_a^2$ büyüklüğünde bir azalma olur. Böylece, göbek oluşumu ile serbest enerjide bir azalma var ise bu durum $(1/2) \pi \xi^2 \mu_0 H_c^2 < (1/2) \pi \lambda^2 \mu_0 H_a^2$ ile ifade edilir. Bu ifadeye göre,

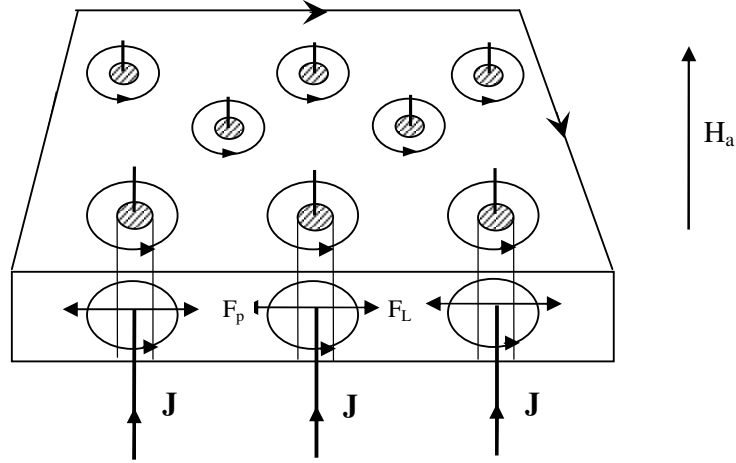
girdap halinde uygulanan alanlar kritik H_c alanından küçük ise $\xi < \lambda$ olur. Bu durum manyetik alan altında karışık haldeki II. tip bir süperiletkenin negatif yüzey enerjisine sahip olduğunu gösterir. Uygulanan alan H_c den küçük olduğunda yüzey enerjisi pozitif ise $\xi > \lambda$ olur ve bu durum I. tip süperiletken özelliği işaret eder (Li, 1998; Rose ve Rhoderick, 1980).

1.6. Tersinir (Reversible) ve Tersinmez (Irreversible) II. Tip Süperiletkenler

Oksitli seramik bileşimler, II. tip süperiletkenlerdir ve bu süperiletkenlerde alt kritik alandan (H_{c1}) daha büyük alanlar kuantumlanmış akı girdapları şeklinde süperiletken içine girerler. II. tip süperiletkenlerin en önemli özelliklerinden birisi, büyük şiddetteki manyetik alan altında dahi, ihmal edilecek kadar küçük dirençle büyük akım taşıyabilme yetenekleridir.

Uygulanan akım Şekil 1.8’de görüldüğü gibi karışık hal durumunda süperiletkenden geçtiği zaman, Lorentz kuvveti (F_L) girdap üzerine etki eder. Süperiletken malzemelerde akı çizgilerinin çivilendiği veya sabitlendiği “ pinning” merkezleri vardır. Malzemeyi karakterize eden birim hacim başına çivileme kuvveti F_p , malzemedeki çivileme merkezleri olarak görev yapan dislokasyonlar; gözenekler; tane sınırları; safsızlıklar vb. gibi çeşitli kusur yoğunluklarıyla orantılıdır. Uygulanan akım yoğunluğu, kritik akım yoğunluğundan büyük olduğunda Sürücü Lorentz kuvveti ($\mathbf{F}_L = \mathbf{J} \times \mathbf{B}$), pinning kuvveti F_p ’yi yener ve bu durumda akı çizgileri hareket ederek enerji kaybı meydana gelir. Isıl aktivasyon olmadığı zaman, akı çizgilerinin hareketi (depinning) için gerekli olan eşik veya kritik akım yoğunluğu $J_{c1}(B, T)$, $J_{c1}B = F_p(B, T)$ ifadesi ile verilir. Buradaki \perp işareti, akım yoğunluğunun, yerel manyetik akı yoğunluğu \mathbf{B} ’ye dik yönde aktığını göstermektedir. Yukarıdaki ifadeden “pinning “ etkisi şiddetlendikçe, “pinning kuvveti” ve dolayısı ile kritik akım yoğunluğunun artacağı görülmektedir. Çivileme (pinning) kuvveti; sıcaklığa, akı çizgisi yoğunluğuna ve çivileme bölgesinin doğasına bağlıdır. Olaya, numune içerisindeki akı çizgisi yoğunluğu açısından bakarsak; uygulanan manyetik alan, $H_a > H_{c1}$ olacak şekilde artırıldığı zaman, akı çizgilerinin hareketi, pinning merkezlerinin varlığından dolayı engellenecek ve numunede akı yoğunluğu gradyanı oluşacaktır. Bu kritik gradyan’ın büyüklüğü, pinning kuvveti F_p ile Lorentz kuvveti F_L arasındaki denge ile ilişkilidir. Maxwell-Amper denklemi, $\nabla \times \mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{J}$ dikkate alındığında, akı yoğunluğundaki kritik gradyan, kritik bir akım yoğunluğuna (J_c) eşlik edecektir. II. tip

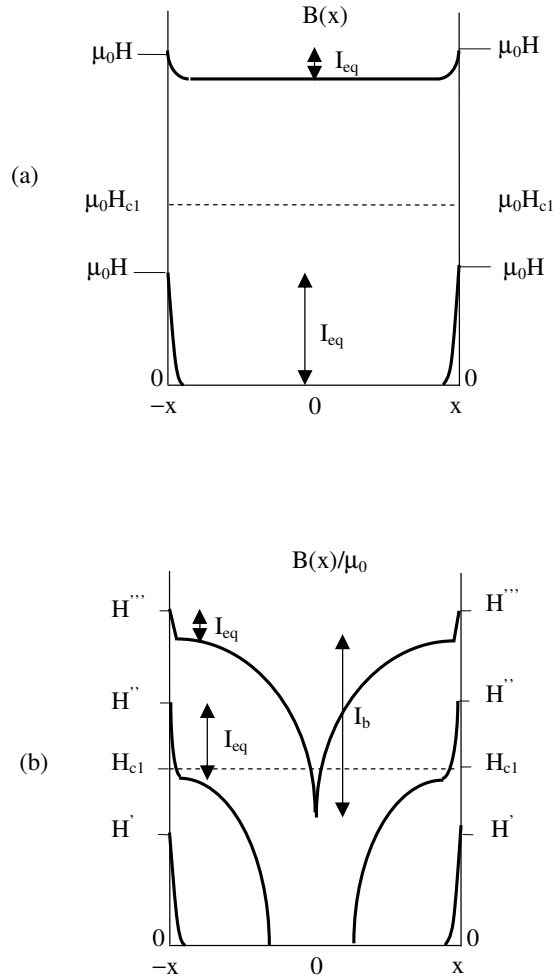
süperiletkenler güçlü çivileme özelliği göstermelerinden dolayı, sıkı (hard) süperiletkenler olarak adlandırılırlar.



Şekil 1.8. Akı girdapları üzerine etkiyen Lorentz ve çivileme kuvveti

Çivileme merkezleri olmayan II. tip süperiletkenlerde, uygulanan manyetik alan artarken elde edilen manyetizasyon eğrisi, manyetik alan azaltılırken elde edilen manyetizasyon eğrisi ile örtüşür. Bu süperiletkenlerde histeresis yoktur ve tersinir (reversible) davranış gözlenir.

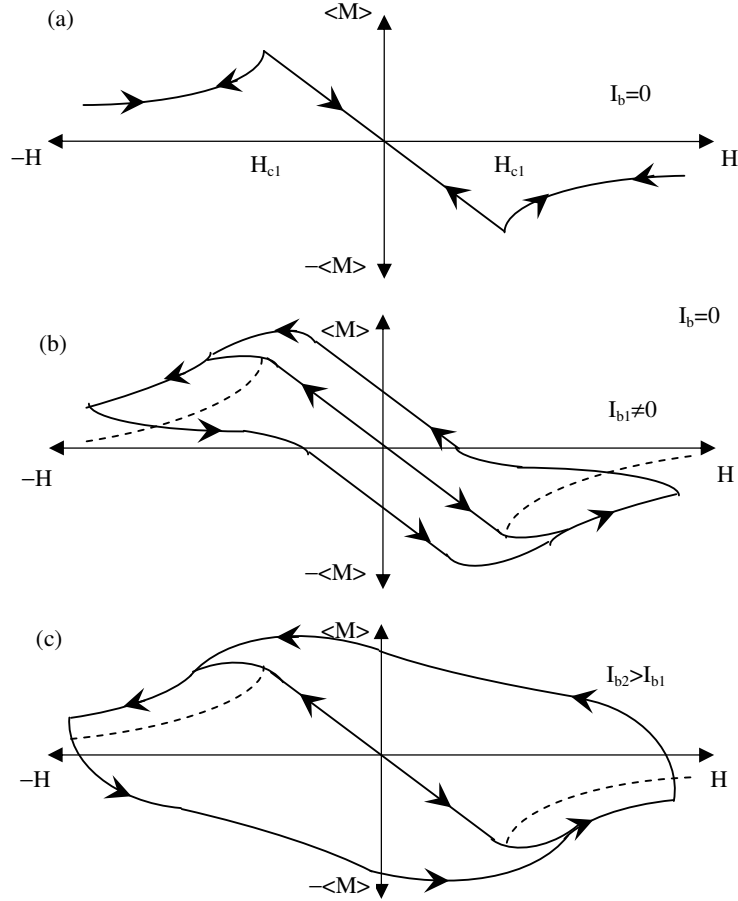
II. tip süperiletkenlerde girdapların hareketi, boşluklar; dislokasyonlar; tane sınırları ve normal bölgeler gibi değişik kusur tipleri vasıtasıyla engellenir. Bu kusurlara çivileme bölgeleri (pinning sites) adı verilir. Kusurlardan girdabı (akı çizgilerini) hareket ettirmek için çivilemeyi sökecek (unpin) F_p eşik kuvvetine ihtiyaç vardır. Böyle malzemelere ideal olmayan veya tersinmez (irreversible) II. tip süperiletkenler adı verilir. Tersinir ve tersinmez süperiletken dilim (slab) şeklindeki bir numunede akı yoğunluğu görüntüsü sırasıyla, Şekil 1.9 (a) ve (b) de verilmektedir.



Şekil 1.9. ZFC işlemi sonrası II. tip süperiletkenlerde, (a) çivileme yok iken (reversible), (b) çivileme var iken (irreversible) manyetik akı yoğunluğu görüntüsü

Tersinir bir süperiletkene sıfır alanda soğutma işleminden sonra (ZFC) Şekil 1.9. (a)'da görüldüğü gibi çeşitli büyüklüklerde manyetik alan uygulansın. Uygulanan alan $0 < H < H_{c1}$ manyetik aralığında ise akının girişine karşı (nüfuz derinliğindeki bölge hariç) mükemmel bir perdeleme meydana gelir. Manyetik alan H , H_{c1} 'in üzerine çıkarıldığında malzemenin yüzeyi boyunca girdaplar oluşur ve malzemeye nüfuz ederler. Tersinir süperiletkenlerde girdaplara etki eden çivileme kuvveti olmadığından girdaplar arası mesafe eşittir (akı gradyanı oluşmaz) ve ortalama akı yoğunluğu numunede her yerde aynı olur. Şekil 1.10 (a)'da ise tersinir bir süperiletkenin manyetizasyon değerinin, alan artarken ve azalırken aynı olduğu görülmektedir. Tersinir özellik gösteren bir malzemedeki

manyetizasyona tersinir manyetizasyon (M_{rev}) adı verilir ve büyüklüğü numunenin yüzeyinde dolaşan birim yükseklikteki akım miktarı I_{eq} 'ya eşittir (Şekil 1.9a).



Şekil 1.10. II. tip süperiletkenlerde (a) çivileme yok iken tersinir (reversible), (b) çivileme olması durumunda yarı-tersinir (semi-reversible) ve (c) şiddetli çivileme olması durumunda tersinmez (irreversible) davranış özelliklerinin $\langle M \rangle$ - H histeresis çevrimleri

Tersinmez II. tip süperiletkenlerde girdaplar, numunenin içinde denge durumu oluşuncaya kadar düzgün bir şekilde yayılamaz. Bunun nedeni, girdap hareketinin çivileme kuvvetleri tarafından engellenmesidir (Çelebi vd., 2000). Bu durumda Şekil 1.9 (b)'de görüldüğü gibi akı çizgisi yoğunluğunda bir gradyant oluşur. Bu gradyanttaki değişimi, çivileme kuvveti yoğunluğu F_p ile Lorentz kuvveti F_L arasındaki denge kontrol eder. Şekil 1.9 (b)'de gösterilen I_b ; çivileme şiddeti ile orantılı, numunenin içinde dolaşan akı

perdeleyici (alan arttırılırken) ve akı tutucu (alan azaltılırken) akımı temsil etmektedir. Akı yoğunluğu profili ne kadar dik olursa, M-H histeresis çevrimi o kadar geniş olacak ve I_b (b , bulk için kullanılmıştır) dolayısıyla kritik akım yoğunluğu J_c o ölçüde büyük olacaktır (Şekil 1.10 c).

Sonuç olarak şunları söylemek mümkündür;

a-) Çivileme yoksa (pinning free), $I_b = 0$, dolayısıyla $J_c = 0$ durumu tersinir II. tip süperiletkenliğe işaret eder (Şekil 1.10 a).

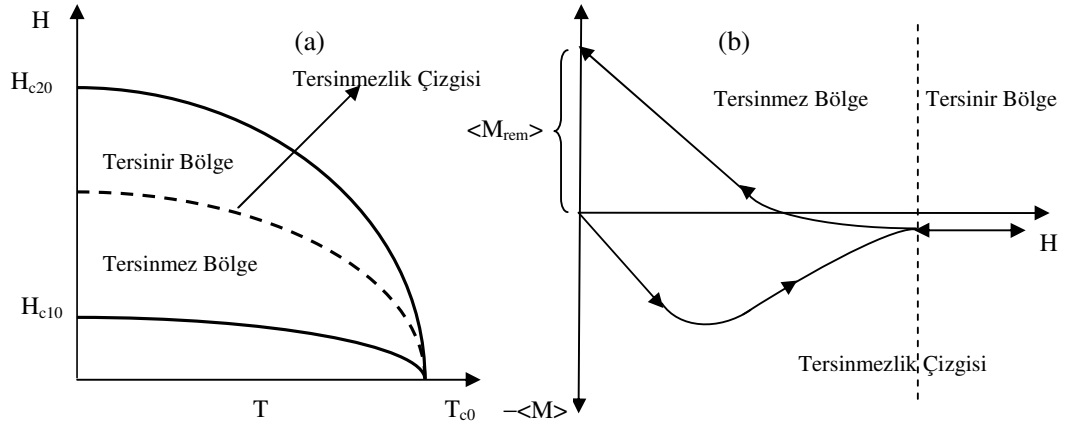
b-) Çivileme şiddeti zayıf, $I_{b1} \neq 0$, dolayısıyla $J_{c1} \neq 0$ durumu yarı-tersinir II. tip süperiletkenliğe işaret eder (Şekil 1.10 b).

c-) Çivileme çok kuvvetli, $I_{b2} \gg I_{b1}$, dolayısıyla $J_{c2} \gg J_{c1}$ durumu tersinmez II. tip süperiletkenliğe işaret eder (Şekil 1.10 c).

1.7. II. Tip Süperiletkenlerde Tersinmezlik (irreversibility) Çizgisi

Geleneksel süperiletkenlerin aksine, yüksek sıcaklık süperiletkenlerinde diamanyetik davranışın görüldüğü fakat kritik akım yoğunluğunun sıfır olduğu ($J_c = 0$) bir bölge vardır. Bu bölgeyi H-T faz diyagramında ayıran çizgiye, tersinmezlik çizgisi denir. Bu çizgi H-T faz diyagramını; biri tersinmezlik çizgisinin üzeri ki burada malzemenin manyetizasyonun tamamen tersinir olduğu ve diğeri tersinmezlik çizgisinin aşağısı ki burada malzemenin histeretik manyetizasyon davranış gösterdiği iki bölgeye ayırır (Şekil 1.11).

Tersinmezlik çizgisi fiziksel olarak, akı çizgilerinin çivilenme etkisinin ortadan kalktığı alana karşılık gelir (Seeber, 1998). Tersinmezlik çizgisi, DC manyetizasyon, AC alınganlık ve öz direnç-sıcaklık ölçümü gibi pek çok deneysel metot ile ölçülebilmektedir (Karaca, 2001).



Şekil 1.11. Yüksek sıcaklık süperiletkenlerinde, a-) H-T ve b-) M-H faz diyagramlarında tersinmezlik çizgisi

1.8. Bean (Kritik Hal) Modeli

Karışık durumdaki II. tip süperiletkenlerde, kritik akımın sabit olduğu ilk kritik hal modelini Bean önerdi (Bean, 1964). Bean kritik hal modeli, tersinmez ikinci tip süperiletkenlerin girdap haldeki elektromanyetik davranışını tanımlar. Bu modelde numune merkezi sıfır, kalınlığı $2X$ olan sonsuz genişlikte dilim (slab) veya yarıçapı R olan sonsuz uzunlukta silindir olarak ele alınır. Manyetik alan dilim yüzeyine (veya silindir eksenine) paralel olarak uygulanmaktadır. Başlangıç şartı olarak $H_{c1} = 0$ alınırsa ($H_a = H_s$ Meissner olayından gelen katkı ihmal ediliyor), aşağıdaki Maxwell denkleminde örneğe nüfuz eden akı yoğunluğu eğiminin J_c 'ye eşit olduğu görülür.

$$\nabla \times \mathbf{H} = \mathbf{J}_c \quad (1.14)$$

$$\frac{d\mathbf{H}}{dx} = \pm \mathbf{J}_c \quad (1.15)$$

Şekil 1.12'de dilim veya silindir geometrisi için Bean modelinin şematik gösterimi verilmektedir. Şekil 1.12 (a) da alan yok iken soğutulmuş örneğe manyetik alan uygulanması, $H_a = 2H^*$ değerine kadar arttırılması ve devamında alanın sıfıra düşürülerek

daha sonra zıt yönde alan uygulanmasına karşılık gelen manyetizasyon histeresis eğrisi görülmektedir. Burada H^* , malzemenin tamamında akımın dolaşması için uygulanması gereken en düşük alandır ve ilk tam girme alanı (first full penetration field) adını alır. Bu modelde kritik akım yoğunluğu sabit ve uygulanan alandan bağımsız olduğu kabul edilir. Şekil 1.12 (b) ve (c) akı yoğunluğu görüntüsünü, (d) ve (e) ise akım yoğunluğunun numune boyutuna göre değişimini göstermektedir.

Birim hacim başına manyetizasyon $\langle M \rangle$, dilim ve silindir geometrileri için sırasıyla (1.16) ve (1.17) denklemleriyle verilir.

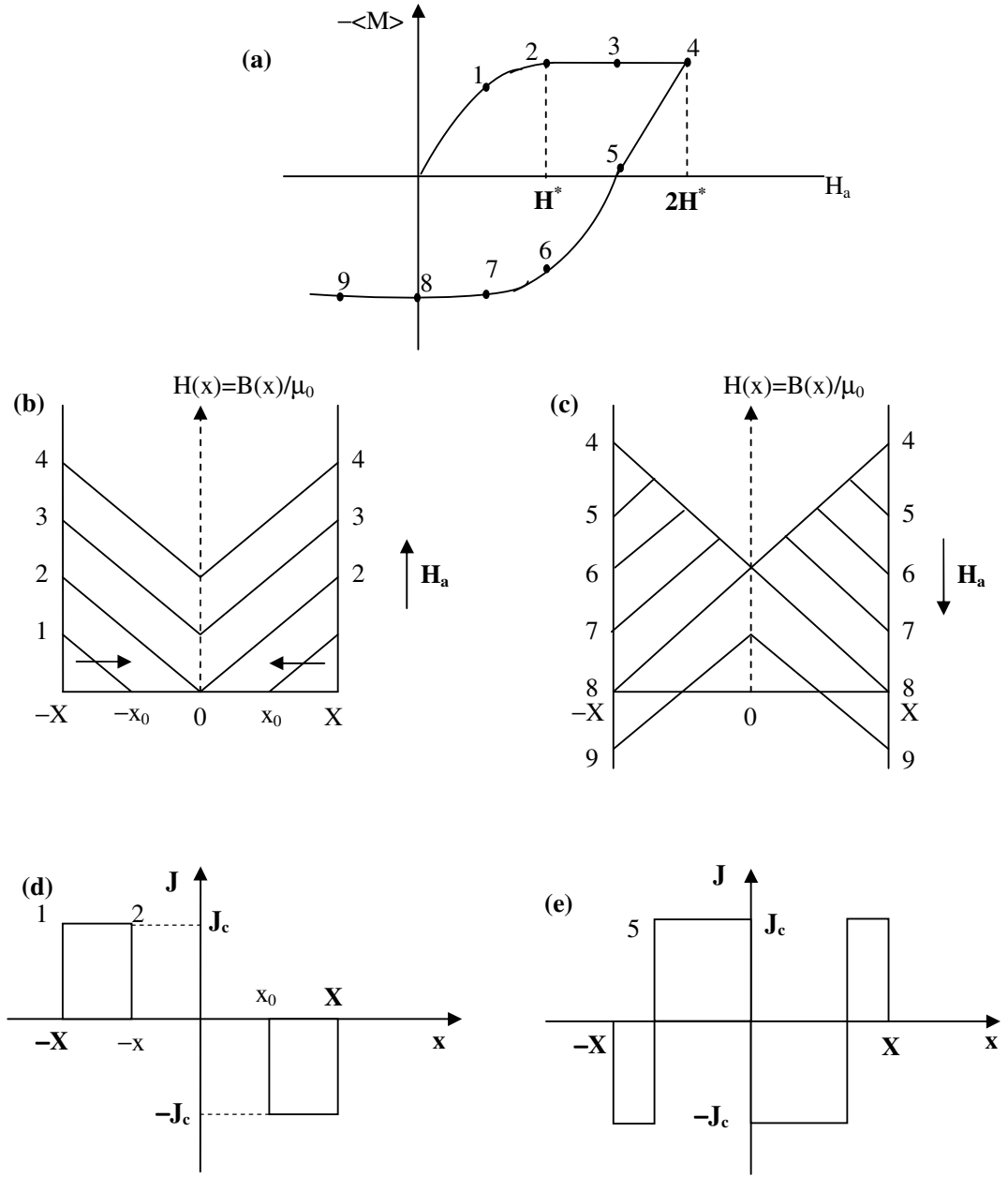
$$\langle M \rangle = \frac{1}{X} \int H(x) dx - H_a \quad (1.16)$$

$$\langle M \rangle = \frac{2\pi}{\pi R^2} \int H(r) r dr - H_a \quad (1.17)$$

Bu denklemlerdeki $H(x)$, $H(r)$ değerleri ve integralin sınırları, alan arttırılırken veya azaltılırken akı yoğunluğu görüntüsünün alacağı şekle göre belirlenir.

Manyetik alanın örneğe x_0 değerine kadar nüfuz ettiği düşünülürse, $H = J_c(X - x_0)$ olur. Bu durumda numunedeki ilk tam girme alanı H^* için, $H^* = J_c X$ ifadesi elde edilir. Bu ifade H^* 'in kritik akım yoğunluğunun yanı sıra, numune geometrisinin de bir fonksiyonu olduğunu gösterir (Narlikar, 2000).

Bean modelinde kritik akım yoğunluğu J_c , hem DC hem de AC manyetizasyon ölçümlerinden elde edilebilir. DC ölçümlerinde, ΔM histeresis ilmeğinin genişliği J_c ile orantılıdır ve SI birim sisteminde $J_c = \Delta M / X$ (A/m^2) ifadesiyle verilir. AC ölçümlerinde, W alan çevrimi başına birim hacimdeki histeresis kaybı olmak üzere sanal temel alınganlık bileşeni χ'' ($\chi = \chi' + i\chi''$) histeretik kayıplar ile orantılıdır ($\chi'' \propto W \propto \int H dM$) ve χ'' analizinden J_c hesaplanabilir.



Şekil 1.12. Silindir geometrisi için Bean Modeli'nin şematik gösterimi. (a) Manyetizasyonun uygulanan alanla değişimi. Uygulanan alan ilk tam nüfuz alanına ulaştığında ($H_a = H^*$), manyetizasyon eğrisi sabit bir değer almaktadır. Akı çizgilerinin (b) girmesini, (c) terk etmesini gösteren akı profilleri (şekildeki rakamlar (a)'da görülen manyetizasyon eğrisindeki rakamlara karşılık gelmektedir). (d) Akı nüfuzu, (e) akı çıkışı esnasında numunede dolaşan kritik akım

1.9. Akı Akışı

H_{c1} 'den büyük şiddette, akıma dik yönde uygulanan bir manyetik alan altında, belli uzunluktaki II. tip bir süperiletkeni göz önüne alalım. Numuneden bir akım geçirildiğinde, her noktada belli bir iletim kritik akım yoğunluğu \mathbf{J} oluşacaktır. Fakat süperiletken karışık halde olduğundan, numune içinden normal göbüklerle ilişkili manyetik akı geçecektir. Bu durumda oluşan akı ve akım arasında bir elektromanyetik kuvvet (Lorentz kuvveti) oluşacaktır. Buradaki kuvvet, iletim akımını taşıyan elektronlar ile göbüklerde akıyı oluşturan girdaplara tesir etmektedir. Böylece her girdap üzerinde, hem iletim akımının yönüne ve hem de akı yönüne dik yönde bir F_L Lorentz kuvveti oluşacaktır.

Şimdi, kritik akımdan daha büyük bir akımın bulunduğu durumda özdirenç hesaplanmak isteniyor olsun. Lorentz kuvveti ile sabitleştirme kuvveti karşılaştırıldığında, Lorentz kuvvetinin çok büyük, dolayısıyla sabitleştirme kuvvetinin ihmal edildiği sınır durum göz önüne alınabilir. Akı çizgilerinin hareketi enerji kaybına neden olduğundan bu kayıp viskozite ile ifade edilebilir. Ayrıca, girdap hareketinin hızla orantılı kuvvet tarafından yavaşlatıldığı farz edilir. Bu durumda viskozitenin (η) fonksiyonu olarak akı çizgilerinin sürüklenme hızı, Lorentz kuvvetini, sürtünme kuvvetine eşitleyerek bulunabilir.

$$\mathbf{F}_L - \mathbf{F}_p = \eta \mathbf{v} \quad (1.18)$$

Ç...

$$\mathbf{J}\Phi_0 = \eta \mathbf{v} \quad (1.19)$$

Ayrıca örgü hareketi, \mathbf{J} 'ye paralel olan ve

$$\mathbf{E} = \mathbf{v} \times \mathbf{B} \quad (1.20)$$

şeklinde Maxwell denkleminin verilen bir elektrik alan indükler. Son iki eşitlik kullanılarak akı akışının özdirenci (ρ_f) aşağıdaki şekilde elde edilebilir.

$$\rho_f = \frac{\mathbf{E}}{\mathbf{J}} = \mathbf{B} \frac{\Phi_0}{\eta} \quad (1.21)$$

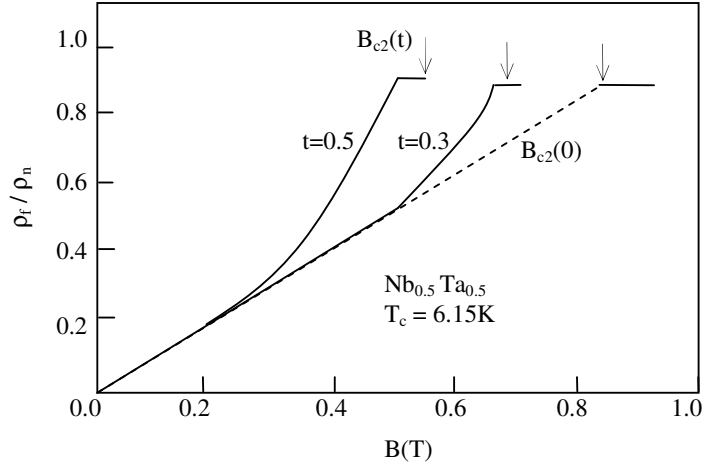
Viskozite η , bilinmeyen bir parametredir. Deneysel olarak akıma bağlı değildir ve B ile çok değişmez. Bu nedenle lineer alan içinde omik bir rejim ve öz direnç elde edilir. Mikroskobik hesaplar η hakkında bilgi vermektedir ve bu bizi omik rejimin basit yorumuna götürmektedir.

$$\rho_f = \rho_n \frac{B}{B_{c2}} \quad (1.22)$$

Böylece η , normal durumdaki öz direnç (ρ_n) cinsinden aşağıdaki şekilde verilir.

$$\eta = \frac{\Phi_0 B_{c2}}{\rho_n} \quad (1.23)$$

Akı akışı rejiminde öz direnç, normal korlar içinde akan akım için elde edilenle aynıdır. Gerçekte girdaplar, yarıçapı ξ olan normal metal bir silindir olarak düşünülürse, B/B_{c2} oranı normal metalin kesrini temsil eder. Şekil 1.13'te farklı sıcaklıklar için, alanın fonksiyonu olarak akı akış öz direncine bir örnek verilmiştir. Öz direnç, sıcaklığın ve alanın fonksiyonu olarak artmaktadır (Duzer ve Turner, 1999; Cyrot ve Pavuna, 1992).



Şekil 1.13. Bir Nb-Ta örneğinde, farklı $t = T/T_c$ değerleri için, B'nin fonksiyonu olarak akı akış direnci. Noktalı çizgiler $t = 0$ için beklenen davranışı temsil ederken, dikey çizgiler $B_{c2}(t)$ değerini göstermektedir

1.10. Akı Sürüklenmesi (Flux Creep) ve Isıl Destekli Akı Akışı (TAFF: Thermally Activated Flux flow)

Akı çizgilerinin hareketi, bunlara dik olarak etki eden Lorentz kuvvetinden kaynaklanır. Akı çizgileri herhangi bir dış akım yokken bile akı çizgilerinin bozulmasına neden olan kusurlar tarafından sabitleştirilir. Mutlak sıfır sıcaklığında akı çizgilerin hareketi Lorentz kuvvet yoğunluğu, ortalama çivileme kuvvet yoğunluğunu aşarsa mümkündür. Eğer $J_{dış} < J_c(0,B)$ ise dış akım yoğunluğu $J_{dış}$, bir güç kaybına neden olmaz.

$J_{dış} > J_c$ için akı çizgilerinin v hızındaki hareketi, bir elektrik alanın doğmasına ve bundan dolayı sınırlı bir V geriliminin oluşmasına neden olur. Bu durum daha önce tanımlanan akı akış rejimidir. Bununla birlikte sonlu bir sıcaklıkta, çivileme enerji engellerini aşma olasılığı da mevcuttur. Bundan dolayı belli bir sıcaklıkta, $J_{dış} < J_c(T,B)$ için bile belli bir miktar hareket ve öz direnç olacaktır. Bu, termal olarak uyarılmış akı sürüklenmesi olarak bilinir. $J_{dış} \gg J_c(T,B)$ durumunda ise yukarıda tanımlanan akı akışı gerçekleşir.

Akı sürüklenmesi çok iyi bilinmeyen değişik parametrelere bağlıdır. Fakat bu olayın nitel bir analizi basit bir yolla yapılabilir. Birçok durumda akı çizgileri demetinin hareketi gözlenebilir. Bu, bir yerden komşu olan başka bir yere termal olarak uyarılmış bir atlamadır. En basit halde, akı çizgileri demetinin atlaması ile aşılan $U_0(T,B)$ aktivasyon (veya engel) serbest enerjisi, uygun bir hacimle çarpılan bir bölgedeki akı çizgileri tarafından kazanılan yoğunlaşma enerji yoğunluğu ile belirlenir.

Mutlak sıfır sıcaklığında $U_0(T,B)$ enerji engeli, $J_c(0,B)$ kritik akım yoğunluğu ile ilişkilidir. $J_{dış} = J_c$ durumunda Lorentz kuvvet yoğunluğu, çivileme kuvvet yoğunluğuna eşit olduğu için,

$$U_0(0,B) = J_c(0,B)BV_c d \quad (1.24)$$

bağıntısı yazılır. Burada d , akı demetinin (bundle) hareket ettiği mesafedir.

Geleneksel süperiletkenlerde, tüm $T \leq T_c$ sıcaklıkları için daima $U_0(T,B) \gg k_B T$ dir. $U_0/k_B T$ oranı yaklaşık 100 ile 1000 arasında olup bu aralıkta akı sürüklenmesi çok küçük bir olaydır.

Akı sürüklenmesi teorisi, termal destek olmaksızın taşınabilen sıfır direnç kritik akım yoğunluğu $J_c(0)$ ve gözlenen kritik akım yoğunluğu $J_c(T)$ parametrelerini tanıtır. Bu iki akım arasındaki ilişki, çivileme etkileşmesinden kaynaklanan U_0 yüksekliğindeki bir

potansiyel kuyusundaki girdabın titreşimini v frekansı ile tanımlayarak ve uygulanan akım altında etkin kuyu derinliğini modelleyerek, $U_0(1-J/J_c(0))$ şeklinde tanımlanır. Girdapların difüzyonu, $U(J)$ çivileme engeli üzerinden termal destek ile sağlanır ve I-V karakteristiği üsteldir;

$$E=Bvd \exp \left[-\frac{U_0}{k_B T} \left(1 - \frac{J}{J_c(0)} \right) \right]. \quad (1.25)$$

Burada, E oluşan elektrik alan, B numunedeki manyetik indüksiyon ve d ise çivileme merkezleri arasındaki mesafedir. Böylece yukarıdaki ifadeden herhangi bir deneyde belirlenen kritik akım yoğunluğu J_c , ölçülebilen en küçük kritik elektrik alanı E_c 'ye,

$$J_c(T) = J_c(0) \left[1 - \frac{k_B T}{U_0} \ln \left(\frac{Bdv}{E_c} \right) \right] \quad (1.26)$$

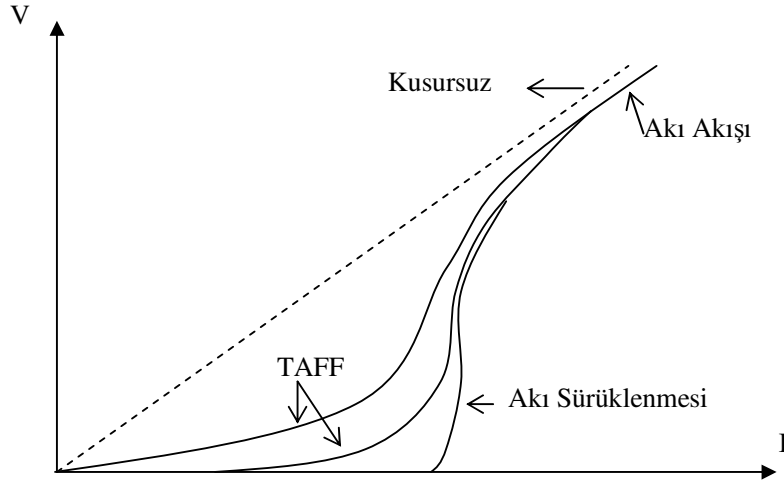
ifadesiyle bağlı olacaktır. Bu son eşitlik, $J_c(T)$ 'nin sıcaklıkla doğrusal olarak azaldığını göstermektedir.

Yüksek sıcaklık süperiletkenlerinde $U_0/k_B T$ oranı, geleneksel süperiletkenlerinkine oranla oldukça küçüktür. Bunun birinci nedeni yoğunlaşma enerjisinin, uyum uzunluğuna (ξ) açıkça bağlı olan uygun bir hacimle çarpılması ile U_0 'ın belirlenmesidir. Bu uzunluğun yüksek sıcaklık süperiletkenlerinde daha kısa olması sebebiyle, U_0 da daha küçüktür. İkinci neden ise, sıcaklığın alışılmış süperiletkenlerinkinden daha yüksek olmasıdır. Bu yüzden akı sürüklenmesi yüksek sıcaklık süperiletkenlerinde küçük bir olay olmayıp, bazen oldukça büyük akı sürüklenmesi olaylarından söz edilir.

Akı sürüklenmesi, Şekil 1.14'te görüldüğü gibi akı akış rejiminin hemen altında, sürücü kuvvetin, çivileme kuvvetine hemen hemen eşit olduğu durumda ortaya çıkan bir olaydır. Fakat, çivileme kuvveti küçük ve sıcaklık bu engeli aşacak kadar yüksek ise bu olay sürücü kuvvet sınırında da gözlenebilir. Alışılmış akı sürüklenmesini, $J \ll J_c$ için oluşan bu durumdan ayırt etmek için yeni bir isim tanımlanmıştır: Isıl olarak uyarılmış akı akışı (Thermally Activated Flux Flow: TAFF). TAFF sadece, potansiyel enerji engelinin düşük olduğu durumda gözlenebilir ve

$$\rho \sim \rho_0 \exp\left(-\frac{U_0}{k_B T}\right) \quad (1.27)$$

ifadesiyle verilen özdirence neden olur (Seeber, 1998; Cyrot ve Pavuna, 1992).



Şekil 1.14. Farklı rejimler için akım-gerilim karakteristiğinin şematik gösterimi

1.11. Yüksek Sıcaklık Oksit Süperiletkenleri

Bednorz ve Müller tarafından 30 K'lık kritik geçiş sıcaklığına sahip $\text{La}_{2-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$ yüksek-sıcaklık oksit süperiletkenlerinin keşfinden sonra, pek çok oksit süperiletken türü keşfedilmiştir. Süperiletken oksitler, perovskite kristallerle ilgili bir yapıya sahiptirler. Şimdiye kadar keşfedilen yüksek kritik sıcaklığa sahip oksit süperiletkenlerinin hepsi, iki veya üç metal oksitle birlikte bakır içermektedir (Tablo 1).

Günümüzün, gerek manyetik özellikleri ve gerekse kritik geçiş sıcaklığı bakımından en dikkat çeken oksit süperiletkenlerinden biri Y-123 bileşiği olarak adlandırılan $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ (YBCO) bileşiğidir. Bu bileşiğin kristal yapısı ortorombik ($a \approx b$ ve $c \approx 3a$) olup, bu durum süperiletken özelliklerde anizotropiye neden olmaktadır. Y123 süperiletkenindeki itriyum, kritik sıcaklığa ihmal edilebilir etkisi olan ve kuvvetli manyetik momente sahip europyum, gadolinyum ve holmiyum gibi birçok nadir toprak elementi ile

yer değiştirebilir. Y123 süperiletkenlerinde kritik sıcaklık büyük oranda örgüdeki oksijen miktarına bağlıdır ve yapılan nötron kırınımı çalışmalarından, oksijen boşluklarının düzenlenmesiyle kritik sıcaklığın belli oranda artırılabilceği görülmüştür. $YBa_2Cu_3O_x$ bileşiğinde oksijen oranı, $x \sim 6,5$ ve $x \sim 7,0$ değerlerini aldığı anda, kritik sıcaklıkta sırasıyla 60 K ve 90 K değerlerini almaktadır. Bu verilerden, Y123 bileşiğindeki süperiletkenliğin büyük oranda bakır-oksijen tabakalarından kaynaklandığı söylenebilir (Conder, 2001; Taka vd., 2002).

Tablo 1.1. Yüksek sıcaklık oksit süperiletkenlerinin bazı özellikleri

	Y123	Bi-2212	Bi-2223
CuO ₂ düzlemi sayısı	2	2	3
T _c (K)	93	87	110
B _{irr} 4,2 K'de (T)	>30	>30	>30
B _{irr} 77 K'de (T)	>5	0,005	0,5
J _c 4,2 K'de (A/mm ²)	>100000	5000	3000
J _c 77 K'de (A/mm ²)	>10000	100	500

n, CuO₂ düzlemlerinin sayısını göstermek üzere $Tl_2Ba_2Ca_{n-1}Cu_nO_{2n+4}$ genel serisine uygun süperiletken ailesinde 4'e kadar ve $Bi_2Sr_2Ca_{n-1}Cu_nO_{2n+4}$ genel serisine uygun süperiletken ailesinde ise 3'e kadar CuO₂ düzlemi mevcuttur. Bu süperiletken bileşikler tetragonal yapıya sahip olup bunlarda CuO zincirleri bulunmaz. Talyumun kristal yapısında bakır oksit tabaka sayısının artması ile kritik sıcaklık değerinin de giderek arttığı gözlenmiştir (122 K).

HgBa₂Ca_{n-1}Cu_nO_y ailesinin yapısı, BaO/HgO/BaO blokları arasında sandviçleşmiş n tane CuO₂ ve n-1 tane de Ca tabakasından oluşmuştur. Hg tabanlı süperiletkenlerde kritik sıcaklık CuO₂ tabakalarının n sayısı ile artarken, n > 3 için azalır. Birim hücredeki CuO₂ tabakalarının sayısı n = 1, 2, 3, 4 ve 5 olduğunda kritik sıcaklık sırasıyla 94, 127, 135, 126 ve 112 değerlerini alır (Huang vd., 1993; Schilling vd., 1993).

1.12. YBa₂Cu₃O_{7-x} (Y123) Süperiletkeninin Yapısal ve Fiziksel Özellikleri

Perovskite yapıya sahip Y123 süperiletkenleri, kristal yapılarındaki bakır ve oksijenin hem CuO zincirlerini ve hem de kare piramitsel CuO₂ düzlemlerini (a-b düzlemi) oluşturmalarından dolayı diğerlerinden ayrılır (Şekil 1.15). Bakırın kristalografik olarak

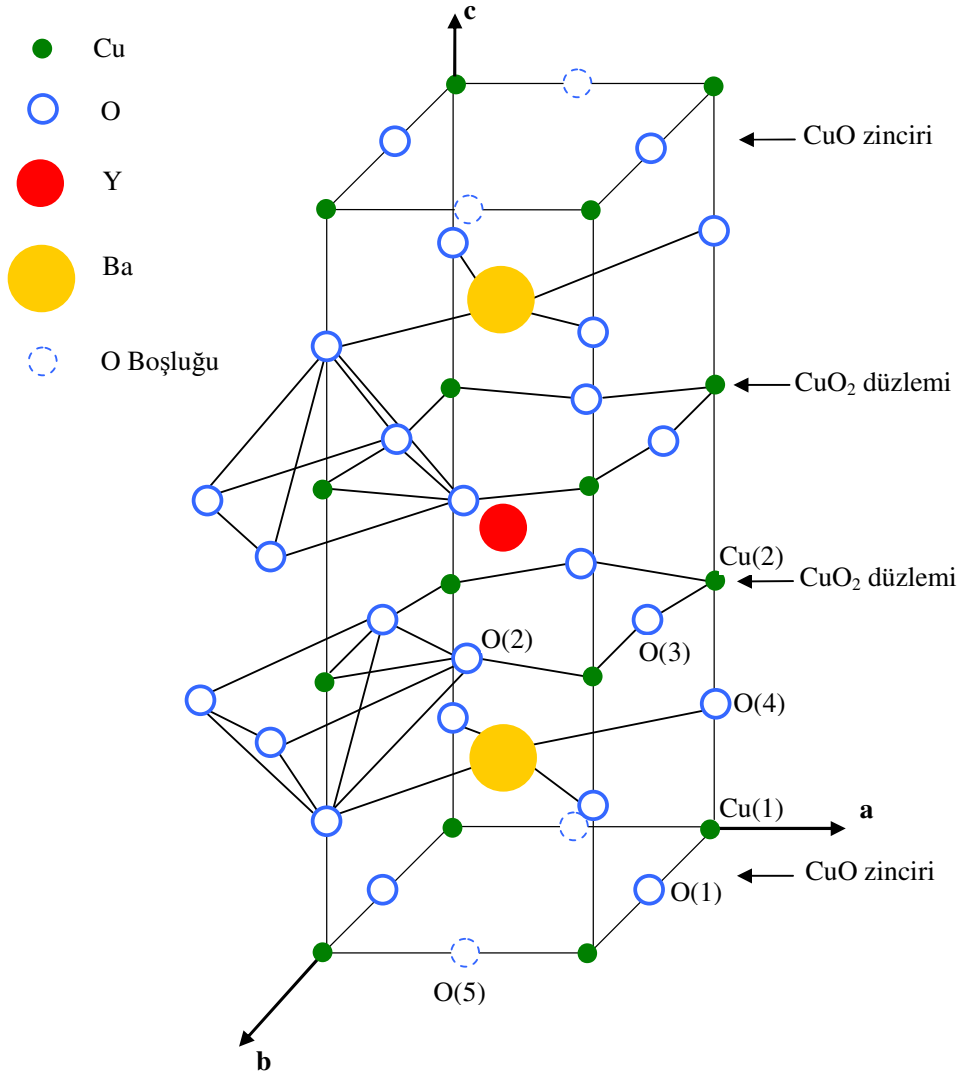
bağımsız iki durumunun varlığı (CuO_2 düzlemindeki $\text{Cu}(2)$ ve CuO zincirindeki $\text{Cu}(1)$), Y123 ailesinin önemli bir özelliğidir (Cyrot ve Pavuna, 1992). Tüm yüksek sıcaklık süperiletken bileşimlerin süperiletiminde, baskın rol oynayan CuO_2 düzlemleridir. Diğer bileşenler CuO_2 düzlemlerinde yük yoğunluğunu düzenleyen yük deposu olarak görev yaparken, yük taşıyıcılar yalnızca bu düzlemler boyunca hareket ederler.

$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ süperiletkeni oksijen konsantrasyonuna bağlı olarak, tetragonal ($a=b \neq c$) ve ortorombik ($a \neq b \neq c$) olmak üzere iki farklı yapıda bulunur. Oksijen kaybına duyarlı olan CuO zincirleri, $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ süperiletken bileşiğinde ortorombik-tetragonal faz geçişine neden olur. Ortorombik-tetragonal faz geçişi, sıcaklığa ve oksijenin kısmi basıncına bağlı olan stokiyometrik olmayan oksijen parametresi x tarafından oluşturulan bir faz geçişidir (LaGraff vd., 1991). Yüksek oksijen konsantrasyonunda ($0 < x < 0,5$) bir boyutlu CuO zincirindeki $\text{O}(1)$ mevkilerine oksijen atomlarının yerleşmesi durumunda, tamamen oksijenlenmiş süperiletken ortorombik yapı oluşur (Şekil 1.15) Düşük oksijen konsantrasyonu için ($0,5 < x \leq 1$), birim hücredeki alt ve üst CuO zincirlerindeki Cu atomları arasında oksijen atomları rasgele dağılır $\text{O}(1)$ yerlerinden boş olan $\text{O}(5)$ mevkilerine oksijenin geçmesi düzensizliğe neden olur). Bu durum, tetragonal yapı ve yarıiletken özelliğe işaret eder. Ortorombik-tetragonal faz geçişi oksijen difüzyon kinetiği tarafından kontrol edilen bir süreçtir (Dew-Hughes, 1989).

Oksijen konsantrasyonunun değişmesi, maddeyi sinterleme esnasındaki oksijen kısmi basıncına ve ısıtma-soğutma şartlarına bağlıdır. Y123 bileşiğinin hem normal hem de süperiletken durumlarının özellikleri, oksijen konsantrasyonu ve ortorombik fazdaki oksijen düzeninin derecesine kuvvetli bir şekilde bağlıdır. Yapılan deneysel çalışmalarda Y123 süperiletkeninin, ortamdaki gaz cinsine (hava, oksijen vs.) ve gaz basıncı değerine bağlı olarak 600°C ' den 750°C 'ye kadarki ısıtma işlemi boyunca ortorombik-tetragonal faz geçişi yaptığı gözlenmiştir (Specht vd.,1988). Bu çalışmalarda ortorombik birim hücrenin boyutları $a=3,818 \text{ \AA}$, $b=3,889 \text{ \AA}$ ve $c=11,668 \text{ \AA}$ olarak belirlenirken, tetragonal birim hücrenin boyutları $a=3,859 \text{ \AA}$ ve $c=11,771 \text{ \AA}$ olarak belirlenmiştir.

Sinterlenmiş hacimsel Y123 örneğindeki kritik akım yoğunluğu tayininde; yoğunluk, ikincil fazlar, oksijen içeriği, kusurlar, homojenlik ve taneler arası etkileşim gibi birçok parametre etkilidir. Bu parametreler özellikle malzeme üretim şartlarına ve malzeme üretim yöntemine kuvvetli bir şekilde bağlıdır (Yanmaz, 1997; Ateş vd., 1998). Sinterlenmiş numuneler genellikle yüksek saflıktaki Y_2O_3 , BaCO_3 ve CuO tozlarından hazırlanır. Yapısal özellikleri iyileştirerek yüksek kritik akım yoğunluğuna sahip numune

elde etmek için tozlar iyice karıştırılmalı ve 850-950 °C arasında 24 saat civarında kalsinasyon yapılmalı, akabinde öğütülmelidir. Literatürde, sinterleme işleminden önce yapılan kalsinasyon ve öğütme işlemi ikiden fazla tekrarlandığında, sıfır manyetik alan altındaki Y123 örneğinin 77 K'deki kritik akım yoğunluğunun $5A.cm^{-2}$ 'den $1 \times 10^3 A.cm^{-2}$ 'ye kadar arttığı belirtilmiştir (Murakami, 1992). Y123'de CuO_2 düzlemleri boyunca taşıyıcıların oluşturduğu akı, ab-düzleminde ve c-ekseninde farklı özelliklere sahip olup bu durum malzemede yüksek anizotropi oluşturur. YBCO'nun başlıca süperiletkenlik özellikleri Tablo 1.2'de verilmektedir.



Şekil 1.15. Ortorombik $YBa_2Cu_3O_7$ süperiletken bileşiğinin kristal yapısı

Tablo 1.2. $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 'nin (Y123) ab -düzlemi ve c -ekseni yönünde mutlak sıfır sıcaklıktaki süperiletkenlik temel parametreleri: ξ , koherens uzunluğu; λ , manyetik alan girme derinliği; H_c , termodinamik kritik manyetik alan; J_c , kritik akım yoğunluğu; H_{c1} ve H_{c2} ise sırasıyla alt ve üst kritik manyetik alan değerleri (Ginsberg, 1994; Poole, 2000).

Parametreler		ab -düzlemi	c -ekseni
$\xi(0)$	(nm)	1,5-4,3	0,3-0,7
$\lambda(0)$	(nm)	100-140	500-800
$H_c(0)$	(10^4 Oe)		1-3
$J_c(0)$	(A/cm^2)	$3-12 \times 10^8$	$5-25 \times 10^7$
$H_{c1}(0)$	(Oe)	20-230	80-90
$H_{c2}(0)$	(10^4 Oe)	230-624	70-122

1.13. Y123 Süperiletkeni Üretim Teknikleri

Yüksek-sıcaklık süperiletkenlik üzerine yapılan araştırmalar aşağıdaki gibi dört grupta sıralanabilir:

- Seramiklerin üretimi.
- Alet (devices) yapımı.
- Özelliklerin karakterizasyonu.
- Teorik modelleme.

Yüksek-sıcaklık seramik süperiletkenlerde toz üretimi, malzeme özelliklerinin karakterizasyonu ve alet yapımında önemli bir adımdır. Üretilen bu Y123 (YBaCuO) tozlar yıllardır, bulk süperiletken aletler, ince filmler, Y123 şeritler, çözelti yöntemiyle Y123 kaplanmış iletkenler, elektrokimyasal depolama, püskürtme tekniği, bulk örneklerin eritme yönlendirme büyütme ve tek kristallerin imalatı için gerekli olan hedef malzemelerin yapımında, temel uygulamalara sahiptir (Cava vd., 1987; Pathak, 2004; Petropoulou vd., 2002; Georgiopoulos ve Tsetsekou, 2000; Koblishka vd., 2005).

Bu seramik süperiletkenlerin iyi kalitede üretimi için birkaç işlem adımı gereklidir. Bunlardan birincisi tozların sentezlenmesi, diğerleri ise yeşil bileşimin (green bodies) üretimi ve uygun homojen yoğunluğun sağlanması için sinterleme işlemidir. Üretilen

süperiletken numune yoğun, çatlaksız, gözeneksiz ve mükemmel özellikler için gerekli olan mikro yapıda olmalıdır. Bilindiği gibi başlangıç malzemesi olarak belli parçacıkların boyut dağılımında, kimyasal olarak homojen tek fazlı toz, sinterlenmiş numunede istenen özelliklere ulaşmak için gereklidir (Pathak ve Mishra, 2005). Şimdiye kadar çeşitli sentez yöntemleri ve elde edilen ürün hakkında oldukça fazla çalışma yapılmasına karşın, iyi süperiletken toz elde etmede uygun tekniği belirlemek için çeşitli tekniklerle ilgili kritik bir analiz gereklidir. Bu amaçla; Y123 toz hazırlama yöntemleri, bu yöntemlerin avantaj ve dezavantajları Tablo 1.2’de verilmiştir.

Son on yılda saf tek-fazlı Y123 toz hazırlamak ve arkasından süperiletken numuneler elde etmek için çeşitli yöntemler geliştirildi. Mevcut çalışmalardan elde edilen verilerden Y123 süperiletkenlerinin sentezlenmesi genel olarak üç kategoride sınıflandırılabilir:

- a-) Katı-hal sentez.
- b-) Çözelti teknikleri.
- c-) Buharlaştırma/ plazma yöntemleri.

Değişik şartlarda ve özelliklerde hazırlanan Y123 tozlarının (Tablo 1.2) avantaj ve dezavantajlarını dikkate alarak, istenen elektrik ve manyetik özelliklerde bulk süperiletken üretmek için çeşitli yöntemler geliştirilmiştir. Bu yöntemlerin bazıları aşağıdaki alt başlıklarda verilmiş olup, bunlar arasında en yaygın olanı sinterleme yöntemidir ve iletken yapımında birçok avantajları vardır. Sinterlenmiş numunelerde tane sınırındaki zayıf bağlantının düşük kritik akım yoğunluğuna sebep olması ise bu yöntemin bir dezavantajıdır.

Bulk süperiletken üretiminde, eritme yönteminin tane sınırındaki zayıf bağlantıyı azalttığı ve bu nedenle Y123 örneğinde 77 K’de yüksek kritik akım yoğunluğuna neden olduğu bilinmektedir (Murakami, 1992).

Tablo 1.3. YBCO toz yapımında çeşitli toz üretim yöntemlerinin avantaj ve dezavantajları (Pathak ve Mishra, 2005).

Toz üretim tekniği	Avantajlar	Dezavantajlar
Katı-hal yöntemi		
Geleneksel seramik yöntem	Büyük miktarda üretim (100kg). Mikrometre boyutunda toz. Karıştırma, kalsinasyon ve öğütme esnasındaki özen homojenliğin gelişimini sağlar.	Düzensiz biçim ve düşük akışkanlık vardır. Kalsinasyon ve faz oluşumu için oldukça yüksek sıcaklık gerekir. Tozlar öğütme ortamından kaynaklanan kirlilik içerir.
Metalojik yöntem	Karbonat kirliliği yok edilebilir. Mekanik alaşımlama daha homojen toz üretebilir.	Ba-Cu katı çözeltisi içinde Y sınırlı çözülür. Metal alaşım bileşenlerinin oksijenlenmesi zordur.
Alkali eriyik yöntemi	Eriyik (flux) olarak Ba(OH) ₂ kullanılarak karbonat kirliliği yok edilebilir. KCl ve NaCl eriyiği kullanılarak kristal büyütülebilir.	Son toz KCl ve NaCl kirliliği içerir. YBCO' nun su ortamında bozulması.
Katı-hal yakma yöntemi	Büyük boyutlu Cu tozlarıyla (tutuşturucu olarak) düşük sıcaklıkta sentezleme (673-773K) mümkündür.	Reaksiyona giren bileşenlerin karışımı ve durağan bir reaksiyonun sürdürülebilmesi sorundur.
Çözelti Yöntemi		
Çözelti-kurutma yöntemi	Bu metotla YBCO kaplanmış iletkenler üretilebilir.	Kurutma sürecinde metal iyonlarının ayrışması.
Beraber-biriktirme yöntemi	Homojen tozlar. Düşük sıcaklıkta (~1073K) kalsinasyon ve sinterleme.	Çözelti kimyasının bileşimi, birikme esnasında bileşenlerin ayrışmasına neden olabilir.
Sol-gel yöntemi	Mükemmel homojenlik ve nanokristal tozlar. Kurutma süreciyle boyut ve biçim kontrol edilebilir.	Kurumuş jel' deki ince boşluklardan çözücünün çıkarılması. Alkali-oksitli sol-gel yöntemi pahalıdır ve çözünme problemine sahiptir.
Püskürtme-kurutma yöntemi	Mükemmel akışkan (flowability) biçim ve boyutlu homojen tozlar.	Kararlı bir püskürtmenin sürdürülmesi problemidir.
Dondurma-kurutma yöntemi	Mikron boyutunda homojen tozlar	Ayrışmadan kaçınmak için uygun bir ısıtma planı gerektirir.
Aerosol yöntem (Hava ile püskürtme)	Biçim ve boyutu kontrol edilebilen homojen tozlar için tek adımlık yöntem.	Uygun olmayan faz oluşumları ve büyük katyon düzensizliklerinden kaçınmak için dikkatli olunmalı
Çözelti yakımlı yöntem	Nanokristal boyutunda homojen tozlar. Düşük sıcaklıkta kalsinasyon ve sinterleme.	Karbonat kirliliğine dikkat edilmeli.
Pyroforik yöntem (kendiliğinde yanma)	Nanokristal boyutunda homojen tozlar. Düşük sıcaklıkta kalsinasyon ve sinterleme	Polimerleştirmeye gelen karbonat kirliliğine dikkat edilmeli.
Plazma sentez	Kontrol edilebilir biçimde ve boyutta, küresel nano-boyutlu tozlar	Yüksek üretim giderine rağmen ürün düşüktür. Yüksek değerde yatırım maliyeti gerektirir.

1.13.1. Sinterlenmiş Bulk Y123

Sinterlenmiş Y123 örneğinde yüksek T_c değeri kolayca elde edilirken, büyük oranda yapısal özelliklere bağlı olan J_c değeri oldukça düşüktür. Sinterlenmiş bulk numunelerde J_c değerini belirlemede; oksijen konsantrasyonu, çatlaklar, yoğunluk, homojenlik, gözeneklilik ve tane sınırlarındaki bağlantılar önemli rol oynamaktadır.

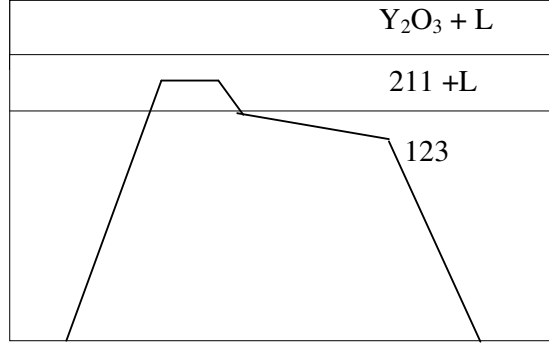
Sinterlenmiş bulk Y123 bileşiğinin başlangıç tozlarının hazırlanması Tablo 1.2’de görüldüğü gibi değişik şekillerde yapılmaktadır ve bunlardan en çok kullanılanı katihal tepkime yöntemidir. Bu yöntemde sinterlenmiş numune yüksek saflıktaki Y_2O_3 , $BaCO_3$ ve CuO tozlarından hazırlanır. Tozlar iyice karıştırılır ve 850-950 °C’de 1-24 saat kalsine edilerek öğütülür. Bu işlem, numunenin yapısal özelliklerinin iyileştirilmesi için ikiden fazla tekrarlanır.

Y123 örneğinde homojenlik, başlangıç tozlarının karıştırma sayısını artırma ile sağlanırken, yoğunluk numunenin sinterleme sıcaklığının artırılması ile yükseltilebilir. Yukarıda belirtildiği gibi J_c değeri, sadece bulk yoğunluğuna bağlı değildir ve yüksek sinterleme sıcaklığında oluşan normal fazların tane sınırlarında bulunması kritik akım yoğunluğunun azalmasına sebep olur. Eğer numune içerisine düzgünce dağılmış küçük taneli (<1 mikron) tozlar kullanılırsa, bu sıvı fazın yardımı olmaksızın yüksek yoğunluk elde edilebilir. Bu durumda Y123 tozu yüksek basınçta preslendikten sonra 925 °C’nin altında sinterlenebilir. Bunun sonucunda, yüksek sıcaklık ürünü olan sıvı fazın tane aralığına girmediği oldukça yoğun numuneler üretilebilir. Bu işlemlere rağmen sinterlenmiş numunelerde, kritik akım yoğunluğu değerleri yine de düşüktür. Bunun kısmi sebebi tane sınırları boyunca çatlakların varlığıdır. Ayrıca yüksek yoğunluğa sahip örnekleri tamamen oksijenlemekte oldukça zordur. Bilindiği gibi $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ ’da T_c , tamamen oksijen konsantrasyonuna bağlıdır ve oksijen eksikliği (δ) arttıkça hem T_c hem de J_c azalır (Murakami, 1992).

1.13.2. Eritme-Yönlendirme-Büyütme (Melt-Textured-Growth (MTG))

Taneler arası zayıf bağlantıyı azaltmak için bazı bilim adamları MTG yöntemini kullanmışlardır (Jin vd., 1988; Murakami, 1992). Bu yöntemde sinterlenmiş Y123 örneği eritilir ve ısıl gradyant ile yavaşça soğutulur. Bu yöntemde a-b düzlemi içinde tanelerin büyümesi sağlanır. Sıfır alan altında MTG yöntemiyle hazırlanan numunelerde 77 K’de kritik akım yoğunluğu değeri 10^4 A/cm² yi geçmektedir. J_c ’deki yükselme, MTG

yöntemiyle tane düzenlenmesinin geliştiğini ve zayıf bağlantının azaldığını gösterir. Fakat bu yöntemle üretilen numuneler düşük yoğunlukta akı sabitleştirme merkezlerine sahip olmalarından dolayı, manyetik alan altında düşük J_c değeri gösterirler. Bu problemi belli oranda ortadan kaldırmak için numune üretimi esnasında dikkatli mikro-yapı kontrolü gerekir.



Şekil 1.16. Geliştirilmiş MTG yönteminin şematik gösterimi (Murakami, 1992).

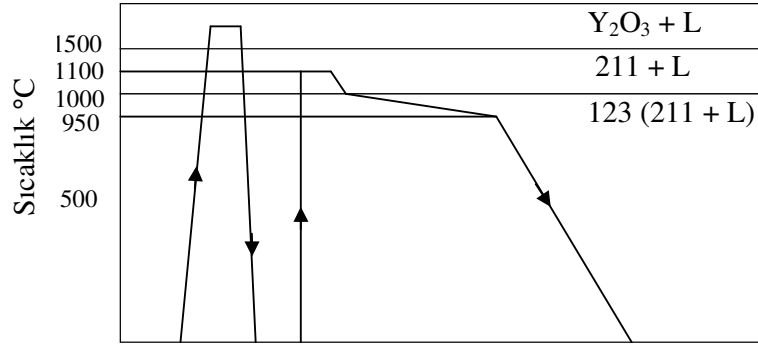
MTG yönteminde 123 fazının tane büyümesi için ortamda hem 211 hem de sıvı fazın ($BaCuO_2+CuO$) olması gerekir. Eğer ısıl işlem esnasında 211+L bölgesindeki numune yavaşça soğutulursa, süperiletken fazın zayıf iletkenliğinin sebebi olan 211 taneleri büyür ve düzensiz olarak dağılır. Bu olumsuz durumu ortadan kaldırmak için bazı bilim adamları tarafından, geliştirilmiş MTG yöntemleri önerilir. Bu yöntemlerde 211 fazının büyüklüğü, ısıtma sıcaklığını peritektik sıcaklığın hemen üzerine indirerek azaltılabilir. Numune yüksek sıcaklıklarda uzun süre eritilir, sonra hızla peritektik sıcaklığa soğutulur ve daha sonra da yavaş soğumaya bırakılırsa gözeneklerin sayısı 211 sayısını azaltılabilir. Böyle bir yöntemle süperiletken fazın iletkenliği geliştirilebilir ve 123 fazı içine yayılmış 211 bölgelerinin büyüklüğü 1-5 mikron mertebesine azaltılmış olur (Şekil 1.16).

1.13.3. Ark-Döküm (Ark-Casting)

Bu yöntemde, diğer yöntemlerde olduğu gibi başlangıç tozları olarak Y_2O_3 , $BaCO_3$ ve CuO tozları karıştırılarak kalsine edilir. Kalsine edilen tozlar tablet haline getirilerek tükenmeyen elektrod ark fırını içerisine yerleştirilir ve elde edilen eriyik, su soğutmalı

bakır kalıba dökülür. Bu şekilde elde edilen örneklerin yoğunluğu $5,24 \text{ gr/cm}^3$ tür ve 950°C 'de 80 saat oksijen ortamında tavlamadan sonra bu yoğunluk, Y123 süperiletken fazının teorik yoğunluğunun % 93'ü olan $5,97 \text{ gr/cm}^3$ değerine çıkmaktadır.

Yanmaz ve arkadaşları (Yanmaz vd., 1993) bu metodu bir miktar değiştirerek ark-döküm ile üretilen numuneyi eriterek büyütme işlemine tabi tutmuşlardır. Geliştirilen bu yönteme arc-quench-powder-growth (AQPG) adı verilmiştir. Bu yöntemde ark-döküm yapılan malzeme toz haline getirilip öğütüldükten sonra, tablet olarak hazırlanır. Numune 1100°C 'de 20 dakika bekletilir ve sonra 100°C/saat hızla 1000°C 'ye soğutulur. Daha sonra numune 1°C/saat hızla 950°C 'ye ve bu sıcaklık değerinden sonra da fırın kendiliğinden soğumaya bırakılır (Şekil 1.17). Numunenin oksijen ortamında tavllanması işlemi 1 saat sürede ve 600°C 'de gerçekleştirilir.



Şekil 1.17. AQPG yönteminin şematik gösterimi

Tavlanan numunenin VSM (vibrating sample magnetometer) aleti kullanılarak elde edilen manyetizasyon eğrilerinden yararlanarak J_c değerleri hesaplanmıştır. 1 T'lık alan altında 4,2 K, 50 K ve 77 K de hesaplanan J_c değerleri sırasıyla $1,2 \times 10^5 \text{ A/cm}^2$, $2 \times 10^4 \text{ A/cm}^2$ ve $5 \times 10^3 \text{ A/cm}^2$ olarak bulunmuştur.

1.14. Gd, Yb ve Bazı Katkı Maddelerinin YBCO Süperiletkeni Üzerindeki Etkileri

Y123 süperiletkeninin bulunuşundan günümüze kadar bu süperiletkenin yapısal ve fiziksel özelliklerinin iyileştirilmesi amacıyla değişik araştırmacılar tarafından, Au, Ni, Ag, Hg, Al, Zn, Fe, Co, Gd ve Yb gibi farklı katkı atomları kullanılmıştır. Katkılama işleminde

kullanılan katkı atomlarının çapları, ana yapıdaki atomların çaplarından farklı olduğunda, numunenin yapısal ve fiziksel özelliklerinde değişimler meydana gelir. Örneğin, eritme-büyütme (melt-textured) yöntemiyle hazırlanan Y123 bileşiğine Ag_2O katkısının, numunenin kritik akım yoğunluğu ve tersinmezlik çizgisi gibi süperiletkenlik parametrelerini arttırdığı bilinmektedir. Kritik akım yoğunluğunun artmasının nedeni, Ag_2O ilavesiyle numunedeki mikroçatlak yoğunluğunun azalması şeklinde açıklanmaktadır (Mendoza vd., 2000). Au'nun Y123 bileşiğine katkılanmasında, örgü parametresinde (11,6821 den 11,7121'e) ve süperiletkenliğe geçiş sıcaklığında (~ 2 K) belli bir miktar artış gözlenmiştir. Geçiş sıcaklığındaki bu artışın sebebi, Au ilavesiyle, CuO_2 düzlemlerindeki delik (hole) konsantrasyonunun artması şeklinde açıklanmaktadır (Cieplak vd., 1990). Ayrıca süperiletken olmayan Y_2BaCuO_5 (Y211) tozlarının, eritme-toz-eritme-büyütme (MPMG) yöntemiyle üretilen Y123 örneğine homojen şekilde katılması sonucunda, kritik akım yoğunluğunun (J_c) yükseldiği görüldü (1 T ve 77 K de 3×10^4 A/cm²). Bu yöntemle üretilen numunelerde, 211 parçacıklarının hacimsel kesrinin artmasıyla J_c 'nin değerinin yükselmesi, 211 ince parçacıklarının çivileme merkezi gibi davrandığını gösterir. Benzer özellikler nanometre boyutundaki MgO parçacıklarının Y123 süperiletken örneğine katılmasında da görülür (Fujimoto vd., 1992; Chen vd., 1997).

Toz-eritme yöntemiyle (PMP) üretilen $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ ve $\text{Y}_{0,4}\text{Gd}_{0,6}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ örneklerinin karşılaştırmalı manyetizasyon ölçümlerinde, farklı sıcaklıklardaki J_c ve akı çivileme kuvveti değerlerinin Gd eklenmiş numunede daha büyük olduğu saptandı. Bu çalışmada örneğe Gd eklenmesiyle YBCO'daki Y211 parçacık boyutlarının 3,2 μm 'den 0,96 μm 'ye azaldığı görülmüştür. Y211 parçacıklarının boyutlarındaki azalma ise, numunedeki mikroçatlakların azalmasını ve Y123 ile Y211 fazları arasındaki ara yüzeyin artmasını sağlar. Etkin çivileme merkezi özelliğine sahip olan Y123 ile Y211 fazları arasındaki ara yüzeyin artması ise J_c ve akı çivileme merkez yoğunluğunun artışına sebep olur. J_c 'deki artışın diğer bir nedeni akı çivilenmesinin, girdap örgüsüyle etkin alan arasındaki elastik etkileşmeden kaynaklandığı düşünülebilir. YBCO'da bölgesel örgü uyumsuzlukları, Y ile farklı iyonik yarıçaplara sahip nadir toprak elementlerinin (RE) kısmi yer deştirmesi ile oluşur ve bu durum etkin alan oluşumuna yol açar. Gd^{3+} iyon yarıçapı Y^{3+} iyon yarıçapından daha büyük olduğundan, Gd katkılanmış numunede ilave bir akı çivilemesi oluşur ve bu durum J_c artışına sebep olur (Feng vd., 1998).

Chihiro Taka ve arkadaşlarının $Y_xGd_{1-x}Ba_2Cu_3O_{7-y}$ bileşiği üzerinde azalan oksijen konsantrasyonuna bağlı çalışmalarında, T_c nin dar bir aralıkta 15 K kadar arttığını gördüler. Araştırmacılar bu artışın nedenini, Y'nin Gd ile yerdeğiştirmesi sonucu, CuO_2 düzlemlerindeki boşluk (hole) konsantrasyonunun azalmasının önlenmesine ve daha düşük oksijen içeriğinde c- eksenindeki uzamanın bastırılmasına bağladılar (Taka vd., 2002).

Katıhal tepkime yöntemiyle hazırlanan $Y_xGd_{1-x}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ bileşiğinde, $x = 0,2$ için kritik akım yoğunluğu 10 K'de $1,5 \times 10^4$ A/cm² olup, bu değer saf Gd123 süperiletkeninden üç kat daha büyüktür. Nishida ve arkadaşlarının yaptığı bu çalışmada ayrıca, manyetizasyonun sıcaklığa göre değişimi de incelenmiştir (Nishida vd., 2003). Kritik hal modeline göre ikinci tip süperiletkenlerde manyetizasyon (ΔM), sıcaklıkla $[1-(T/T_c)^2]^m$ ifadesine bağlı olarak değişirken (m kritik üs sabiti), yapılan çalışmada ise ΔM manyetizasyonunun Ae^{-T/T_0} ifadesine göre ekponansiyel olarak değiştiği bulunmuştur (Burada T_0 verilen bir alandaki karakteristik sıcaklık değeri olup 10–30 K arasında değişir). Araştırmacılar ΔM 'deki eksponansiyel değişimin kökeninde üç farklı unsurun etkili olabileceğini düşündüler. Bunlar; (1) taneler arası zayıf çiftlenim, (2) tane içi zayıf çivilenme (Hagen ve Griessen, 1989) ve (3) tane sınırlarındaki zayıf çivilenme (Manuel vd., 1991) şeklinde sıralanabilir.

$RE_{1+x}Ba_{2-x}Cu_3O_{6+\delta}$ (RE = Nd, Sm, Eu, Gd; REBCO) süperiletkenleri üzerine yapılan birçok araştırma, bu bileşiğin YBCO süperiletkeni ile karşılaştırıldığında, manyetik alanda daha yüksek J_c , T_c ve tersinmezlik alan değerine sahip olduğunu göstermiştir. Özellikle NdBCO süperiletkeni 96 K'lik geçiş sıcaklığı ile REBCO bileşenleri arasında dikkat çekmektedir. Yapılan son çalışmalarda, RE elementlerinin YBCO süperiletken yapısında Ba ile yer değiştirdiği (Gd/Ba ve Nd/Ba) ve değişim oranına bağlı olarak çivileme yoğunluğunun ve J_c 'nin arttığı bulunmuştur (Koshizuka vd., 2001). RE/Ba yer değiştirmesinde Gd'un iyonik yarıçapının diğer RE elementlerin göre daha küçük olması Gd elementini, çivileme merkezi mekanizmasının anlaşılması ve kontrolünde daha çekici yapmaktadır (Miyachi vd., 2003; Hu vd., 2003; Nariki vd., 2003; Prado vd., 1998).

Yb123 süperiletken bileşiğinin RE123 ailesi içerisinde nispeten düşük erime sıcaklığına sahip olması (Soh ve Fan, 2000), onun çeşitli süperiletken aletlerin yapımında tercih edilmesini sağlarken, bu özellik aynı zamanda düşük altlık sıcaklığında sıvı-faz-büyütme tekniğiyle de film üretimine kolaylık sağlar (Yamaguchi vd., 2003; Ichino vd., 2003; Inoue vd., 2003). $(Yb_{1-x}RE_x)Ba_2Cu_3O_y$ (Yb,RE)123 süperiletkeninin oluşumu üzerine RE (RE = La, Pr, Sm, Gd, Nd) elementlerinin etkisinin incelendiği çalışmalarda,

belli oranlardaki RE elementleri yer deęiřtirmesiyle (Yb,RE)211 ve BaCuO₂ yapancı fazlarının azaldığı görüldü. Tek fazlı (Yb,RE)123 bileřiđi, Pr için $x = 0,1$ 'in üzerinde, Sm için $x = 0,2$ deđerinde ve Gd için $x = 0,25$ deđerindeki RE deęiřiminde sentezlendi. Ayrıca, tek fazlı (Yb,Re)123 örnekleri Yb123 örneklerinden daha yüksek (20-30 K) ayrışma sıcaklığı gösterdi. Tek fazlı (Yb,Re)123 örneklerinde en yüksek T_c (sıfır) deđerı, Pr için 88,5 K ($x = 0,1$), Sm için 91,5 K ($x = 0,2$) ve Gd için 92,0 K ($x = 0,3$) olarak bulundu (Tablo 1.3). Bu veriler, büyük iyonik yarıçapa sahip RE elementleri yer deęiřtirmesinin tek fazlı (Yb,Re)123 oluşumunda etkili olduğunu kanıtlar (Yokoyama ve Kita, 2004; Kita ve Yokoyama, 2003).

Tablo 1.4. (Yb_{1-x},Gd_x)Ba₂Cu₃O_y örneklerinin farklı sinterleme sıcaklıklarındaki T_c (başlangıç), T_c (sıfır) ve ΔT_c deđerleri (Yokoyama ve Kita, 2004).

$T_{sinter.}(K)$	x	T_c (başlangıç)	T_c (sıfır)	ΔT_c
1173	0,1	94,0	85,0	9,0
	0,2	94,0	88,0	6,0
	0,3	93,0	-	-
1183	0,1	94,5	89,5	5,0
	0,2	94,5	89,0	5,5
	0,3	94,0	89,0	5,0
1193	0,1	93,0	90,0	3,0
	0,2	93,0	88,5	4,5
	0,25	93,0	90,5	2,5
	0,3	93,5	92,0	1,5
1203	0,1	93,0	90,5	2,5
	0,2	93,0	89,5	3,5
	0,3	92,0	91,0	1,0

Ortalama 1,1 μm çapa sahip Yb211 parçacıkları içeren Yb-Ba-Cu-O bulk süperiletkeni eritme yöntemiyle hazırlandığında, numuneler 2 K gibi dar bir geçiş aralığında ve 88,5 K'de geçiş gösterdi. RE123 ailesi içerisinde, Yb123'ün düşük T_c sıcaklığına rağmen, 77 K'de ve 0 T'da $5,5 \times 10^8 A/cm^2$ gibi yüksek deđerde koruyucu akıma sahip olması, onun benzer yöntemle hazırlanmış Y123 ve Nd123 süperiletkenleri ile karşılaştırılmasına imkân verir (Mochida vd., 2002).

Eritme yöntemi, zayıf bağlantı içermeyen büyük taneli ve yüksek deđerde koruyucu akıma sahip RE-Ba-Cu-O malzemelerinin üretiminde başarılıdır. İri taneye sahip tek kristal üretmek için, üstten tohumlamalı eritme-büyütme tekniđi yaygın olarak kullanılmaktadır.

Bu yöntem büyük açılı tane sınırlarından kaynaklanan zayıf taneler arası etkileşim probleminin üstesinden gelinmesine olanak sağlar. Buna rağmen yöntem, hassas bileşim kontrolüne, hassas sıcaklık değişimine (gradyant) ve uzun işlem zamanına gereksinim duyar. Bu nedenle, manyetik olarak yükselmiş tren gibi bazı pratik uygulamalar için gerekli olan 100 mm'den büyük tek kristal tanesinin üretilmesi zordur (Hull, 2000; Fujimoto, 2000). Bu nedenle seri üretim için daha kolay bir yöntem aranır. Birleştirme işlemi, birleşebilen süperiletkenlerin boyutlarıyla sınırlandırılmayacağından, eritme işlemiyle elde edilmiş bulk (külçe) malzemelerin birleştirilmesi onları eriterek sağlanabilir. Külçe şeklindeki yüksek sıcaklık süperiletken uygulamalar için uygun özellikler bu yöntemi elverişli yapar. RE123 ailesi içerisinde, Yb123 en düşük ayrışma sıcaklığına sahip olduğundan, bu yapı birleştirme (kaynak) malzemesi olarak kullanılabilir. Delamare ve arkadaşları, iki Y123 tanesini Yb123'ü kaynak malzemesi olarak kullanarak birleştirmeyi başardı. Onlar çalışmalarında, iki bitişik Y123 taneleri arasında Yb123'ün, süperiletkenliği bozan farklı fazlara (Yb_2BaCuO_5 , $BaCuO_2$ ve CuO) ayrıştığını gözlemlediler. Bu durum RE123'ün uygun bir şekilde birleştirilmesi yönteminde, Yb123 kullanımının zorunlu olduğunu gösterir. Diğer taraftan bazı araştırmacılar, Y123 kristallerini birleştirmede Yb 123' ü birleştirme malzemesi olarak kullandılar ve manyetik kaldırma kuvvetini orijinal değerinin %92 oranında elde ettiler (Delamare vd., 2000; Mukhopadhyay vd., 2000; Athur vd., 1998).

1.15. Difüzyon Mekanizmaları

Sıvı ve gaz gibi akışkanlarda rasgele molekül hareketi, moleküler konsantrasyon farklılıklarının oldukça çabuk yok olmasına neden olur. Çoğu katılarda ve özellikle kristal yapıya sahip olanlarda, atomlar denge konumlarına daha sıkıca bağlıdırlar. Bununla beraber örgü içerisindeki bazı atomlar, ısı titreşiminden dolayı rasgele hareket ederler. Bu tür hareketler malzeme içerisinde madde taşınmasını sağlarlar ve bu olaya katı hal difüzyonu denir. Difüzyon olayı, metallerin ısı özelliklerinin iyileştirilmesinde, maddelerin katılaştırılmasında, transistor ve güneş pili üretiminde, çok amaçlı seramik üretiminde ve süperiletken seramiklerde süperiletkenlik mekanizmasının anlaşılmasında kullanılmaktadır.

Sabit bir kaynaktan difüzyon yönteminde atomların difüzyonu, malzemenin yüzeyi genellikle difüzyonu yapılacak olan maddenin kalın bir filmi ile kaplanarak, deneysel

olarak gerçekleştirilir. Bu durumda difüzyon tavlama sürecinde, numunenin yüzeyindeki safsızlık konsantrasyonunun sabit tutulduğu (sabit kaynak) bir durum gerçekleşmiş olur.

Bir boyutlu, sabit kaynaktan difüzyon durumunda atom difüzyonu dinamiğini tanımlayan Fick' in II. kanunu,

$$\frac{\partial N}{\partial t} = D \frac{\partial^2 N}{\partial x^2} \quad (1.28)$$

eşitliğiyle verilir. Burada konsantrasyon alanı $N(x,t)$, t zamanı ve tek boyutlu x uzaysal değişiminin fonksiyonu olarak ele alınmıştır. İkinci derece kısmi diferansiyel denklem olan (1.28) denkleminin tek bir çözümü için, difüzyon alanında iki bağımsız şarta ihtiyaç vardır. Pratikte çok sık karşılaşılan yarı-sonsuz bir katıda, sabit bir kaynaktan meydana gelen difüzyon süreci için başlangıç ve sınır şartları sırasıyla aşağıdaki gibidir:

$$t = 0, x > 0 \text{ için } N(x,0) = 0 \text{ ve } x = 0, t > 0 \text{ için } N(0,t) = N_0 \quad (1.29)$$

Yukarıdaki iki şart dikkate alınarak, sabit bir kaynaktan ileri gelen difüzyon için (1.28) denkleminin çözümü,

$$N(x,t) = N_0 \left(1 - \operatorname{erf} \frac{x}{2\sqrt{Dt}} \right) \quad (1.30)$$

şeklinde olur. Burada $N_0 = N(0,t)$, numune yüzeyindeki sabit konsantrasyonu; $N(x,t)$, x derinliğindeki safsızlık konsantrasyonunu; D , difüzyon katsayısını; t ise difüzyon süresini ifade etmektedir. Ayrıca $z = x / 2\sqrt{Dt}$ olmak üzere $\operatorname{erf}(z)$ Gauss hata fonksiyonudur ve bu fonksiyon aşağıdaki denklem ile tanımlanır:

$$\operatorname{erf}(z) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^z e^{-z^2} dz \quad (1.31)$$

(1.30) denkleminde $\operatorname{erfc}(z) = 1 - \operatorname{erf}(z)$ olduğundan bu denklem genellikle

$$N(x,t) = N_0 \operatorname{erfc} \frac{x}{2\sqrt{Dt}} \quad (1.32)$$

şeklinde yazılır (Glicksman, 2000; Shewmon, 1963).

1.15.1. Yüksek Sıcaklık Oksit Süperiletkenlerinde Difüzyon Mekanizmaları

Yüksek sıcaklık seramik oksit süperiletkenlerde; nokta kusurları (boşluk ve arayer), bir ve iki boyutlu kusurlar (dislokasyonlar, istif kusurları ve tane sınırları) ve üç boyutlu (gözenekler, mikroçatlaklar, vs.) yapısal kusurların hemen hemen bütün mümkün tipleri gözlenmiştir.

Tek kristal oksit süperiletkenlerde atomların taşınma (migration) mekanizması yarıiletkenlerdeki benzer şekilde olup bunlar;

- a) boşluk mekanizması,
- b) arayer mekanizması,
- c) ayrışım mekanizması,
- d) istif kusurları ve dislokasyon yolu ile taşınma,

şeklinde sıralanabilir.

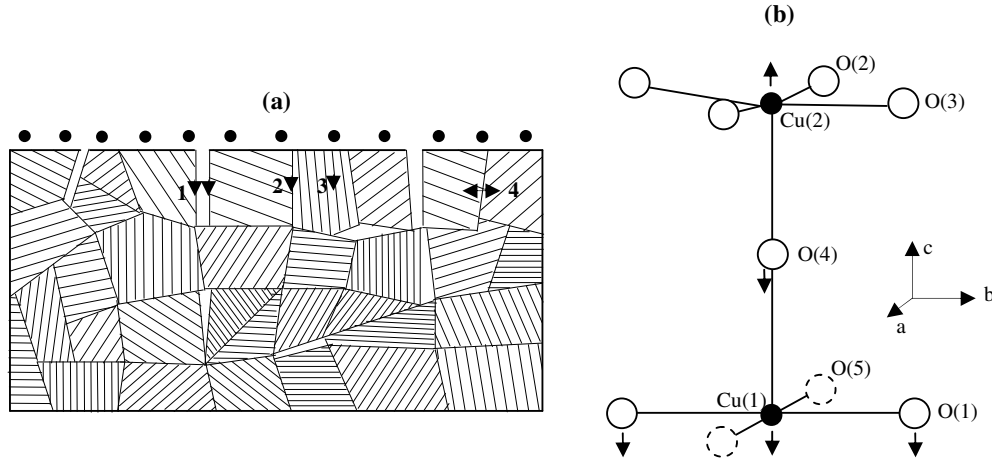
Kristal yapısında gözeneklere ve tanelere sahip olan polikristal seramik süperiletkenlerde atomik difüzyon ise (Şekil 1.18a),

- a) gözenek yüzeyleri boyunca,
- b) tane sınırları boyunca,
- c) ikizleme sınırları boyunca,

d) taneler içine (tek kristallerde karakteristik difüzyon mekanizmaları ile) taşınma yoluyla gerçekleştirilebilir (Dzhafarov, 1996; Abdullaev ve Dzhafarov, 1987; Choi vd., 1990).

Polikristal süperiletken tanelerde boşlukla taşınma mekanizması (tek kristalde difüzyon durumlarında) örgünün esas iyonlarının iyonik yarıçapına, yüküne ve elektron yapısına benzer atomlar için uygundur. $YBa_2Cu_3O_7$ da katyon yerdeğiştirmesinin hesaplanmış çözünme enerjileri (belli konumdaki Y^{+3} , Ba^{+2} , Cu^{+2} ve O^{-2} atomlarının iyonik yükleri ile), katkı iyon yarıçapının bir fonksiyonu olarak büyük sistematik değişimler göstermektedir (Islam ve Baetzold, 1989). Bu sonuçlar, iki değerlikli M^{+2} ($M^{+2} = Ni^{+2}$, Zn^{+2} ve Cd^{+2}) katyonlarının komşu örgü iyonlarının yerine geçerek ve yerel simetride küçük değişikliklere sebep olarak, tercihen düzlemdeki Cu(2) konumlarına yerleşeceklerini ima eder (Şekil 1.18b). Katkı iyonlarıyla kuşatılmış Cu(2) konumundaki bir esas örgü iyonunun katkı iyonuyla yerdeğiştirmesi, Cu(1)-O(4) bağ mesafesinin azalmasıyla ve M^{+2} -

O(4) bağ mesafesinin artmasıyla sonuçlanır. Cu(1)-O(4) bağ mesafesi ise $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}'$ 'nun elektriksel özelliklerini yansıtan önemli bir parametredir.



Şekil 1.18. (a) Seramik süperiletkenlerde; gözenek yüzeylerine (1), tane sınırlarına (2), ikizlenme sınırları boyunca (3), ve tane içlerine difüzyon (4) hareketinin şematik gösterimi. (b) CuO_2 düzleminde Cu(2) konumlarına iki değerlikli bir geçiş metal iyonunun yerleşmesi

Üç değerlikli Al^{+3} ve Fe^{+3} için çözünme enerjilerinin hesaplanmış değerleri, bu iyonların yerel olmayan model için Cu(2) yerlerini ve daha yerel model için Cu(1) yerlerini işgal ettiğini işaret eder. Pratikte bunların her ikisi de meydana gelir ve bu yerleşmeler ısı işlem ve kısmi oksijen basıncı ile kontrol edilebilir. Y123 bileşiklerinde hem itriyum hem de baryum nadir toprak elementleriyle yer değiştirebilir. Baryumun yerine üç değerlikli nadir toprak iyonları (lutesyum, gadolinyum, holmiyum, europyum, neodimyum ve lantanyum) yerleştiğinde, iyon büyüklüğü ile çözünme enerjilerinin bir ilişkisi gözlenmektedir.

Şimdiye kadar yapılan araştırmalar, manyetik ve eşelektronik yapıları nadir toprak iyonlarının (neodimyum, samaryum, europyum, gadolinyum, holmiyum, erbiyum ve lutesyum) esas örgüdeki Y^{+3} iyonlarının yerine yerleştiğini ve süperiletken geçiş sıcaklığına önemli bir etkisinin (2-3K) olmadığını göstermektedir. Ca, Sr alkali toprak iyonları, kristalde Ba^{+2} konumlarına yerleşirken, Ni^{+2} , Zn^{+2} , Cd^{+2} ve Al^{+3} geçiş metal kanyonları, tercihen bakır konumlarına yerleşebilir. Katkı iyonları hem polikristal Y123'ün tanelerinde, hem de tek kristal Y123'de CuO_2 düzlemlerinde veya Cu-O zincirleri boyunca taşınmaktadır (Islam ve Baetzold, 1989; Taka vd., 2002).

Y123 süperiletkeninde birim hücre, 750 °C'den daha büyük sıcaklıklardan oda sıcaklığına soğutma işlemi esnasında tetragonal yapıdan ortorombik yapıya dönüşür ve oluşan ortorombik fazdaki biçim bozulmaları, ikizlenmeler tarafından sağlanır. İkizlenmeler genellikle tetragonaldan ortorombik faza geçiş esnasında oksijen düzenlenmesiyle ilgili şekil değişiminden kaynaklanan stresleri barındırarak, (110) ve $(1\bar{1}0)$ düzlemlerinde şekillenirler. Dolayısıyla Y123 süperiletkeninde ikizlenme sınırları kolay bir difüzyon yolu gibi davranır. Diğer yüzey kusurlarıyla birlikte (gözenekler, istif kusurları vs.) bu ikizlenmeler ve "domain" ler oksit süperiletken bileşimlerinde atomik difüzyona etki edebilmektedir. Böylece yüksek sıcaklık seramik süperiletkenlerde difüzyon aynı anda; (a) gözeneklerin yüzeyleri, ikizlenmeler, "domainler" ve tane sınırları boyunca hızlı difüzyon ve (b) tane içlerine doğru yavaş difüzyon şeklinde iki yolla olabilmektedir (Şekil 1.18a) (Çevik, 1998).

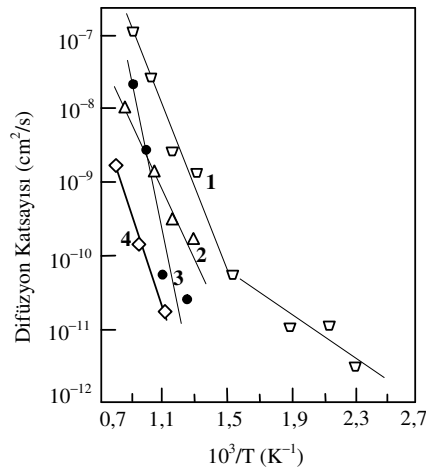
Günümüze kadar farklı araştırmacılar tarafından süperiletkenlik mekanizmasının anlaşılması amacıyla yüksek sıcaklık oksit süperiletkenlerine değişik elementlerle difüzyon çalışmaları yapılmıştır (Tablo 1.5 ve Şekil 1.19) (Dzhafarov, 1996; Berenov vd., 2002). Radyoaktif Cu elementinin, yaklaşık % 5 boşluğa (poroziteye) sahip $YBa_2Cu_3O_{7-y}$ polikristal süperiletkeni üzerine seri çıkarma yöntemiyle yapılmış difüzyon çalışmasında, difüzyon katsayısının 800-950 °C sıcaklık aralığında $D = D_0 \exp(-E_a/kT)$ ile verilen Arrhenius bağıntısına uyduğu ve 2,65 eV'luk aktivasyon enerjisine sahip olduğu görüldü. Bu çalışmada oksijen kısmi basıncı azaldıkça, bakırın difüzyon katsayısı artmaktadır. Değişen oksijen kısmi basıncı ile Cu-O düzlemindeki oksijen iyonlarının konsantrasyon ve düzenlenmesinin yeniden sağlanması ve böylece bakırın difüzyon katsayısının değişmesi, bakır difüzyonunun, düzlemdeki Cu-O zinciri boyunca olduğunu gösterir. Oksijen kısmi basıncının azalması oksijen iyonu boşluk (vacancy) sayısının arttırır, bu durum ise Cu difüzyon katsayısının artmasına sebep olur. Y123 süperiletken seramiklerinde demir ve kobalt difüzyonu, enerji ayırmalı x-ışınları floresans tekniği (EDXRF) ile 615-880°C sıcaklık aralığında incelendi (Dzhafarov vd., 1996). Demir difüzyonu yapılmış ortorombik $YBaCuO$ örneğinin c örgü parametresi, difüzyon sıcaklığıyla (200-500°C aralığında) doğrusal olarak artarken kobalt difüzyonu yapılmış numuneni c parametresi sıcaklıkla azalmaktadır. Buna ilave olarak Y123'de her iki tür katkı difüzyonunun tetragonal fazın oluşumunu teşvik ettiği belirtilmiştir (Felner ve Brosh, 1991).

Eritme yöntemiyle büyütülmüş (textured) Y123 polikristal örneğe yapılan Ca ve Ag difüzyonunda, bu elementlerin tane sınırlarına yerleşerek kritik akım yoğunluğunu (J_c)

önemli oranda iyileştirdiği belirtildi (Zhao ve Cheng, 2003; Cheng vd., 2003). Ca difüzyon etkisi, tane sınırlarına (GB) yük taşıyıcı sağlayarak tane sınırı/eklem direncini azaltması ve böylece GB kritik akım yoğunluğunu artırması şeklinde açıklanır. Ag difüzyonu etkisi ise, Ag'in tane sınırı yakınında (GB) CuO_2 düzlemindeki Cu ile kısmi olarak yerdeğiştirebileceği, bu durumun Cu-O bağlarındaki geometrik bozulmayı azaltabileceği ve böylece etkin GB'nin daha ince olması şeklinde açıklanır.

Tablo 1.5. $D=D_0\exp(-E_a/kT)$ olmak üzere yüksek sıcaklık külçe (bulk) süperiletkenlerinde difüzyon katsayısının, difüzyon tavlama sıcaklığına bağlılığı

Süperiletken	Element	Sıcaklık (°C)	D_0 (cm^2/s)	E_a (eV)	Araştırma Tekniği
$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$	Cu	600-950	4	2,65	Radyoaktif-izotop
$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$	Ag	500-800	$1,0 \times 10^{-2}$	1,1	Radyoaktif-izotop
$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$	Au	500-800	$3,2 \times 10^{-4}$	1,0	Radyoaktif-izotop
$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$	Au	500-870	$3,4 \times 10^{-6}$	0,85	XRD
$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$	In	200-500	$1,1 \times 10^{-8}$	0,26	Radyoaktif-izotop
$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$	Sn	200-500	$8,0 \times 10^{-6}$	0,58	Radyoaktif-izotop
$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$	Ni	400-500	$1,0 \times 10^{-2}$	1,3	Radyoaktif-izotop
$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$	Fe	615-880	$1,5 \times 10^{-4}$	1,25 (yavaş)	EDXRF
$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$	Fe	615-880	$1,8 \times 10^{-5}$	0,90 (hızlı)	EDXRF
$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$	S	200-300	$5,0 \times 10^{-7}$	0,32 (yavaş)	Radyoaktif-izotop
$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$	S	300-500	$4,6 \times 10^{-6}$	0,42 (hızlı)	Radyoaktif-izotop
$\text{BiPbSrCaCuO}(2223)$	Ag	350-800	$5,2 \times 10^{-3}$	0,70	Direnç
$\text{BiPbSrCaCuO}(2223)$	Ag	600-817	$6,7 \times 10^{-7}$	3,5	Radyoaktif-izotop
$\text{BiPbSrCaCuO}(2223)$	S	200-500	$6,9 \times 10^{-9}$	0,31 (yavaş)	Radyoaktif-izotop
$\text{BiPbSrCaCuO}(2223)$	S	200-500	$1,6 \times 10^{-8}$	0,15 (hızlı)	Radyoaktif-izotop



Şekil 1.19. $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ süperiletkeninde, Ag (1, □), Au (2, △), Cu (3, ●) ve Fe (4, ◇) elementlerinin sıcaklığa bağlı difüzyon katsayıları

2. DENEYSEL ÇALIŞMALAR

2.1. YBa₂Cu₃O_{7-x} (Y123) Bileşiminin Hazırlanması

Katıhal tepkime yöntemiyle hazırlanacak YBa₂Cu₃O_{7-x} bileşimini üretmek için Y₂O₃, BaCO₃ ve CuO tozları tartıldı ve akik taşından yapılmış havan yardımıyla tozların birbiri içerisinde homojen bir şekilde karışması sağlandı. Toz bileşiklerin miktarları YBa₂Cu₃O_{7-x} stokiometresine uygun olarak aşağıdaki kimyasal tepkime yardımıyla hesaplandı.



Kullanılan başlangıç tozlarının saflık dereceleri, molekül ağırlıkları ve 20 gr'lık toplam kütle için toz bileşimi miktarları Tablo 2.1'de verildi.

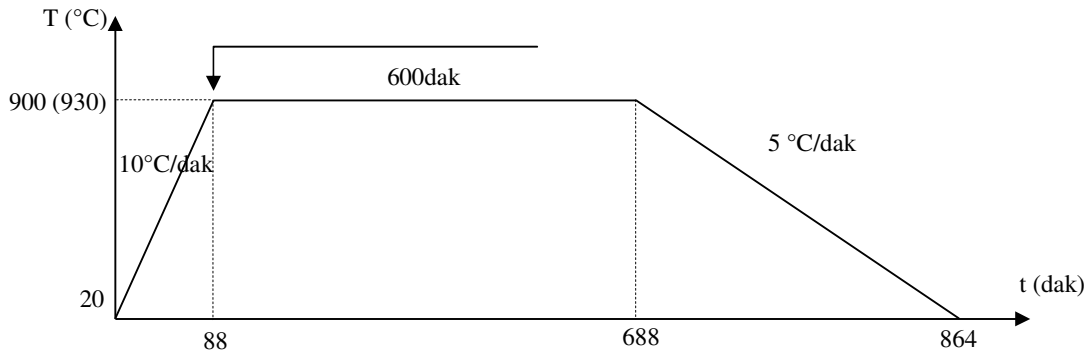
Tablo 2.1. Başlangıç kompozisyonunun hazırlanmasında kullanılan toz bileşimleri ve miktarları

Tozun Adı	Sembolü	Saflık Derecesi (%)	Molekül Ağırlığı (a.u.)	Bileşik Miktarı (gr)
Yttriyum Oksit	Y ₂ O ₃	99,99	225,81	3,0260
Baryum Karbonat	BaCO ₃	99,7	197,35	10,5786
Bakır Oksit	CuO	99,9	79,54	6,3954

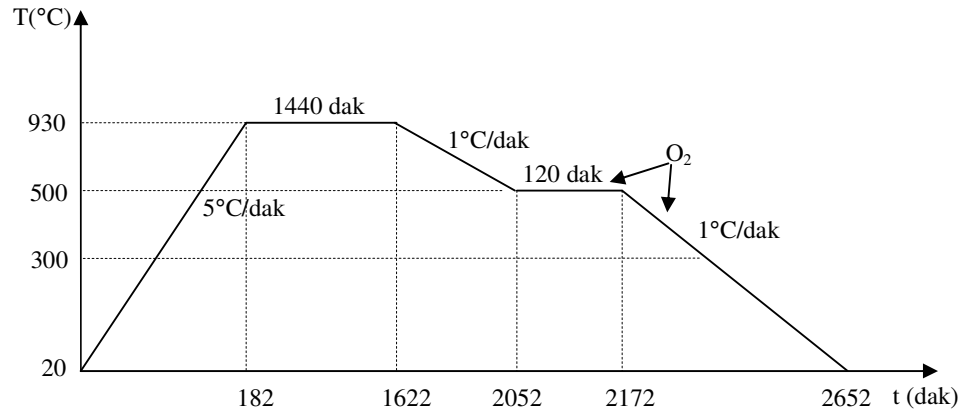
Homojen karışım elde etmek için uygulanan 30 dakikalık öğütme işleminden sonra, elde edilen gri renkli toz karışım alümina (Al₂O₃) pota içerisine konarak Euroterm 808 kontrol üniteli Lenton marka kare fırın içerisine kalsinasyon işlemi için yerleştirildi. Kalsinasyon ilk reaksiyon anlamına gelip, toz karışımın ilk termo-kimyasal işlemi oluşturur. Kalsinasyon işlemi yardımıyla ana fazı oluşturacak ikili ve üçlü fazların oluşumu gerçekleşir. Tozlar, 900 °C, 920 °C ve 930 °C'de 10 saat süreyle üç defa kalsinasyon işlemine tabi tutuldu. 930 °C deki kalsinasyon işlemi sürecinde tozlar fırından çıkarıldı ve 15 dakikalık ara öğütmeden sonra tekrar aynı sıcaklığa kondu. Oda sıcaklığında fırından çıkarılan karışımın siyaha yakın (koyu gri) renkte olduğu ve bir miktar külçeleştiği

gözlendi. Kalsinasyonun tamamlanmasından sonra tozlar, önce agad havanında elle öğütüldükten sonra, 30 dakika mekanik karıştırıcıda karıştırıldı. Karıştırılan tozlar, sinterleme işlemi için hazır hale getirildi.

Öğütülen tozlar, 1 dakikalık uygulama süresiyle 4 ton/cm^2 (400 MPa) basınç altında, 13 mm çapında, 1'er gramlık tabletler halinde basıldı. Tabletler, bir kare fırında, $930 \text{ }^\circ\text{C}$ 'de 24 saat süreyle sinterlendi. Sinterleme işlemi, Süperiletken fazı elde etmek, karışımı oluşturan atomlar arasındaki bağları kuvvetlendirmek, polikristalleri meydana getirmek ve kristal kusurlarını ortadan kaldırmak için uygulanır. Son olarak, sinterlenmiş örnekler $500 \text{ }^\circ\text{C}$ 'de O_2 ortamında 2 saat bekletildikten sonra $1 \text{ }^\circ\text{C/dak}$ hızla $300 \text{ }^\circ\text{C}$ sıcaklığına ve bu değerden sonrada oda sıcaklığına soğutuldu. Bu ısıl işlemlerin şematik gösterimleri Şekil 2.1 ve Şekil 2.2 de verildi.



Şekil 2.1. Toz karışımının kalsinasyon işlemi sıcaklık-zaman grafiği



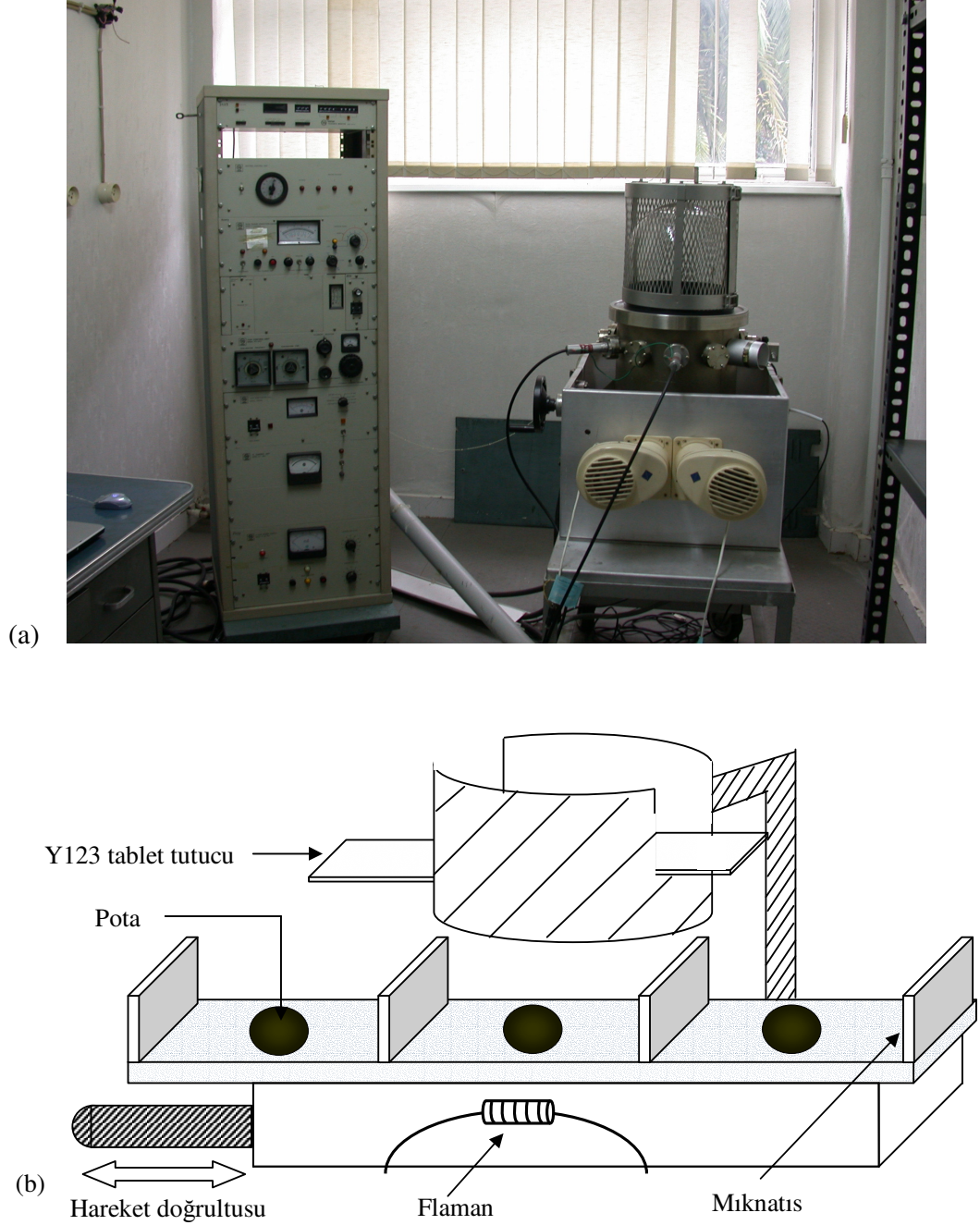
Şekil 2.2. Saf $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ örneğinin sinterleme ve oksijen verme işlemi sıcaklık-zaman grafiği

2.2. Gadolinyum ve İterbiyumun Y123 Süperiletkenine Difüzyonu

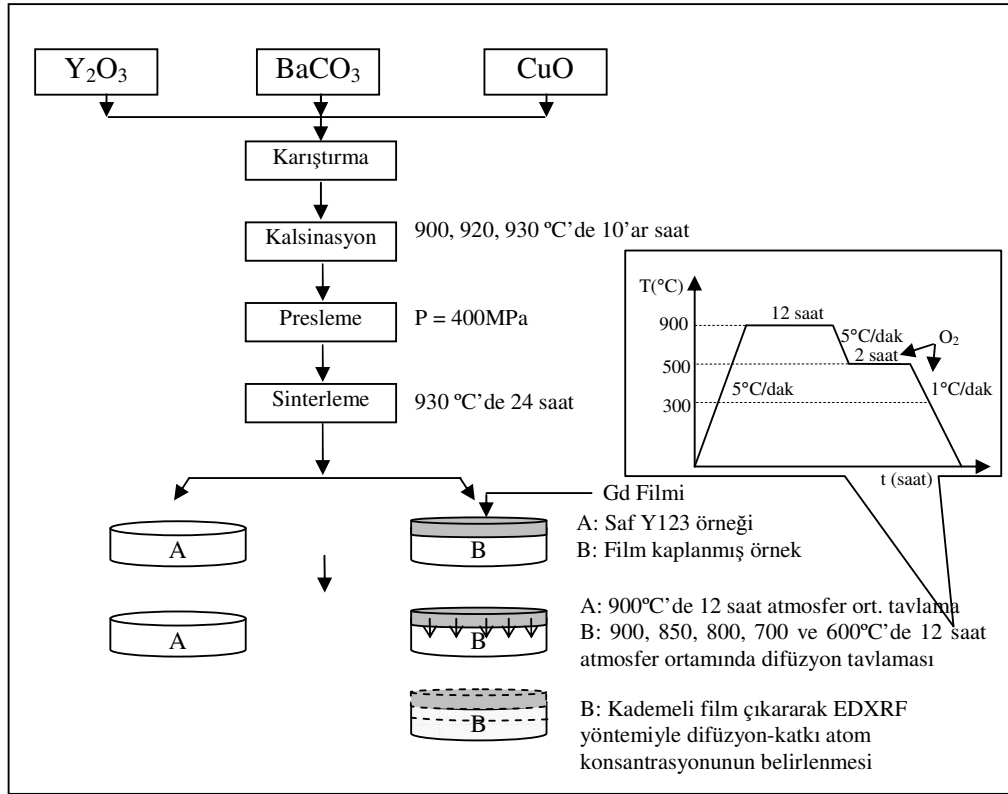
Bu çalışmada, önceden hazırlanan silindirik biçimli $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ (Y123) örneklerinin bir yüzeyi üzerine gadolinyum (Gd) veya iterbiyum (Yb) filmi uçurmak için, VARIAN VT-422 elektron demetli buharlaştırma sistemi kullanıldı (electron beam evaporation). Bu buharlaştırma ünitesinde, sıvı azot soğutmalı ön vakum ve yüksek vakum (iyon ve titanyum süblimasyon) pompaları kullanılarak, yaklaşık 9×10^{-7} torr'luk bir vakum değerine ulaşılmaktadır. Buharlaştırma esnasında ise bu vakum değeri 10^{-5} torr'a kadar düşmektedir. Bu sistemde, bakır potalardaki buharlaştırılacak malzeme, bir elektron tabancası ile bombardıman edilmekte ve potalar su ile soğutulmaktadır. Buharlaştırılacak malzeme, potaya konularak elektron tabancası çalıştırılır. Elektron kaynağı olarak kullanılan tungsten filamanla pota arasına yaklaşık 4 kV'luk bir gerilim uygulanır. Böylece elektronların filamandan ayrılıp buharlaştırılacak olan hedef örneğe ulaşması sağlanır. Hedef numune, Y123 üzerine buharlaştırılacak filmin başlangıç tozunun önceden preslenip, yaklaşık $1 \times 2 \times 9 \text{ mm}^3$ boyutlarında kesilmesiyle oluşturulmuştur. İnce filmi üretilecek olan hedef malzemenin konulduğu bakır potaların kenarlarına yerleştirilmiş olan düşey mıknatıslar, filamandan çıkan elektronları potaya odaklar. Ayrıca potaların bulunduğu bakır bloğun doğrusal olarak hareket etmesi, filamandan çıkan yüksek enerjili elektronların hedef malzemenin tüm yüzeyine ulaşmasını sağlar. Şekil 2.3 (a) da VARIAN VT-422 elektron demetli buharlaştırma sisteminin optik fotoğraf ve (b) de bu sistemde kullanılan elektron tabancası ve potaların şematik görüntüsü verilmiştir.

Yapılan çalışmada, özel deneylerle (belirli bir miktar gadolinyum veya iterbiyumun cam yüzeyine buharlaştırılması ve buharlaştırılan film kütlesinin ölçülmesiyle) Y123 örnek yüzeyinde oluşturulan film kalınlığı yaklaşık $4 \text{ }\mu\text{m}$ olarak bulundu. Buharlaştırma işlemi tamamlandıktan sonra Gd ve Yb kaplanmış tabletler Euroterm 818 kontrol üniteli 120 cm uzunluğundaki Lenton marka yatay tüp fırında; 600, 700, 800, 850 ve 900 °C de 12 saat, ayrıca 800 °C'de 24 ve 48 saatlik sürelerle termal difüzyona tabi tutuldular. Örnek hazırlama ve difüzyon işleminin şematik görünümü Şekil 2.4' te verildi. Sabit sıcaklıkta bekletilen örneklere $5 \text{ }^\circ\text{C/dak}$ 'lık yavaş soğutma uygulandı. Isıl işlemlerde kullanılan fırın kontrolörlerinin sıcaklık ölçüm hassasiyeti $\pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ 'dir. Yapılan birçok deneme sonucunda en iyi difüzyon tavlama sıcaklığının 900 °C olduğunu belirledikten sonra, karşılaştırma amacıyla difüzyon yapılmamış Y123 örnekleri de 900 °C'de 12 saat termal tavlama tabii

tutuldu. Difüzyon işleminin sonunda tüm örnekler 500 °C'de 2 saat oksijen ortamında tutularak 1 °C/dak hızla 300 °C'ye kadar soğutuldu.



Şekil 2.3. (a) VARIAN VT-422 elektron demetli buharlaştırma sisteminin optik fotoğraf ve (b) bu sistemde kullanılan elektron tabancası ve potaların şematik görüntüsü



Şekil 2.4. Örnek hazırlama ve difüzyon işleminin şematik görünümü

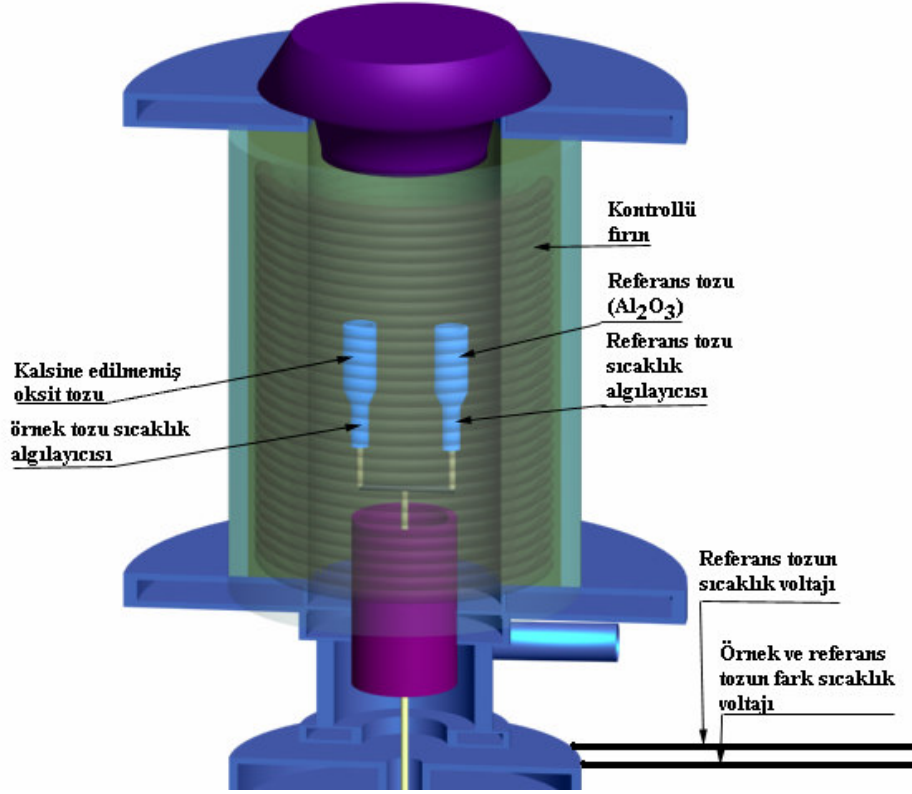
2.3. Yapılan Ölçümler

2.3.1. Diferansiyel Termal Analiz (DTA) Ölçümü

Y123 bileşimine uygun olarak karıştırılan başlangıç tozlarından numunenin; kalsinasyon, sinterleme, faz geçiş ve oksijen salma veya alma sıcaklıklarını belirlemede toz örneğin DTA ölçümünden yararlandı. Bu ölçümler sonucunda örneklerin kalsinasyon ve sinterleme sıcaklıkları belirlendi.

Örneklerin endotermik ve ekzotermik reaksiyonunun sıcaklığa göre değişimi DTA analiziyle saptandı. Örnek toz ve referans örneği olarak kullanılacak Al₂O₃ tozu küçük iki ayrı alümina potaya yerleştirildi. Daha sonra fırın 5 °C/dak hızla 1070 °C sıcaklığa kadar ısıtıldı. Deney süresince Al₂O₃ tozunun sıcaklığı (T) ve örnek ile referans tozu sıcaklıkları farkı ΔT (voltaj cinsinden) ölçüldü. DTA ölçümünde kullanılan örnek tozları, daha önceden sitokiyometrik oranlarda karıştırılmış oksit tozlarıdır. Sıcaklık ölçümlerinde Pt-

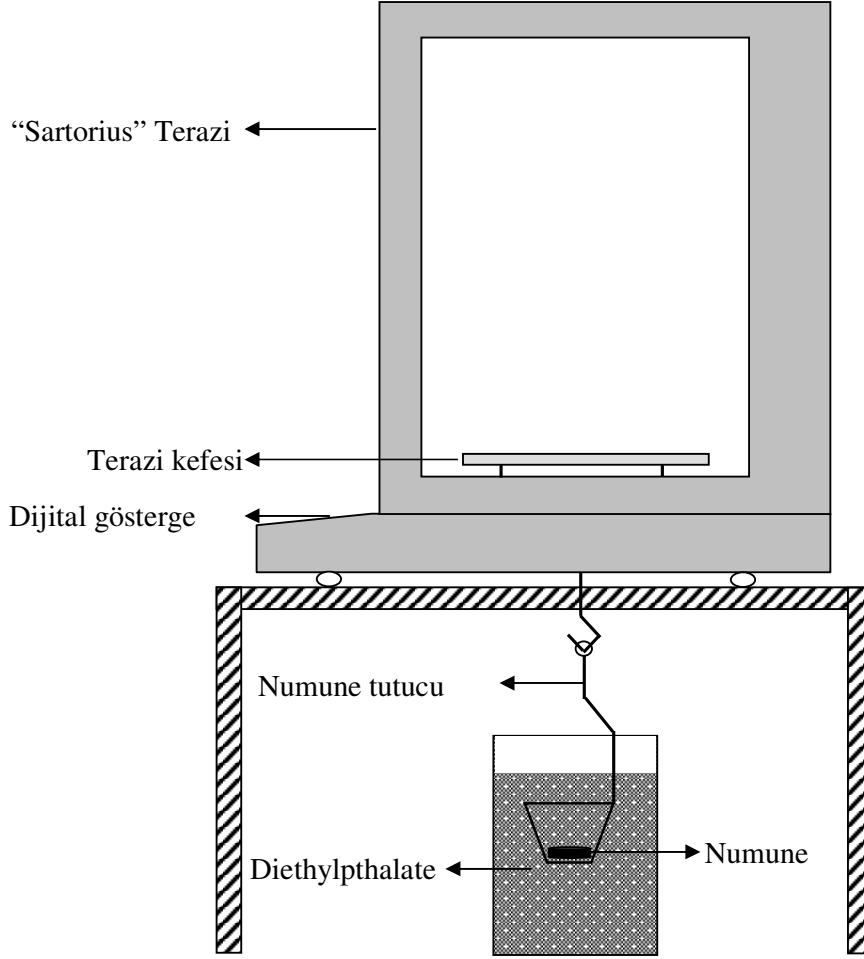
Pt/Rh%13 termoçift kullanıldı. Ölçümler, geliştirilen bir program kullanılarak bilgisayar yardımıyla yapıldı. DTA sisteminin şematik çizimi Şekil 2.5’te verildi.



Şekil 2.5. Diferansiyel termal analiz aletinin(DTA) sistem geometrisi

2.3.2. Yoğunluk Ölçümleri

Sinterleme işleminden sonra tüm örneklerin yoğunluk ölçümü Archimed yoğunluk ölçme sistemi (densitometre) ile yapıldı. Deney düzeneği Şekil 2.6’da görüldüğü gibi, yoğunluğu 15 °C’de 1,122 g.cm⁻³ olan diethylphthalate sıvısına kısmen batırılmış askı ile Sartorius BP 110 S marka dijital mikrobalsan kontrollü bir teraziden ibarettir.



Şekil 2.6. Arshimed yoğunluk ölçüm yöntemi deney düzeneği

Yoğunluk ölçümü, örneklerin havadaki (M_h) ve sıvı içindeki kütlesi (M_s) ölçülerek gerçekleştirildi ve aşağıdaki formül kullanılarak yoğunluk değerleri hesaplandı.

$$\rho_n = \rho_s \frac{M_h}{M_h - M_s} \quad (2.2)$$

Bu formülde, ρ_n numunenin yoğunluğunu, ρ_s ise sıvının yoğunluğunu ifade etmektedir. Sıvı içerisindeki ölçümler, örnek sıvı içerisinde 30 s bekletildikten sonra alındı. Yoğunluk ölçümlerinde, yüksek yoğunluğa sahip bir sıvı olduğu için diethylphthalate kullanılmıştır. Bu yöntem, atomlar arası fazla boşluk içeren bir malzemenin yoğunluğunu hassas bir şekilde ölçmeye olanak verir.

2.3.3. X-Işınları Kırınımı Ölçümleri

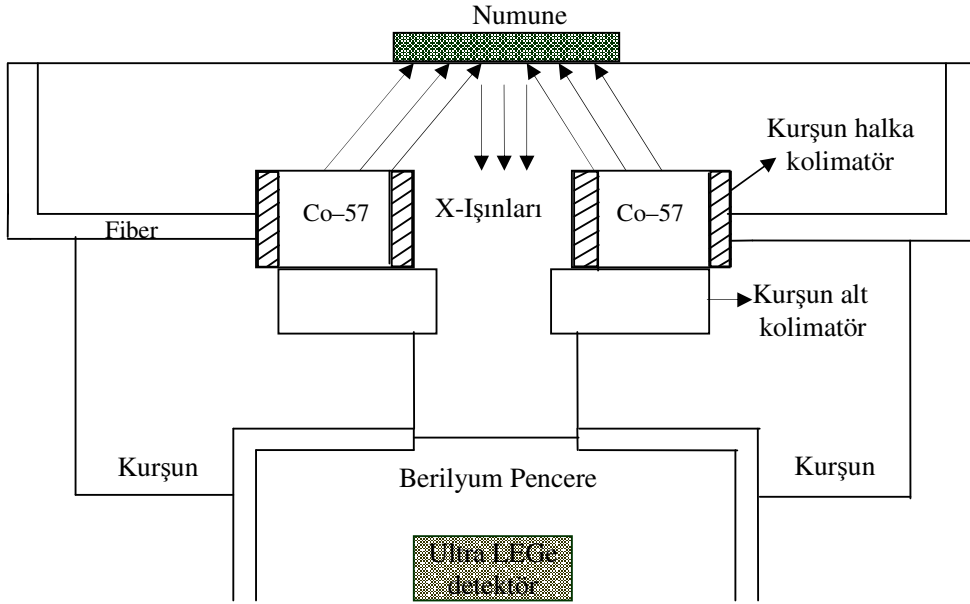
Üretilen saf Y123 ve difüzyona uğratılan Y123 örneklerinin x-ışınları kırınım desenleri Rigaku D/Max-III C difraktometresinde CuK_α ($\lambda = 1,5418 \text{ \AA}$, 40 kV, 30 mA) ışınımı kullanılarak elde edildi. Tüm ölçümler, oda sıcaklığında, $20^\circ \leq 2\theta \leq 60^\circ$ aralığında, $3^\circ/\text{dak}$. tarama hızında ve $0,02^\circ$ 'lik örnekleme aralığında yapıldı. Ölçüm yapılmadan önce, örneklerin yüzeyleri her defasında $1200 \mu\text{m}$ 'lik SiC zımpara kâğıdı kullanılarak kabaca alındı ve alkolle temizlendi. X-ışını kırınım desenlerinden kristalin örgü parametreleri, en küçük kareler yöntemiyle $\pm 0,004 \text{ \AA}$ hassasiyetle hesaplandı.

2.3.4. X-Işınları Flüoresans Ölçümleri

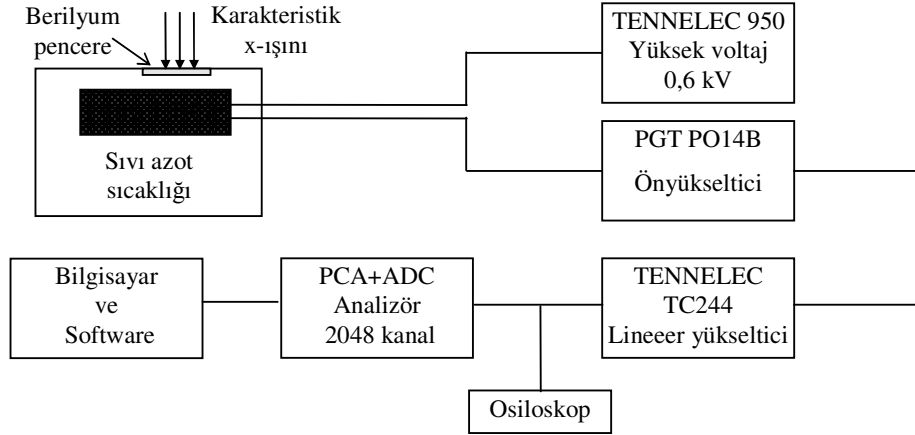
Karakteristik x-ışınları, madde içindeki bir elementin herhangi bir atomunun, iç yörünge elektronlarının uyarılmasıyla elde edilir. Bu uyarma sonucunda iç kabukların herhangi birisinde meydana gelen boşluğun, üst kabuklardaki elektronlardan biri tarafından doldurulması esnasında karakteristik x-ışınları yayınlanır. Uyarma yoluyla elde edilen bu ışınların enerjilerinin ölçülmesiyle; numune içerisindeki elementlerin nitel, şiddetlerinin ölçülmesiyle de nicel tayini yapılır (Jenkins, 1988).

Y123 örneklerine Gd ve Yb termal difüzyonu işleminden sonra Gd ve Yb atomlarının konsantrasyonları x-ışınları flüoresans yöntemiyle (EDXRF) belirlendi. Gd ve Yb atomlarının uyarılmasında $123,6 \text{ keV}$ enerjiye sahip fotonlar yayan Co-57 radyoaktif halka kaynağı (25 mCi) kullanıldı. Bu atomların K_α karakteristik x-ışını piklerinin ölçülmesinde, yarı maksimumdaki tam genişliği 150 eV olan Ultra LEGe detektörü kullanıldı. Ölçümlerin alındığı x-ışınları flüoresans sisteminin deney geometrisi Şekil 2.7 ve sistemin blok diyagramı ise Şekil 2.8'de verildi.

Difüzyon parametrelerinin belirlenmesinde, Gd ve Yb difüzyon edilmiş Y123 örneğinin yüzeyinden her defasında yaklaşık $10\text{-}20 \mu\text{m}$ kalınlığında ince filmler çıkartıldı. Her film çıkarma işleminden önce ve sonra örnekten yayınlanan $\text{GdK}_{\alpha 1}$ ($42,99 \text{ keV}$) ve $\text{YbK}_{\alpha 1}$ ($52,38 \text{ keV}$) karakteristik x-ışını piklerinin şiddetleri ölçülerek, bu ışınların şiddetlerinde meydana gelen değişimler belirlendi. Bu değişimden yararlanarak Gd ve Yb atomları konsantrasyonlarının derinliğe bağlı olarak belirlenmesi, ölçülen pik şiddetlerini konsantrasyona bağlayan uygun kalibrasyon işlemi yaparak gerçekleştirildi.



Şekil 2.7. X-ışınları floresans (EDXRF) ölçümleri için deney geometrisi



Şekil 2.8. X-ışınları flüoresans ölçüm sisteminin blok diyagramı.

Ölçümler sonucunda, örneklerin kalınlığına göre, Gd ve Yb atomlarının konsantrasyonlarının değişim eğrilerinden YBCO örneğindeki Gd ve Yb atomlarının difüzyon katsayıları (1.32) ifadesi kullanılarak hesaplandı. Ayrıca farklı sıcaklıklarda hesaplanan Gd ve Yb difüzyon katsayıları kullanılarak ve

$$D = D_0 \exp(-E_a/kT) \quad (2.3)$$

Arrhenius bağıntısından yararlanarak aktivasyon enerjileri (E_a) belirlendi (Glicksman, 2000; Bacaksız vd., 2004).

2.3.5. Optik ve Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM) Ölçümleri

Örneklerin parlatma işleminden önce yüzeyleri 1200 μm 'lik SiC zımpara kağıdı kullanılarak kabaca alındı ve alkolle temizlendi. Daha sonra parlatma bezi üzerine 10 μm ve 0,25 μm 'lik elmas pasta kremi sürülerek, bütün örnekler Logitech PM2 marka otomatik parlatma aletinde parlatıldı. Örneklerin yüzey mikroyapıları, polarize ışıklı bir optik mikroskop kullanılarak incelendi. Nikon ECLIPSE ME600 model polarize ışıklı optik mikroskopta 20X büyütme, 10X göz büyütmesi ve Nikon Coolpix 995 model dijital fotoğraf makinesinin büyütme özelliğinden faydalanılarak optik mikroyapı çekimleri yapıldı. Ayrıca mikroyapı incelemesine ilave olarak örnek yüzeyinde (taneler arasında) oluşabilen yeni fazlar hakkında bilgi edinmek amacıyla, JEOL JSM 6400 model taramalı elektron mikroskobu (SEM) ile örneklerin mikrofotografı çekildi.

2.3.6. Düşük Sıcaklık Direnç ve Manyetizasyon Ölçümleri

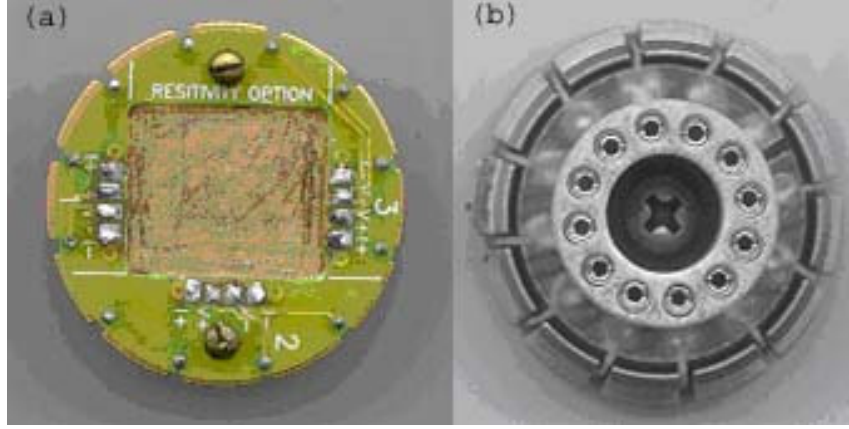
Direnç ve manyetizasyon ölçümlerinde "Quntum Design PPMS" sistemi kullanılmış olup, bu deney sistemi ilgili parça (modül) değiştirilerek çeşitli ölçüm sistemlerine dönüştürülebilmektedir. Laboratuarda mevcut olan modüller direnç ölçüm modülü ile titreşim örneklemeli manyetometre (VSM) modülü olup, deney sisteminin genel görüntüsü ise Şekil 2.9'da verildi. Fiziksel özellik ölçüm sistemi (PPMS); manyetik alan akım kaynağı, sıvı azot ceketli helyum tankı ve tüm bu bileşenleri hassas bir şekilde kontrol edebilen Quantum Design Model 6000 ana kontrolcüsünden meydana gelmektedir. Ana kontrolcü; sıcaklık kontrolcüsü (1,9 K – 400 K) ile manyetik alan kontrolcüsünü (-7 T – 7 T) içermekte olup, bilgisayar tarafından CAN (açık network protokolü) data iletişim kartı yardımıyla tamamen kontrol edilebilmektedir. PPMS ve VSM sistemleri, Quantum Design'ın tak-çıkartı özelliğe sahip gelecek nesil elektronik CAN mimariyi kullanarak tasarladığı ilk ölçüm sistemidir.



Şekil 2.9. Quantum Design PPMS sistemi

2.3.6.1. Düşük Sıcaklık Direnç Ölçümü

DC direnç modülü “Model 6000 PPMS” kontrolcüsüne direnç köprüsü eklenerek, direnç ölçüm sistemine dönüştürülmektedir. Bu köprü, dört nokta direnç ölçüm yöntemiyle veri alabilen birbirinden bağımsız dört kanal içermektedir. Program üç kanalı aynı anda kontrol edebilmektedir. Böylece, direnç ölçümlerinde Şekil 2.10’da görüldüğü gibi aynı anda 3 farklı örneğin (kanalın) direnci ölçülebilmektedir. Direnç ölçüm sistemini kontrol eden program, komutlar dizisinin sıralanması (sequence) şeklinde oluşturulmaktadır. Çalıştırdıktan sonra sistem kontrol edilirken, bir sonraki deney için yeni dosyaya aynı programda yeni sıralamalar yapılabilmekte ve kaydedilebilmektedir. Dolayısıyla sistem dosyadaki ilgili komutları ilk satırdan başlayarak yerine getirmekte ve böylece sistem haftalarca hiç durmadan çalışabilmektedir. Direnç ölçümünde gerekli olan akım, sistemdeki akım kaynağı tarafından 5 nA ile 5 mA aralığında istenilen değerde uygulanmakta olup sistemin voltaj okuma hassasiyeti ise 20 nV’tur.



Şekil 2.10. “Quantum Design” direnç ölçümü için örnek tutucunun üstten ve alttan görünümü

Örneklerin direnç ölçümü, 0,0; 0,5; 1,0; 1,5 ve 2,0 T gibi farklı manyetik alanlarda (manyetik alan örneğin difüzyon yapılmış yüzeyine dik) ve 50 – 100 K sıcaklık aralığında yapıldı. Her ölçüm öncesinde örnekler alansız olarak soğutuldu. Direnç ölçümlerinde kullanılan örneklerin boyutu yaklaşık $1 \times 2,5 \times 9 \text{ mm}^3$ olup, ölçümler örneğin difüzyon yapılmış yüzeyinden dört nokta yöntemiyle alındı. Manyetik alan, Şekil 2.9’da görülen sıvı helyum tankı içindeki Nd süperiletken telden oluşan bobine akım uygulanmasıyla elde edilmektedir ve manyetik alanın hassasiyeti ise 0,01 mT’dir. Ölçümlerde uygulanan akım 2 mA olup sıcaklık hassasiyeti ise 0,05 K’dir.

2.3.6.2. Düşük Sıcaklık Manyetizasyon Ölçümü

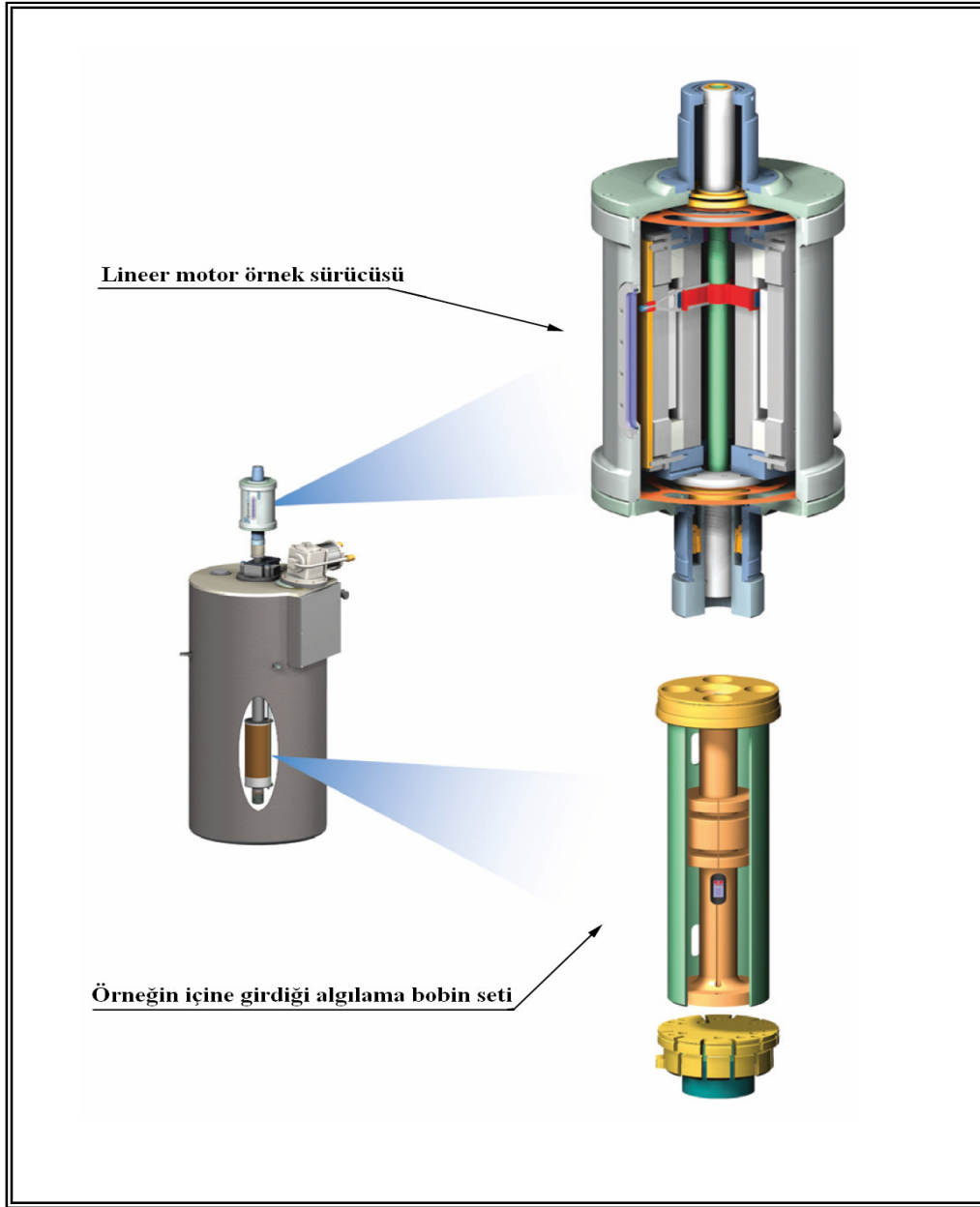
PPMS sistemine monte edilebilen Model P525 VSM ölçüm sistemi manyetizasyon ölçmekte olup; hızlı, hassas ve tamamen DC manyetometre kontrolüyle çalışmaktadır. Örneğin lineer titreşimi, VSM lineer motor hareketi tarafından sağlanmaktadır. Titreşim frekansı 40 Hz olup, titreşim hareketi yapılmadan önce örneğin başlangıç konumu (touch centering) sistem tarafından otomatik olarak veya kullanıcı tarafından belirlenir. VSM algılama bobininin hassasiyeti manyetik alanın büyüklüğüyle etkilenmemektedir.

Titreşim örnekleme manyetometre sistemindeki (VSM) manyetizasyon ölçümünde temel prensip, örneğin algılama bobini yakınında bobinin aksel yönünde titreştirilmesi sırasında eş zamanlı olarak algılama bobininde etki ile voltaj oluşturulması ve bu voltajın sistem tarafından ölçülmesidir. VSM algılama bobini, standart PPMS örnek yerleştirme

çubuğu kullanılarak PPMS örnek odasına yerleştirilir. Algılama bobiniyle birleşik, bağlı osilasyon genliği 1-3mm ve frekansı 40 Hz olan gradiyometre kullanıldığında, sistem 1 Hz veri hızında 10^{-6} emu'dan daha az değişimleri algılayabilmektedir. VSM sistemindeki algılama bobini ve gradiyometre birimleri Şekil 2.11'de verildi.

Manyetizasyon ölçümü için örnek, sinüsel titreşim yapan örnek çubuğunun ucuna takılır. Titreşim merkezi tayini, gradiyometre algılama bobinin dikey ortasında isteğe bağlı olarak otomatik veya elle oluşturulabilir. Doğru merkezleme ve titreşim genliği, optik lineer kod çözücü kullanan VSM motor modülü (parçası) ile kontrol edilir. Algılama bobininde indüktif voltaj yükseltildikten sonra, frekans ve faz kilitlemeli yükselteç tarafından VSM algılama modülünde ölçülür. Eş zamanlı algılama için VSM algılama bobini, referansa göre konum çözücü sinyali kullanır. Bu çözücü sinyal ise VSM lineer motor hareketini sağlayan modülden gelen ham sinyali dönüştüren VSM motor modülünden elde edilir. VSM algılama modülü, çözücünden ve algılama bobininden gelen yükseltilmiş voltajdan faz içi veya belirli fazlardaki sinyali algılar. Bu sinyallerin ortalaması alınır ve CAN arayüzeyi aracılığıyla bilgisayardaki programa komut karşılığı olarak gönderilir.

Çalışmada kullanılan örneklerin manyetizasyon ölçümleri, 5; 25; 50 ve 77 K'lik sabit sıcaklıklarda, 5 mT/s'lik süpürme hızında ve -3 T ile +3 T arasında manyetik alan uygulayarak yapıldı. Ölçüm süresince manyetik alan örneğin difüzyon yapılmış yüzeyine dik olarak uygulandı. Manyetizasyon ölçümlerinde örnek boyutları yaklaşık $0,4 \times 3,3 \times 2,8$ mm³ olarak belirlendi.



Şekil 2.11. VSM modülünün sıvı azot ceketli sıvı helyum tankındaki konumları. Üst taraf gradiyometre, alt taraf ise algılama bobininin büyütülmüş halini göstermektedir (Çelik, 2006).

3. BULGULAR VE TARTIŞMA

3.1. Giriş

Bu çalışmada, gadolinyum (Gd) ve iterbiyumun (Yb) termal yolla difüzyonunun Y123 süperiletkeninin fiziksel ve yapısal özelliklerini hangi oranda değiştirdiği araştırılarak, katkı difüzyon yöntemiyle süperiletkenlik mekanizmasını anlamaya ve süperiletkenlik özelliklerini geliştirmeye çalışıldı. Araştırmada, Y123 külçe örneği üzerine Gd ve Yb difüzyonu uygulandıktan sonra difüzyon edilmiş örneklerin yapısal özellikleri X-ışını kırınım analizi, taramalı elektron mikroskobu ve optik mikroskop ölçümleriyle; elektriksel ve manyetik özellikleri de PPMS sistemi kullanılarak R-T ve M-H ölçümleri ile incelendi. Farklı sıcaklıklarda termal difüzyon yapılan Y123 örneklerinin direnç ölçümlerinden, değişik manyetik alanlardaki aktivasyon enerjisi (U) ve üst kritik manyetik alan (H_{c2}) değerleri; manyetizasyon ölçümlerinden ise kritik akım yoğunluğu (J_c) değerleri belirlendi. Ayrıca Y123 süperiletken örneklerinde gadolinyum ve iterbiyum'un difüzyon katsayısı (D) ve difüzyon katkı atomu aktivasyon enerjisi (E_a) değerleri EDXRF yönteminden yararlanarak hesaplandı.

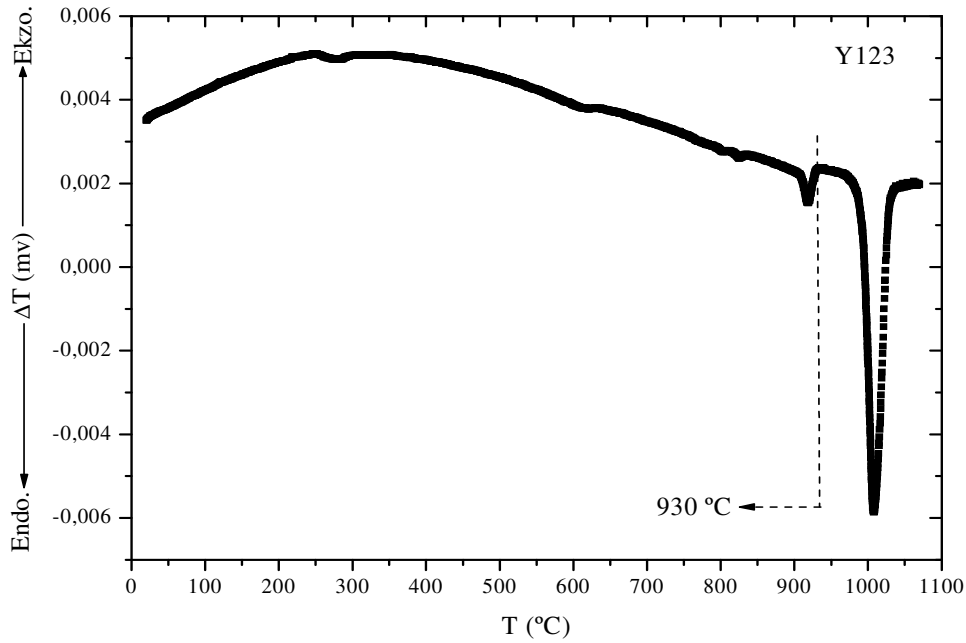
İsim birliği sağlamak için, temiz $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ (Y123) örneği ile 900, 800, 700, 600°C'lik sıcaklıklarda 12 saat Gd termal difüzyonu yapılan numuneler bundan sonra sırayla; Y123, Gd900, Gd800, Gd700 ve Gd600 olarak isimlendirilecektir. Ayrıca; 900, 800, 700, 600°C'lik sıcaklıklarda 12 saat Yb difüzyonu yapılan örneklerde sırayla; Yb900, Yb800, Yb700 ve Yb600 olarak isimlendirilecektir.

3.2. Gadolinyum (Gd) ve İterbiyum (Yb) Difüzyonunun Y123 Süperiletkeninin Yapısal, Elektriksel ve Manyetik Özelliklerine Etkisi

3.2.1. Temiz Y123 Örneğinin Özellikleri

Katıhal tepkime yöntemiyle üretilecek Y123 bileşimine uygun olarak karıştırılan başlangıç tozlarından örneğin, kalsinasyon; sinterleme; faz geçiş ve oksijen alma veya alma sıcaklıklarını belirlemede ve ayrıca difüzyon tavlama sıcaklığının belirlenmesinde toz örneğin Şekil 3.1'de verilen DTA ölçüm sonucundan yararlanıldı. Şekil 3.1'de, 950 °C'ye

kadar olan ısı işlem sürecinde belirgin bir katıhal faz geçişinin olmadığı görülmektedir. Şekilden Y123 süperiletkeni için erime sıcaklığının 950 °C'de başladığı görülmektedir. Üretilecek süperiletken örneğin sinterleme sıcaklığı, malzemenin peritektik reaksiyon sıcaklığından daha düşük olacağından Y123 örneği için kalsinasyon sıcaklığı 900 °C, sinterleme sıcaklığı ise 930 °C olarak alındı. Ayrıca 300 °C civarında görülen endotermik küçük tepe, Y123 örneğindeki oksijen soğrulmasına ve salınmasına atfedilebilir. Bu nedenle tüm örnekler 500 °C de 2 saat süreyle oksijen verildi ve O₂ ortamında 1 °C/dak'lık hızla 300 °C'nin altına soğutuldu.



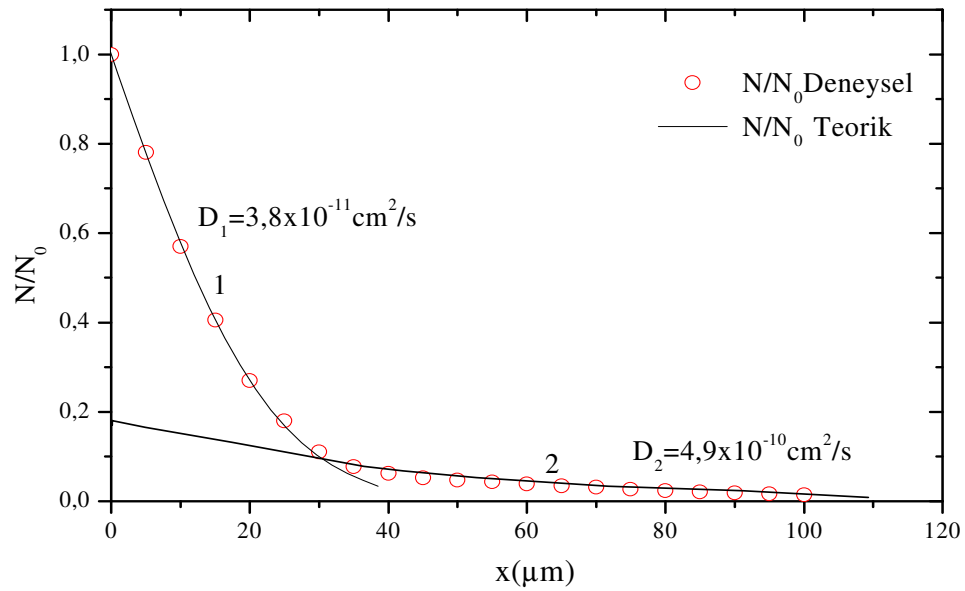
Şekil 3.1. Katıhal tepkime yöntemiyle üretilen Y123 süperiletken örneğinin başlangıç toz bileşiminden alınan DTA eğrisi

Gadolinium (ve iterbiyum) difüzyonu yapılacak temiz Y123 örneklerinin boşluk oranını belirlemek için sinterleme işleminden sonra her bir örneğin yoğunluğu ölçüldü. Her örneğin kütle ölçümü beş kez tekrarlanarak yapıldı ve yoğunluklar yaklaşık $\pm 0,03 \text{ g/cm}^3$ hassasiyetle hesaplandı. 900, 800, 700 ve 600 °C'de Gd difüzyonu yapılacak Y123 örneklerinin deneysel yoğunlukları sırasıyla, 5,94, 5,91; 5,97 ve 5,95 g/cm^3 olarak belirlendi. Ayrıca hazırlanan temiz Y123 örneklerinin yüzeyinden alınan x-ışınları kırınımı (XRD) desenlerinden örgü parametreleri hesaplandı. Bu değerlerden yararlanarak Y123 örneği için teorik yoğunluk $6,37 \text{ gr/cm}^3$ olarak belirlendi. Hesaplanan teorik yoğunluk,

difüzyonu yapılacak örneklerin boşluk (porozite) oranının yaklaşık % 7 olduğunu ifade etmektedir. Karşılaştırmada kolaylık açısından, difüzyon yapılmış örneklerle temiz Y123 örneklerinin yapısal ve fiziksel özellikleri ayrıntılı olarak sonraki başlıklar altında verildi.

3.2.2. Gadolinyum ve İterbiyum'un Y123 Süperiletkenine Difüzyonu

Buharlaştırma işlemi tamamlandıktan sonra bir tarafına gadolinyum (veya iterbiyum) çökertilmiş tabletler, Euroterm 818 kontrol ünitesi 120 cm uzunluğundaki Lenton marka yatay tüp fırında; 600, 700, 800, 850 ve 900 °C de 12 saat, ayrıca 800 °C'de 24 ve 48 saatlik sürelerle termal difüzyona tabi tutuldu. Gadolinyum'un Y123 örneğine difüzyonu 600 ve 700 °C'de çok az gerçekleştiğinden (EDXRF ölçüm sonuçlarından), difüzyon parametrelerinin hesaplanmasında 800, 850 ve 900 °C'de difüzyon tavlaması yapılan örnekler kullanıldı. Gadolinyumun ve iterbiyumun Y123 örneğindeki konsantrasyon dağılımı enerji ayırmalı x-ışınları flüoresans (EDXRF) yöntemiyle incelenmiş olup, Şekil 3.2 gadolinyum konsantrasyonunun (900 °C'de 12 saat) örnek yüzeyinden itibaren uzaklığın fonksiyonu olarak değişimini göstermektedir. Şekil içerisinde 1 ve 2 sembolleriyle temsil edilen eğriler, yarı-sonlu bir katı içinde sabit bir kaynaktan itibaren safsızlık (Gd) difüzyonunun hesaplanmış konsantrasyon dağılımını temsil etmektedirler.



Şekil 3.2. Gadolinyumun Y123 örneğine difüzyon sonrası yüzeyden itibaren derinliğe bağlı konsantrasyon dağılımı (900 °C'de 12 saat)

Daha önceden 1.15 alt başlığı altında verilen (1.32) bağıntısına göre, safsızlık konsantrasyonu dağılımı ile yüzey derinliği arasında,

$$N(x,t) = N_0 \operatorname{erfc} \frac{x}{2\sqrt{Dt}}$$

şeklinde bir ilişki vardır. Burada $N_0 = N(0,t)$, örnek yüzeyindeki sabit konsantrasyonu; $N(x,t)$, x derinliğindeki safsızlık konsantrasyonunu; D , difüzyon katsayısını; t difüzyon süresini erfc ise hata fonksiyonunu ifade etmektedir. Şekil 3.2'deki deneysel veriler, teorik farklı iki konsantrasyon dağılımına uyduğundan, örneğin yüzeyine yakın bölgeleri için 1 eğrisinden (0-35 μm) ve örneğin iç bölgeleri için 2 eğrisinden (35-100 μm) yararlanarak iki farklı difüzyon katsayısı hesaplandı. Bu bölgeler için difüzyon katsayıları sırasıyla, $D_1=3,8 \times 10^{-11} \text{ cm}^2/\text{s}$ ve $D_2=4,9 \times 10^{-10} \text{ cm}^2/\text{s}$ olarak hesaplandı. Bu iki farklı bölgeli konsantrasyon dağılımı karakteri 850 ve 800 $^{\circ}\text{C}$ 'deki difüzyon sıcaklıkları için de gözlenmiş olup, bu durum Y123 polikristal seramik süperiletkenlerde katkı difüzyonunun eş zamanlı olarak tane sınırlarında ve tane içinde meydana geldiğini göstermektedir (Cheng ve Zhao, 2003; Dzhafarov vd., 1996). Bu nedenle, Şekil 3.2'de görülen yüzeye yakın bölgedeki gadolinyumun yavaş difüzyonu (D_1), gadolinyumun tane içine taşınmasıyla açıklanabilir. Örneğin iç bölgelerinde Y123 süperiletkenine gadolinyumun hızlı difüzyonu (D_2) ise, safsızlık atomlarının, tane sınırlarına; ikizlenme sınırlarına; gözeneklere ve diğer kusurlara olan taşınmayla açıklanabilir.

Şekil 3.3, gadolinyumun farklı sıcaklıklarda hesaplanan Y123 örneğindeki difüzyon katsayılarının sıcaklıkla değişimini göstermektedir. Şekilden, sıcaklık düştükçe katkı konsantrasyonunun ve dolayısıyla difüzyon katsayısının azaldığı ve buna bağlı olarak difüzyon katsayısındaki hatanın arttığı görülmektedir. Difüzyon katsayısının sıcaklığa ve difüzyon aktivasyon enerjisi E_a 'ya bağlılığı denklem (2.3)'deki Arrhenius bağıntısıyla verilir. Bu denklem ve Şekil 3.3'deki doğruların eğiminden yararlanarak, gadolinyumun Y123 örneğindeki 1 ve 2 bölgeleri için difüzyon aktivasyon enerjisi E_a ve üstel fonksiyon ön çarpanı D_0 parametreleri hesaplanır. Bunun için,

$$D = D_0 \exp(-E_a/kT)$$

Arrhenius ifadesinde eşitliğin her iki tarafının doğal logaritması alınır. Böylece,

$$\ln D = \ln D_0 - E_a/kT$$

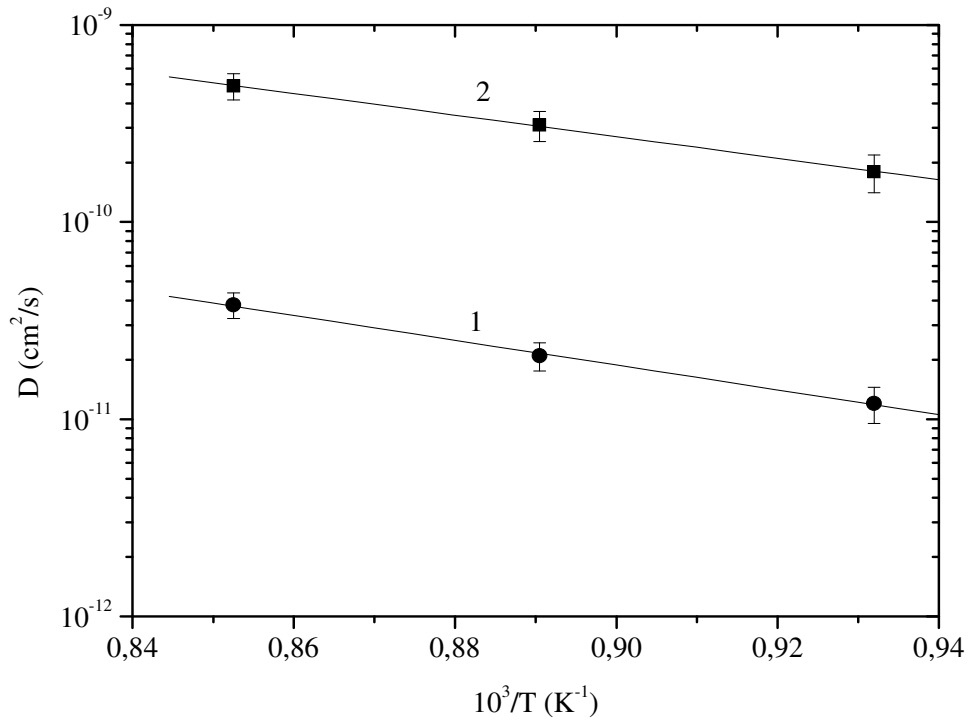
ifadesi ve Şekil 3.3'deki doğruların eğimi (formüldeki her bir parametre için birim uyumu sağlandıktan sonra) bize gadolinyumun aktivasyon enerjisini ve üstel fonksiyon ön çarpanı parametrelerinin hesaplanmasını sağlar. 800, 850 ve 900 $^{\circ}\text{C}$ 'deki sıcaklıklarda,

gadolinium'un 1 ve 2 bölgesindeki hesaplanmış difüzyon katsayıları D_1 ve D_2 'nin sıcaklık bağımlılıkları aşağıdaki (3.1) ve (3.2) bağıntılarıyla tanımlandı.

$$D_1 = 8,9 \times 10^{-6} \exp[-(1,25 \pm 0,10)/kT] \quad (3.1)$$

$$D_2 = 2,3 \times 10^{-5} \exp[-(1,09 \pm 0,10)/kT] \quad (3.2)$$

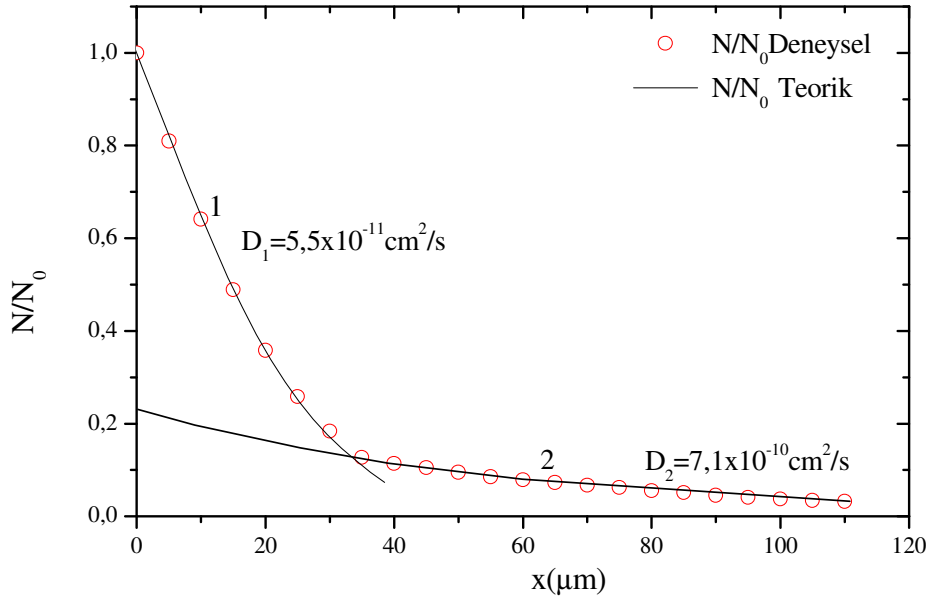
Sonuç olarak gadoliniumun Y123 süperiletken örneğinde gerçekleşen difüzyonu D_1 ve D_2 gibi farklı iki difüzyon katsayısı ile ifade edilebilir. Bu iki çeşit difüzyon sırasıyla, gadolinium atomlarının 1,25 eV'luk aktivasyon enerjisiyle tane içlerine ve 1,09 eV'luk aktivasyon enerjisiyle, tane aralarına yerleşmesiyle açıklanabilir.



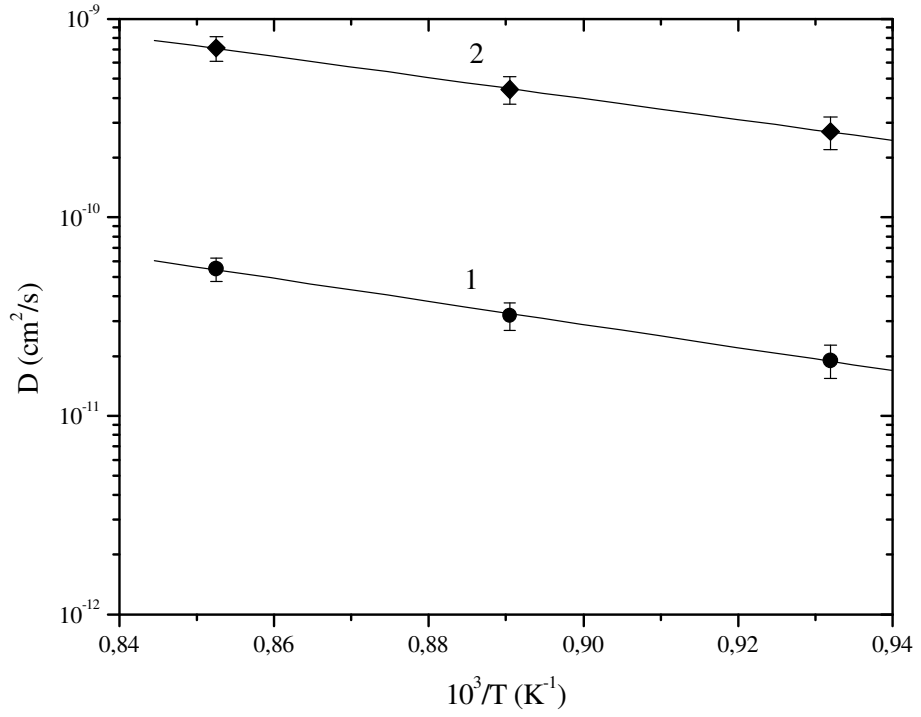
Şekil 3.3. Y123'ün yüzeye yakın bölgesinde (1) ve iç bölgesinde (2) gadoliniumun difüzyon katsayısının sıcaklıkla değişimi

Şekil 3.4, difüzyon sonrası iterbiyum konsantrasyonunun (900 °C'de 12 saat) örnek yüzeyinden itibaren uzaklığın fonksiyonu olarak değişimini, Şekil 3.5 ise Y123 örneğinin yüzeye yakın bölgesinde (1) ve iç bölgesinde (2) hesaplanmış iterbiyum difüzyon

katsayısının sıcaklıkla değişimini göstermektedir. Bu şekillerde de 1 ve 2 ile temsil edilen eğriler, yarı-sonlu bir katı içinde sabit bir kaynaktan itibaren safsızlık (Yb) difüzyonunun hesaplanmış konsantrasyon dağılımını temsil etmektedirler. Şekil 3.4’deki deneysel veriler, (gadoliniumun Y123 örneğindeki difüzyonunda olduğu gibi) teorik farklı iki konsantrasyon dağılımına uyduğundan, örneğin yüzeyine yakın bölgeleri için 1 eğrisinden (0-35 μm) ve örneğin iç bölgeleri için 2 eğrisinden (35-110 μm) yararlanarak iki farklı difüzyon katsayısı hesaplandı. Bu bölgeler için difüzyon katsayıları, gadoliniumun aynı difüzyon sıcaklığındaki değerlerinden büyük olup sırasıyla, $D_1=5,5 \times 10^{-11} \text{ cm}^2/\text{s}$ ve $D_2=7,1 \times 10^{-10} \text{ cm}^2/\text{s}$ olarak belirlendi. Tablo 3.1 farklı difüzyon tavlama sıcaklığında (12 saatlik sabit sürede) gadolinium ve iterbiyum difüzyonunun Y123 örneğindeki difüzyon parametrelerini toplu olarak göstermektedir. Şekil 3.4, 3.5 ve Tablo 3.1’ in birlikte incelenmesinden aynı sıcaklıklardaki Yb difüzyon katsayısının Gd difüzyon katsayısından büyük, aktivasyon enerjisi değerlerinin ise küçük olması aynı periyotta bulunan Yb iyonik yarıçapının (0,868 Å) Gd iyonik yarıçapından (0,938 Å) küçük olmasıyla açıklanabilir.



Şekil 3.4. İterbiyumun Y123 örneğine difüzyon sonrası yüzeyden itibaren derinliğe bağlı konsantrasyon dağılımı (900 °C’de 12 saat)



Şekil 3.5. Y123'nun yüzeye yakın bölgesinde (1) ve iç bölgesinde (2) iterbiyumun difüzyon katsayısının sıcaklıkla değişimi

Tablo 3.1. Farklı difüzyon tavlama sıcaklığında (12 saatlik sabit sürede) gadolinyum ve iterbiyum difüzyonunun Y123 örneğindeki difüzyon parametreleri

		900 °C	850 °C	800 °C	D_0 (cm ² /s)	Aktivasyon enerjisi (E_a) eV	Difüzyon katsayısı sıcaklık ifadesi
Gd	D_1 (cm ² /s)	$3,8 \times 10^{-11}$	$2,1 \times 10^{-11}$	$1,2 \times 10^{-11}$	$8,7 \times 10^{-6}$	1,25	$D_1 = 8,9 \times 10^{-6} \exp[-(1,25 \pm 0,10)/kT]$
	D_2 (cm ² /s)	$4,9 \times 10^{-10}$	$3,1 \times 10^{-10}$	$1,8 \times 10^{-10}$	$2,3 \times 10^{-5}$	1,09	$D_2 = 2,3 \times 10^{-5} \exp[-(1,09 \pm 0,10)/kT]$
Yb	D_1 (cm ² /s)	$5,5 \times 10^{-11}$	$3,2 \times 10^{-11}$	$1,9 \times 10^{-11}$	$4,8 \times 10^{-6}$	1,15	$D_1 = 4,8 \times 10^{-6} \exp[-(1,15 \pm 0,10)/kT]$
	D_2 (cm ² /s)	$7,1 \times 10^{-10}$	$4,4 \times 10^{-10}$	$2,7 \times 10^{-10}$	$2,2 \times 10^{-5}$	1,05	$D_2 = 2,2 \times 10^{-5} \exp[-(1,05 \pm 0,10)/kT]$

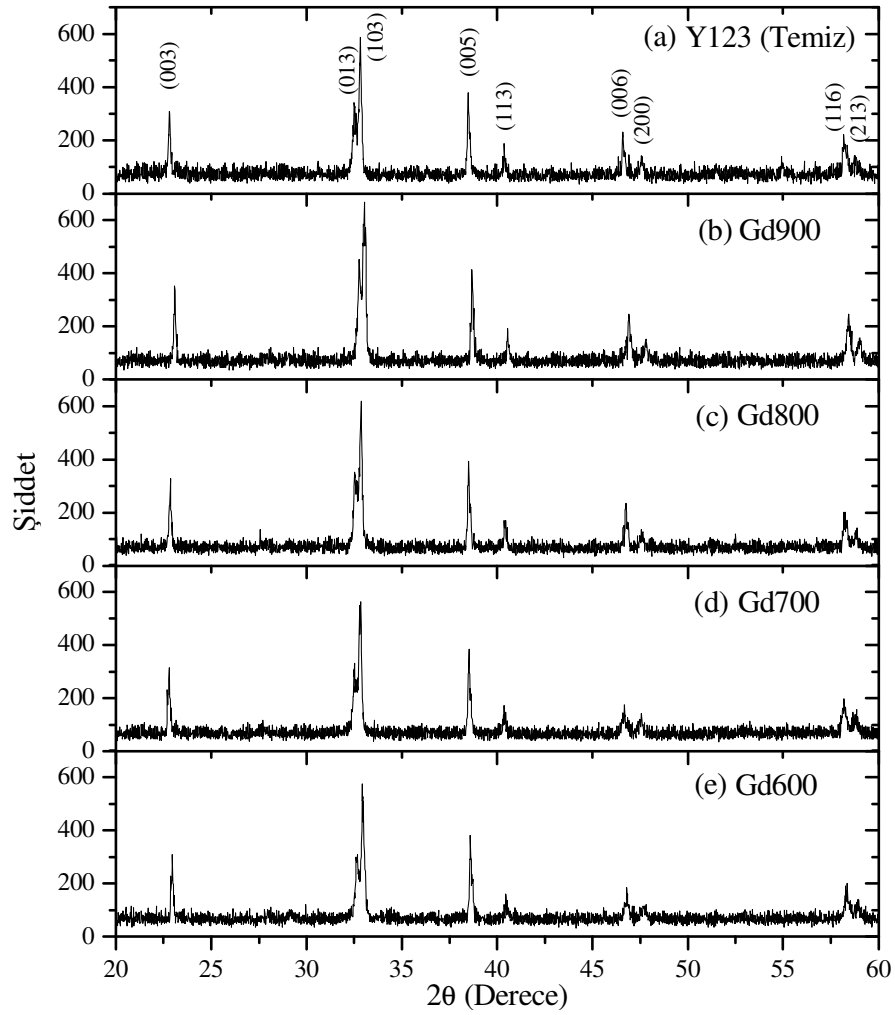
3.2.3. Gadolinyum ve İterbiyum Difüzyonunun Y123 Süperiletkeninin Yapısal Özelliklerine Etkisi

3.2.3.1. Difüzyon Katkılı Y123 Süperiletkeninin XRD Desenleri

Gd900 ve Gd800 örnek yüzeylerinden alınan XRD desenlerinde, $2\theta = 30,2^\circ$ civarında düşük şiddetli BaCuO_2 fazı görüldü. Gd700 ve Gd600 örneklerinin yüzeyinden alınmış XRD desenlerinde ise 2θ açısı $28,58^\circ$ civarında kübik yapılu Gd_2O_3 fazının görülmesi, 700 ve 600 °C'lik sıcaklıkların gadolinyumun Y123 örneğine difüzyonu için yetersiz olduğunu göstermektedir.

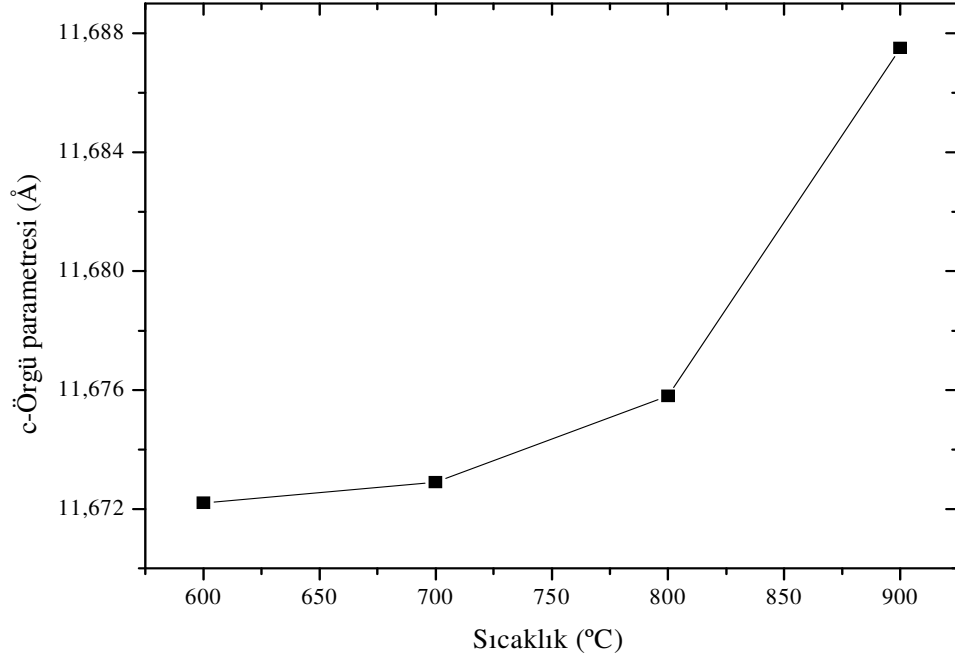
Temiz Y123 örneği ile farklı sıcaklıklarda 12 saat Gd difüzyonu yapılmış Y123 örneklerinin yüzeylerinden 30 μm film çıkarıldıktan sonra alınmış XRD desenleri Şekil 3.6'da verildi. Farklı difüzyon sıcaklıklarındaki örneklerin XRD desenlerinin incelenmesinde ortorombik Y123 yapısına ait (003), (013), (103), (005), (113), (006), (200), (116) ve (213) karakteristik pikleri görüldü. Şekilden ayrıca, yaklaşık 30 μm derinlikteki yüzeyde Gd içeren ikincil bir faz görülmezken, 900 ve 800 °C'de gadolinyum difüzyonu yapılmış örneklerin XRD desenlerindeki pik (tepe) şiddetlerinde, temiz Y123 örneğine göre belli bir artış belirlendi. Bu artışın sebebinin Gd-katkılı bulk ve ince film süperiletkenlerinde olduğu gibi, Gd difüzyonunun tane büyümesini ve yönelimini attırması şeklinde düşünülebilir (Feng vd., 1998; Miyachi vd., 2003; Biju vd., 2005).

Farklı sıcaklıklarda Gd difüzyonu yapılmış Y123 örneklerinin kırınım desenlerinden yararlanarak ilgili örneklerin düzlem indisleri belirlendi. İndisler ve düzlemler arası mesafe kullanılarak örgü parametreleri a, b ve c hesaplandı. Hesaplama en küçük kareler metodu kullanılarak yazılan bilgisayar programından yararlandı ve hesaplama sonucu elde edilen veriler Şekil 3.7 ve 3.8'de (ölçümler yüzeyden 20 μm film çıkarıldıktan sonra alınmıştır) verildi. Temiz Y123 örneğinin yüzeyinin 20 μm derinliğinden alınmış a, b ve c örgü parametreleri sırasıyla 3,8195 Å; 3,8945 Å ve 11,6605 Å olarak bulundu. Değişik sıcaklıklarda difüzyon yapılan örneklerin a ve b örgü parametreleri, difüzyon yapılmamış yüzeyin a ve b örgü parametresine göre çok az değiştiğinden, şekillerde yalnızca ilgili örneklerin c örgü parametrelerindeki değişimler verildi.

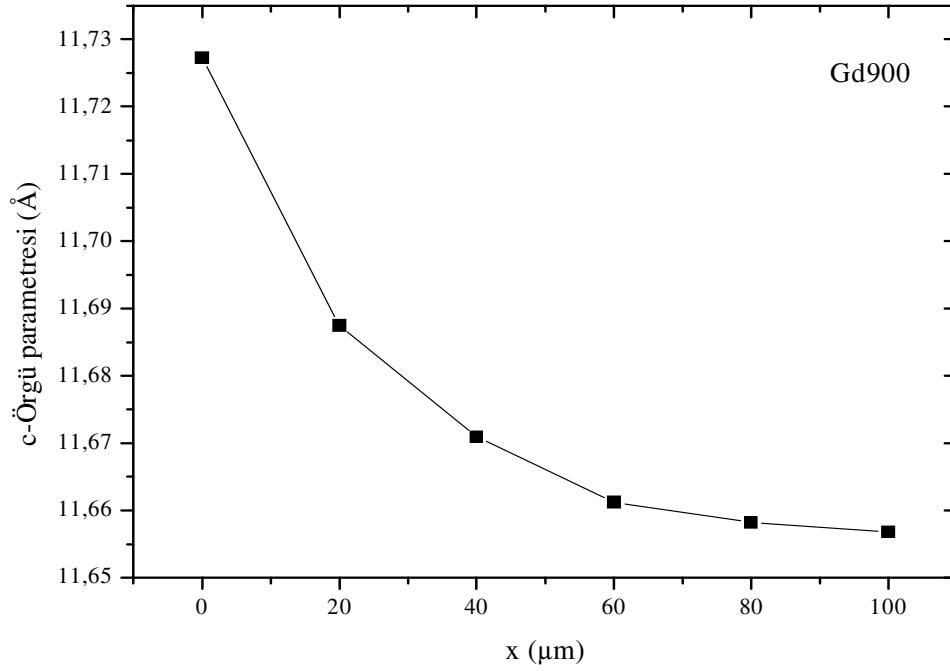


Şekil 3.6. Temiz Y123 örneği ile farklı sıcaklıklarda 12 saat gadolinyum difüzyonu yapılmış Y123 örneklerinin, yüzeylerinden 30 μm film çıkarıldıktan sonra alınmış XRD desenleri

Şekil 3.7’de artan difüzyon sıcaklığına paralel olarak örneklerin c-örgü sabitlerinde artma görülmektedir. Gd900 örneğinin difüzyon yapılmış yüzeyinin 20 μm derinliğinden hesaplanmış c-örgü sabitinin, temiz Y123 örneğine göre yaklaşık % 0,23 daha büyük olması ve şekil 3.8’de Gd900 örneğinin yüzey derinliği arttıkça c-örgü sabitinin azalması, Gd difüzyonunun eş zamanlı olarak tane içi ve taneler arası difüzyon şeklinde gerçekleştiğini göstermektedir.



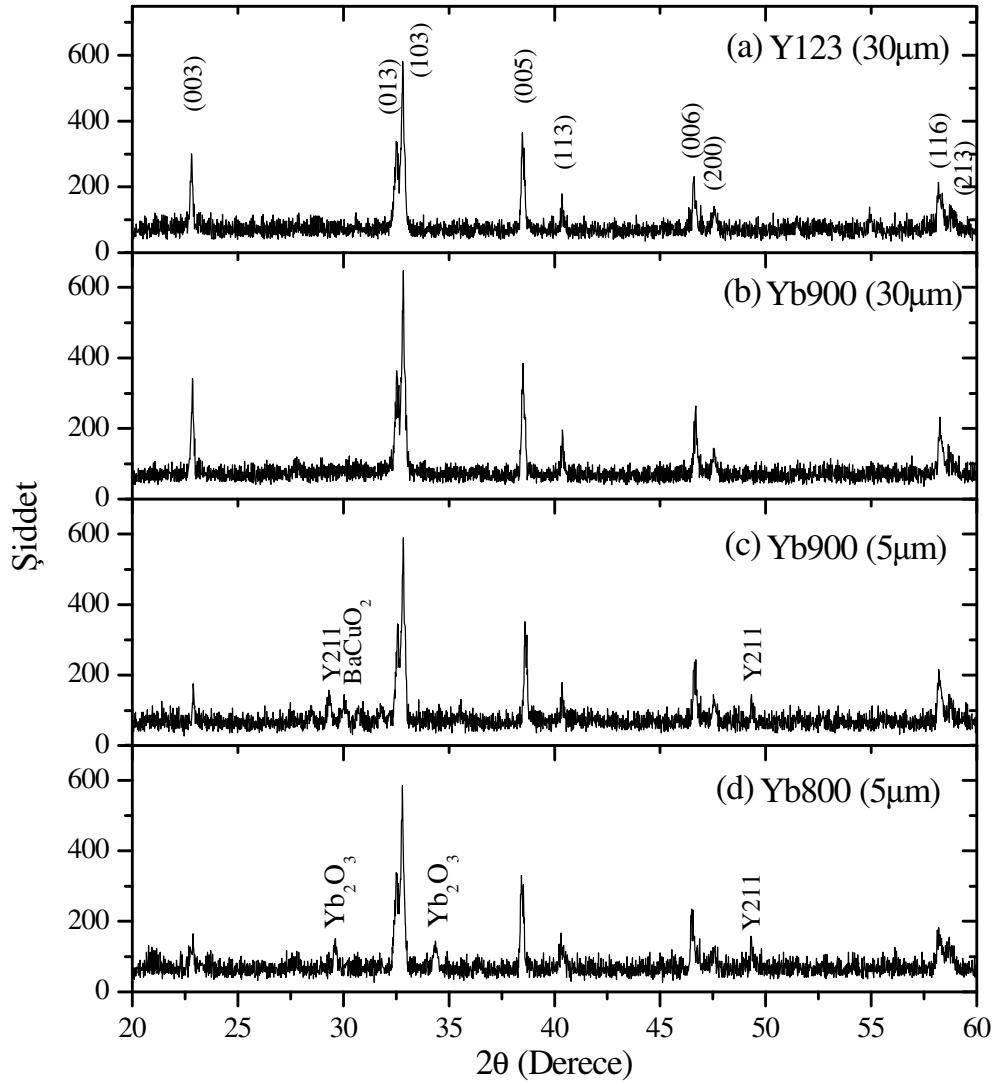
Şekil 3.7. 600-900 °C sıcaklık aralığında 12 saat Gd difüzyonu yapılmış örneklerin c-örgü sabitlerinin difüzyon sıcaklığıyla değişimi (20 μm)



Şekil 3.8. Gd900 örneğinin x yüzey derinliği ile c-örgü sabiti arasındaki değişim

Ayrıca, Gd iyonik yarıçapının Y'un iyonik yarıçapından büyük olması (sırasıyla 0,938 ve 0,900 Å) ve katıhal tepkime yöntemiyle hazırlanmış $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ (Gd123) örneği c-örgü sabiti değerinin 11,72Å olması gibi bilgiler, bize Gd^{3+} iyonunun Y123 örgüsüne girdiğini ima etmektedir (Islam ve Baetzold, 1989; Taka vd., 2002).

Şekil 3.9 yüzeyinden 30 µm film çıkarılmış temiz Y123 örneği (a) ile 900 °C ((b) ve (c)) ve 800 °C (d) sıcaklıklarında 12 saat iterbiyum difüzyonu yapılmış Y123 örneklerinin, yüzeylerinden 30 µm ve 5 µm film çıkarıldıktan sonra alınmış XRD desenlerini göstermektedir. Şekil 3.9 (d)'de, 800 °C sıcaklığında iterbiyum difüzyonu yapılan Y123 örneğinin yüzeyinden alınan (5 µm derinlikten) XRD kırınımı deseninde 2θ açısı 29,50° ve 34,19° civarında kübik Yb_2O_3 ; 49,33°de ise ortorombik Y211 fazı saptanmıştır. Şekil 3.9. (c)'de ise difüzyon sıcaklığının artışıyla (900 °C) Yb_2O_3 fazının kaybolduğu, 2θ açısı 30,15° de kübik BaCuO_2 ; 29,318° ve 49,334° de ise Y211 fazları belirlenmiştir. Yb900 örneğinin iç bölgelerinde (30 µm) ise Y123 örneğine ait yabancı fazlar kaybolmuş olup, Yb900 örneğinin pik şiddetlerinde temiz Y123 örneğine göre belli bir artış görülmüştür (Şekil 3.9 (a) ve (b)). Katıhal tepkime yöntemiyle hazırlanmış temiz Y123 örneğinin a, b ve c örgü sabitleri ile Yb123 ($\text{YbBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$) örneğinin örgü sabitleri ($a = 3,81152\text{Å}$, $b = 3,8891\text{Å}$ ve $c = 11,6614\text{Å}$) birbirine çok yakın olduğundan, 900 ve 800 °C'de Yb difüzyonu yapılan Y123 örneklerinin örgü sabitlerinde belirgin bir farklılık saptanmamıştır (Kita ve Yokoyama, 2003; Kawakami vd., 2003).



Şekil 3.9. Yüzeyinden 30 µm film çıkarılmış temiz Y123 örneği (a) ile 900 °C ((b) ve (c)) ve 800 °C (d) sıcaklıklarında 12 saat iterbiyum difüzyonu yapılmış Y123 örneklerinin, yüzeylerinden 30 µm ve 5 µm film çıkarıldıktan sonra alınmış XRD desenleri

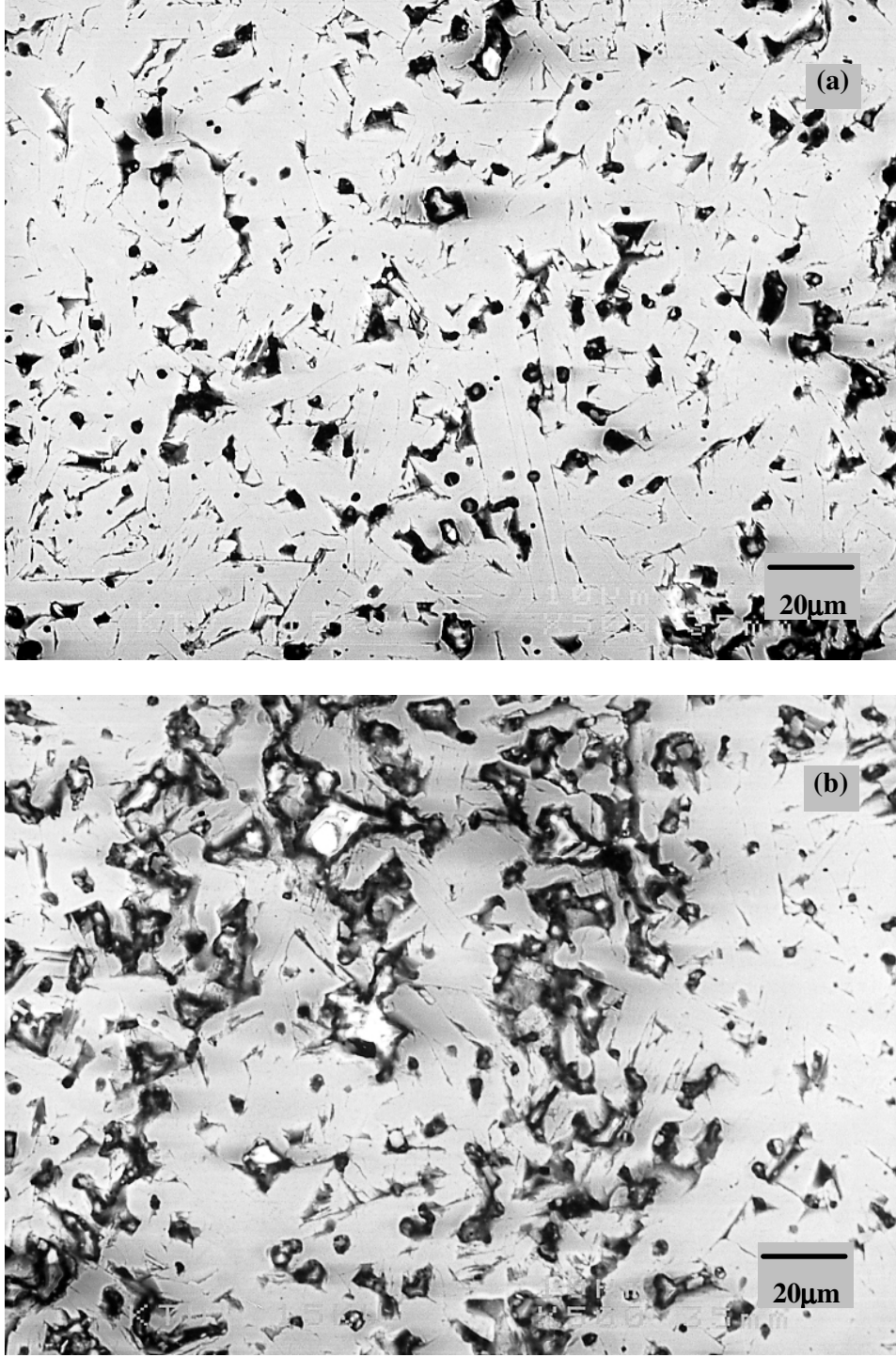
3.2.3.2. Difüzyon Katkılı Y123 Süperiletkeninin Metalografik Analizi

Gadolinium ve iterbiyum difüzyon katkılı Y123 örneğinin yüzey morfolojisi, tane büyüklüğü, boşluk oranı ve difüzyon katkı atomlarının mümkün çökeltme karakterini belirlemek için taramalı elektron mikroskobu (SEM) ve optik mikroskop kullanıldı.

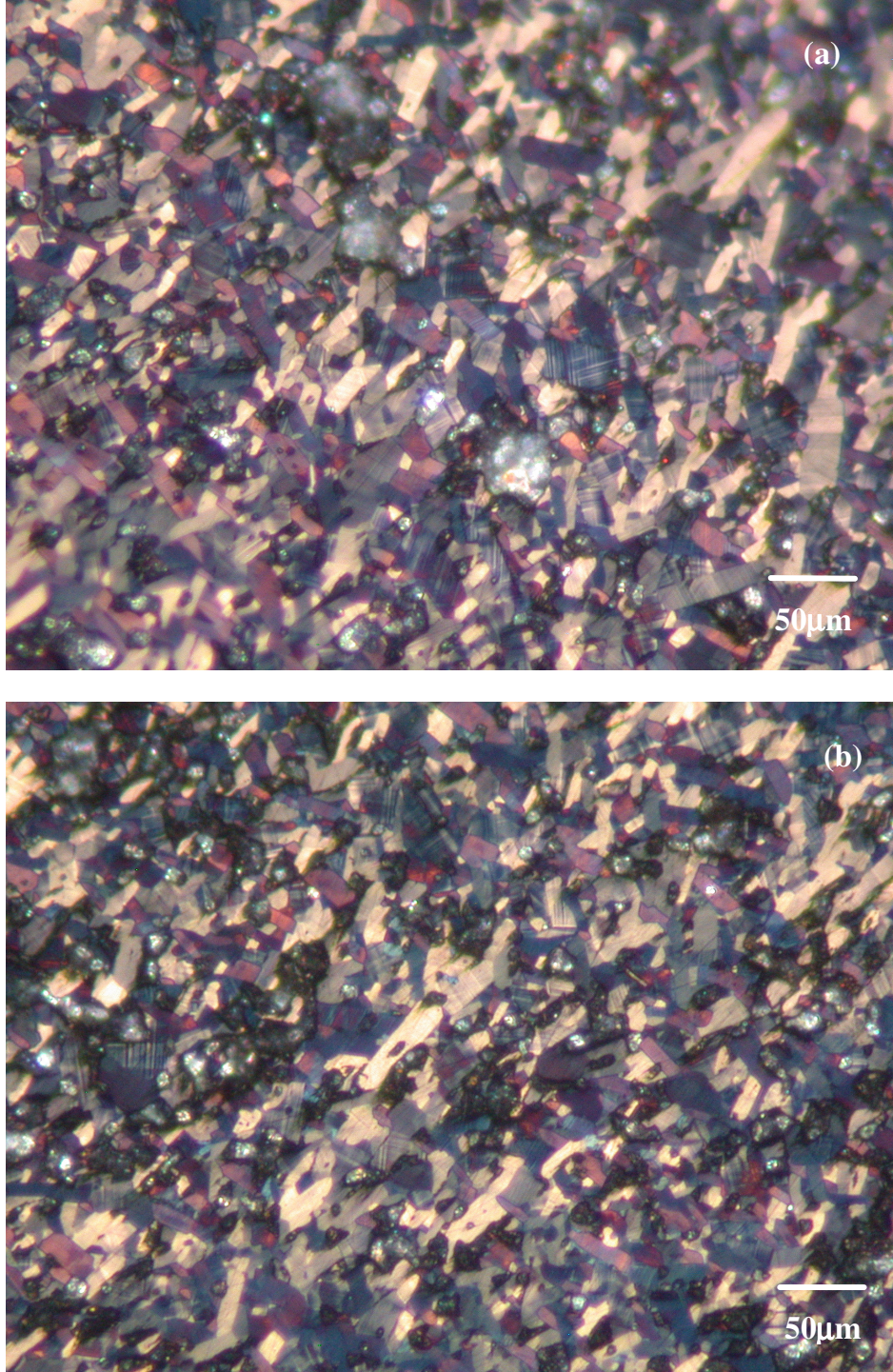
Şekil 3.10, 900 °C’de 12 saat gadolinium difüzyonu yapılmış Gd900 örneğinin (a) gadolinium katkılanmış ve (b) katkılanmamış yüzeyinin 20 µm derinliğinden çekilmiş

SEM fotoğraflarını; Şekil 3.11 ise aynı numunenin (a) katkılanmış ve (b) katkılanmamış yüzeyinin 20 µm derinliğinden çekilmiş optik mikroskop fotoğraflarını göstermektedir. Örneklerin taneli doğası ve boşluk oranı özellikle Şekil 3.10 (a) de ve (b)'de açıkça görülmektedir. Şekil 3.10 (b)'de difüzyon yapılmamış Y123 yüzeyi tane boyutu 10 µm den 30 µm ye kadar değişen üniform (tekdüze) olmayan ve nispi olarak büyük miktarda porozite (boşluk) içeren bir yapı sergiler. Şekil 3.10 (a) da gadolinyum difüzyonu yapılmış yüzey ise yaklaşık 30-40 µm'lik tane boyutu ile daha yoğun, üniform ve nispi olarak küçük sayıda (ve hacimde) porozite içeren bir yapı sergiler. Şekil 3.11 (a) ve (b) deki optik fotoğrafların karşılaştırmasından, 900 °C deki Gd difüzyonunun Y123 örneğinin tane boyutunu, taneler arası teması ve tanelerin kristalleşme oranını artırdığı görülmektedir. Şekil 3.10 (a) da gadolinyum difüzyonuyla boşluk yoğunluğunun azalması, kritik akım yoğunluğunun artmasında etkili olan ve potansiyel sabitleştirme (pinning) merkezleri olarak görev yapan normal bölge sayısının artabileceğine bir işarettir.

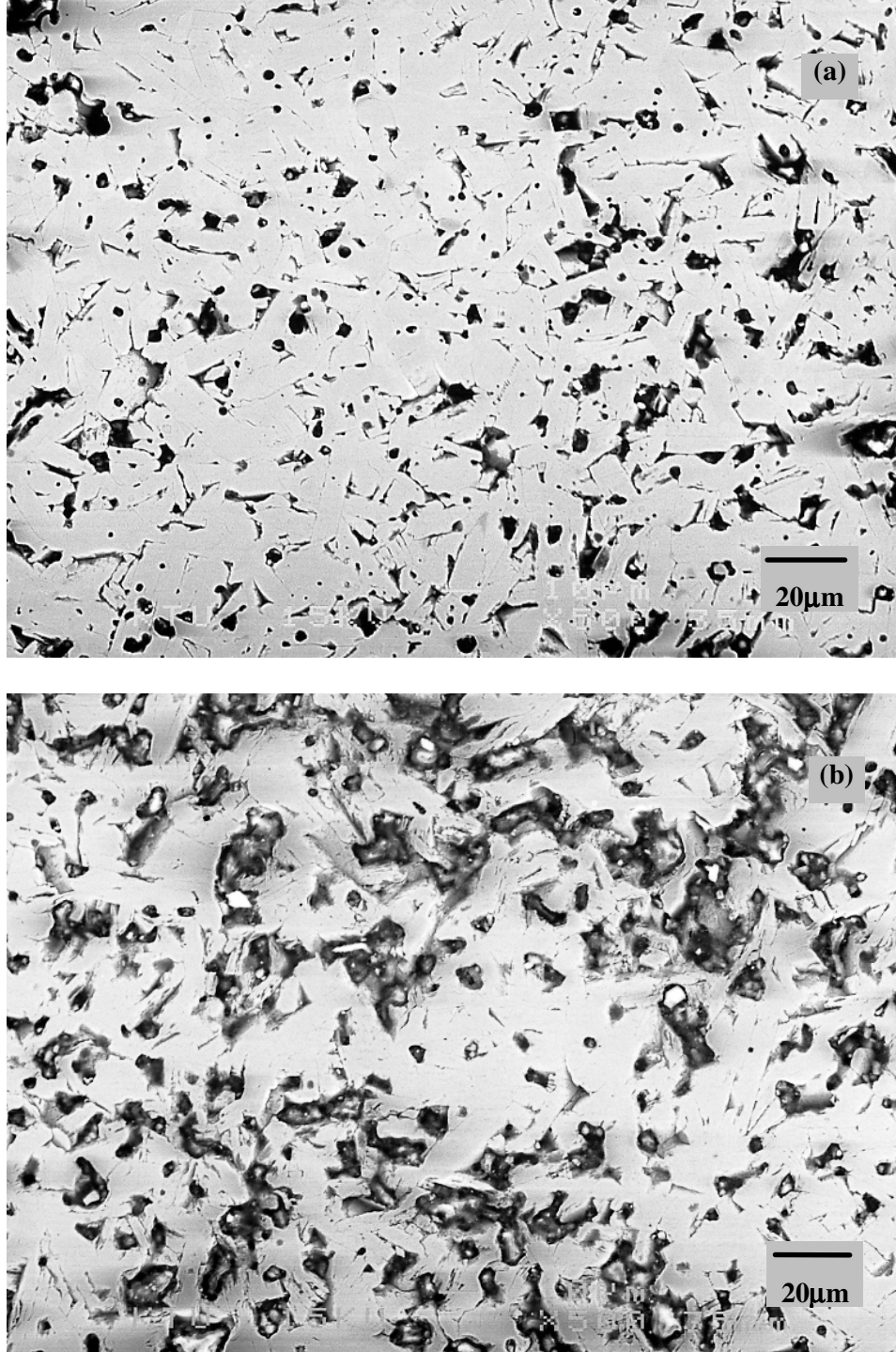
Şekil 3.12, 900 °C'de 12 saat iterbiyum difüzyonu yapılmış Yb900 örneğinin (a) iterbiyum katkılanmış ve (b) katkılanmamış yüzeyinin 20 µm derinliğinden çekilmiş SEM fotoğraflarını; Şekil 3.13 ise aynı numunenin (a) katkılanmış ve (b) katkılanmamış yüzeyinin 20 µm derinliğinden çekilmiş optik mikroskop fotoğraflarını göstermektedir. Şimdiye kadar yapılan bir çok çalışma, RE123 (RE = Nd, Sm, Eu, Gd, Yb) ailesi içerisindeki Yb123'ün en düşük ayrışma sıcaklığına sahip olmasının, bu yapının birleştirme (kaynak) malzemesi olarak kullanılabileceğini ve düşük altlık sıcaklığında üretilebileceğini gösterir (Soh ve Fan, 2000; Yamaguchi vd., 2003). Şekil 3.12 ve 3.13 (a)' da iterbiyumun 900°C'deki difüzyonunun, Y123 örneğinin boşluk oranını azalttığı ve tane büyüklüğünde ise homojen bir dağılımı (Gd900 örneğinden daha çok) teşvik ettiği görülmektedir.



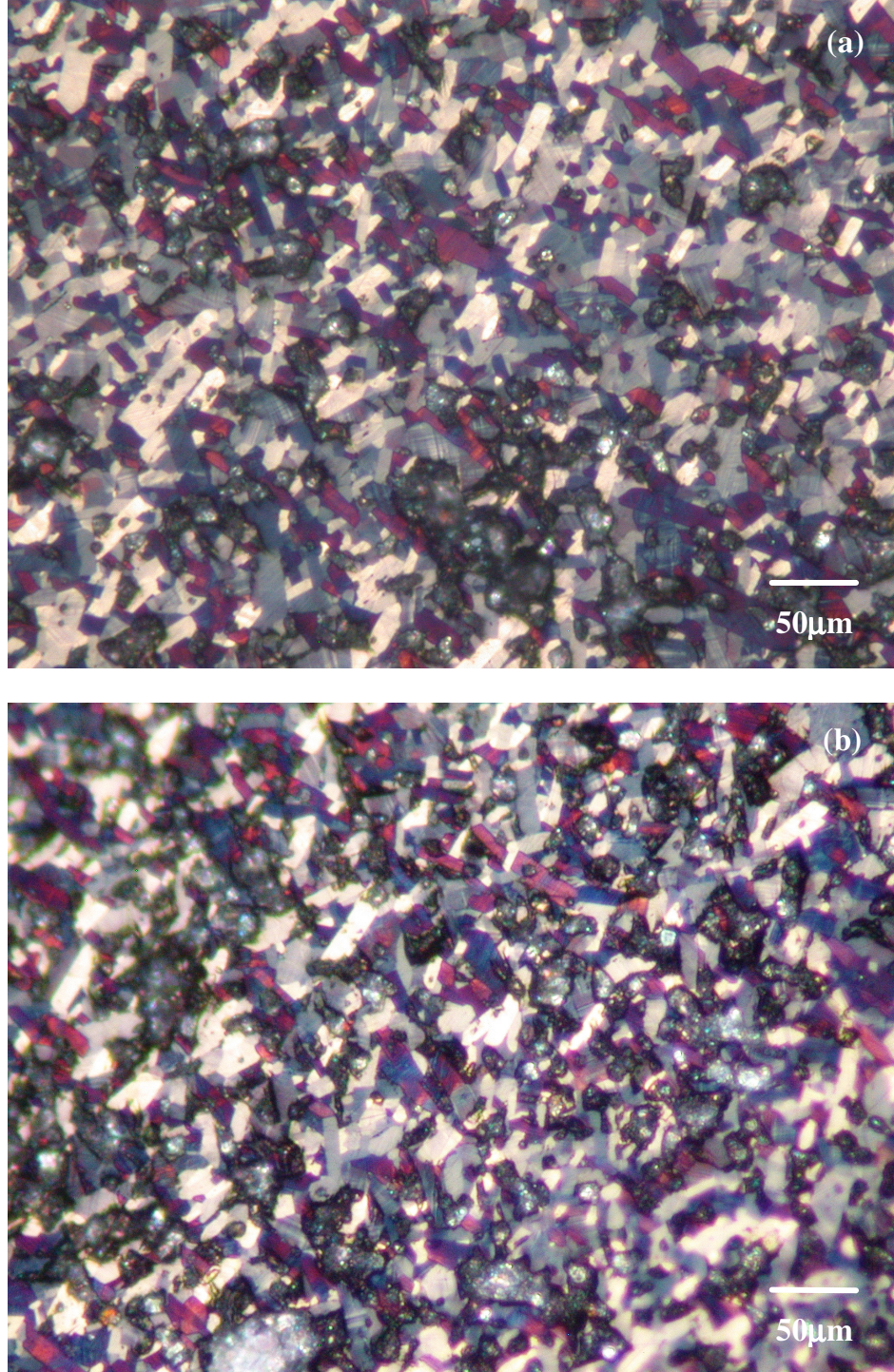
Şekil 3.10. 900 °C’de 12 saat difüzyon yapılmış Gd900 örneğinin (a) gadolinyum katkılanmış ve (b) katkılanmamış yüzeyinin 20 μm derinliğinden çekilmiş SEM fotoğrafları



Şekil 3.11. 900 °C’de 12 saat difüzyon yapılmış Gd900 örneğinin (a) gadolinyum katkılanmış ve (b) katkılanmamış yüzeyinin 20 μm derinliğinden çekilmiş optik mikroskop fotoğrafları



Şekil 3.12. 900°C’de 12 saat difüzyon yapılmış Yb900 örneğinin (a) itterbium katkılanmış ve (b) katkılanmamış yüzeyinin 20 µm derinliğinden çekilmiş SEM fotoğrafları



Şekil 3.13. 900 °C’de 12 saat difüzyon yapılmış Yb900 örneğinin (a) iterbiyum katkılanmış ve (b) katkılanmamış yüzeyinin 20 μm derinliğinden çekilmiş optik mikroskop fotoğrafları

3.2.4. Gadolinyum ve İterbiyum Difüzyonunun Y123 Süperiletkeninin Direnç ve Kritik Geçiş Sıcaklık Özelliklerine Etkisi

Örneklerin direnç ölçümü, 0; 0,5; 1,0; 1,5 ve 2 T gibi farklı manyetik alanlarda "Quantum Design Model 6000" fiziksel ölçüm sistemi kullanılarak yapıldı. Her ölçüm öncesi örnekler, manyetik alan yokken soğutuldu (zero-field-cooled (ZFC)) ve ölçümler sistemin sıcaklığı ilgili değerde ısı dengeye ulaştıktan sonra ısıtma esnasında alındı.

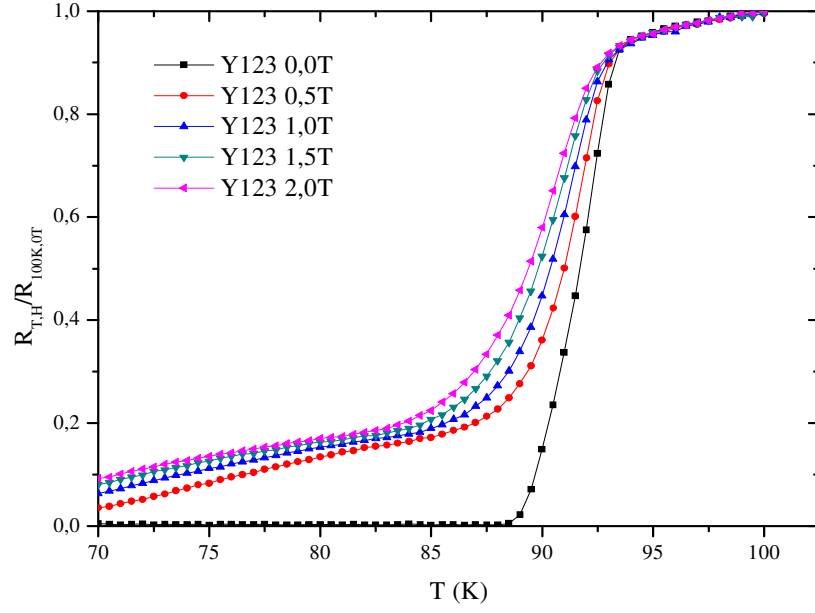
Şekil 3.14-3.17 sırasıyla Y123 ve Gd900, Gd800, Gd600 örneklerinin $H=0.0 - 2,0$ T (0,5 T aralıklarla) manyetik alan altındaki dirençlerinin sıcaklığa göre değişimlerini göstermektedir. Bu bölüm altındaki grafiklerdeki tüm direnç değerleri 100 K sıcaklık ve 0 T manyetik alandaki direnç değeriyle normalize edildi. Şekil 3.21-3.23 ise sırasıyla Yb900, Yb800, Yb600 örneklerinin $H=0.0 - 2,0$ T (0,5T aralıklarla) manyetik alan altındaki dirençlerinin sıcaklığa göre değişimlerini göstermektedir. Şekillerde görüldüğü gibi artan manyetik alanla, her örneğin normal halden süperiletkenliğe geçişteki ΔT_c ($\Delta T_c = T_{c \text{ başlangıç}} - T_{c \text{ sıfır}}$) sıcaklık aralığı genişlemektedir. Uygulanan dış manyetik alan yokken geçiş sıcaklık aralığı yaklaşık 2K iken 0.5T alan uygulandığında ise ani artış sergilemektedir. R-T grafiklerinde belirli bir manyetik alan değerine kadar, külçe yapıdaki örneğin taneler arasına manyetik alan girmekte olup, bu değerın üstündeki manyetik alanlarda ise artık tane içine girmeye başlamıştır. Bu durumda normal halden süperiletken hale geçişin bir göstergesi olan direncin sıcaklığa göre değişimi farklılaşmaktadır ve manyetik alan yokken direncin hemen hemen sıfır olduğu bazı sıcaklık aralığında belirli bir direnç göstermektedir. Bu duruma polikristal örneklerde manyetik alanın tane içine kısmi olarak girmesinin neden olduğu düşünülmektedir ve bu çalışmadaki örneklerde de benzer özellikler görülmüştür.

Şekil 3.18 (a) Temiz Y123 ve Gd900, Gd800, Gd600 örneklerinin alansız halde direnç değerlerinin sıcaklığa göre ve (b) $T_{c \text{ sıfır}}$ ve ilgili ΔT_c değerlerinin difüzyon tavlama sıcaklığına göre değişimlerini göstermektedir. Şekilde Y123 örneğinin difüzyon yapılmış örneklere göre daha geniş geçiş göstermesi, Y123 örneğinin süperiletken taneleri arasında kirlilik fazının ve zayıf bağlantının (weak-link) olduğunu gösterir. Şekilde, difüzyon tavlama sıcaklığının artışıyla daha keskin geçişin olduğu ve en keskin geçişin, en yüksek tavlama sıcaklığına sahip Gd900 örneğinde olduğu görülmektedir. Bu gelişmeye yüksek sıcaklıktaki Gd difüzyonuyla Y123 örneği içerisindeki porozitenin ve kirlilik fazının azalmasının sebep olduğu düşünülmektedir. Şekil 3.18 (a) ve (b) de tüm örneklerin $T_{c \text{ başlangıç}}$ değerlerinde büyük farklılık olmamasına rağmen difüzyon sıcaklığının artışıyla ΔT_c deki keskin azalmaya eşlik

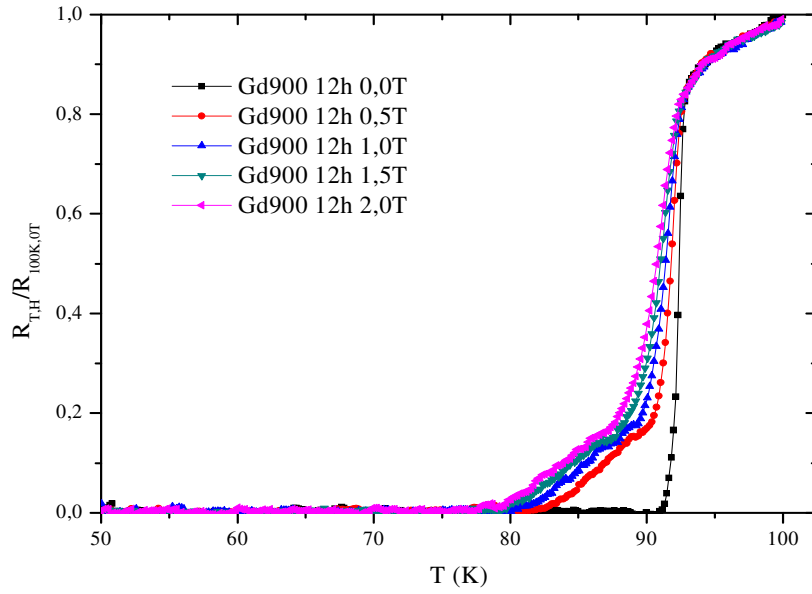
eden $T_{c \text{ sıfır}}$ değerindeki artışa (Y123 ve Gd900 örnekleri için $T_{c \text{ sıfır}}$ değerleri sırasıyla 88 ve 91K dir), Y123 örneğinin CuO_2 düzlemlerindeki hole yoğunluğu homojenliğinin gelişmesi neden olabilir (Islam ve Baetzold, 1989; Taka vd., 2002). Şekil 3.24 temiz Y123 ve Yb900, Yb800, Yb600 örneklerinin alansız halde direnç değerlerinin sıcaklığa göre değişimlerini göstermektedir. Şekilde 600 °C de Yb difüzyonu yapılan Y123 örneğinin küçük değerde geçiş sıcaklığı göstermesi, düşük difüzyon sıcaklığında Yb_2O_3 gibi süperiletken olmayan fazların varlığına bağlanabilir.

Ayrıca 800°C'de 12, 24 ve 48 saat Gd difüzyonu yapılmış Y123 örnekleri direnç değerlerinin sıcaklığa göre değişimleri Şekil 3.20'de verilmiştir. Şekilde, difüzyon süresi 24 ve 48 saat olan örneklerin kritik geçiş sıcaklığı genişliğinin, 12 saat'lık örneğe göre daha keskin olduğu görülmektedir. Buradan uzun difüzyon sürelerinde süperiletken yapının iyileştiği sonucuna varıldı. Böylece en uygun difüzyon sıcaklığının, temiz Y123 örneğinin sinterleme sıcaklığına (800 °C üzeri) yakın olabileceği düşünülmektedir.

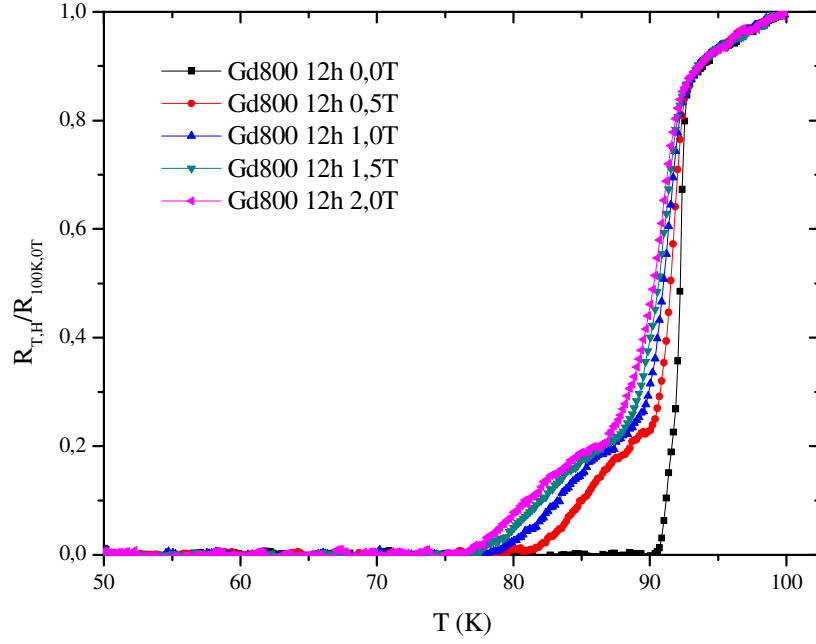
Temiz Y123 ve Gd900, Gd800, Gd600 ve Yb900, Yb800, Yb600 örneklerinin 0,5T manyetik alan altında direnç değerlerinin sıcaklığa göre değişimleri sırasıyla Şekil 3.19 ve Şekil 3.25'de verilmektedir. Şekillerde 900 °C ve 800 °C'de Gd ve Yb difüzyonu yapılan örneklerin 0,5T manyetik alan altında süperiletkenliğe geçiş sıcaklığı değerlerinin diğerlerine göre daha büyük olduğu görülmektedir. Bu durum 900 °C ve 800 °C' deki yüksek difüzyon sıcaklığındaki örneklerde, birim hacme düşen akı çivileme bölgelerinin (normal bölgeler) fazla olması ve böylece uygulanan alanın oluşturacağı Lorentz kuvvetinin (F_L) akı çivileme kuvvetinden (F_P) büyük olmaması şeklinde açıklanabilir. $F_L > F_P$ olması durumunda ise akı çizgileri hareket edecek ve böylece elektriksel direnç oluşacaktır (Xu, Y vd., 1990). Bu durumda direncin sıfır olması ($F_L = F_P$) daha düşük bir süperiletkenliğe geçiş sıcaklığında gerçekleşecektir. Şekil 3.19 ve Şekil 3.25'deki tüm örneklerde manyetik alanın artışıyla direnç eğrilerinin sola kayması (kuyruk etkisi), bu örneklerin taneli yapıya sahip olduğunu ve taneleri arasında zayıf bağlantının varlığını gösterir. Manyetik alan altında ısıtılan örneğe uygulanan dış manyetik alan, örneğe öncelikle zayıf bağlantı içeren tane sınırlarından nüfuz eder. Bu özellikteki tane sınırlarında süperiletkenlik bozulacak ve bu durum sıfır direnç geçiş sıcaklığının azalmasına sebep olacaktır. Şekil 3.19 da 0,5 T manyetik alan altındaki Gd900 ve Gd800 örneklerinin sıfır direnç geçiş sıcaklıklarının 82 K; Gd600 ve Y123 örneklerinin ise 62 K civarında olması Gd900 ve Gd800 örneklerinin dış manyetik alana karşı daha dayanıklı olduğunu gösterir.



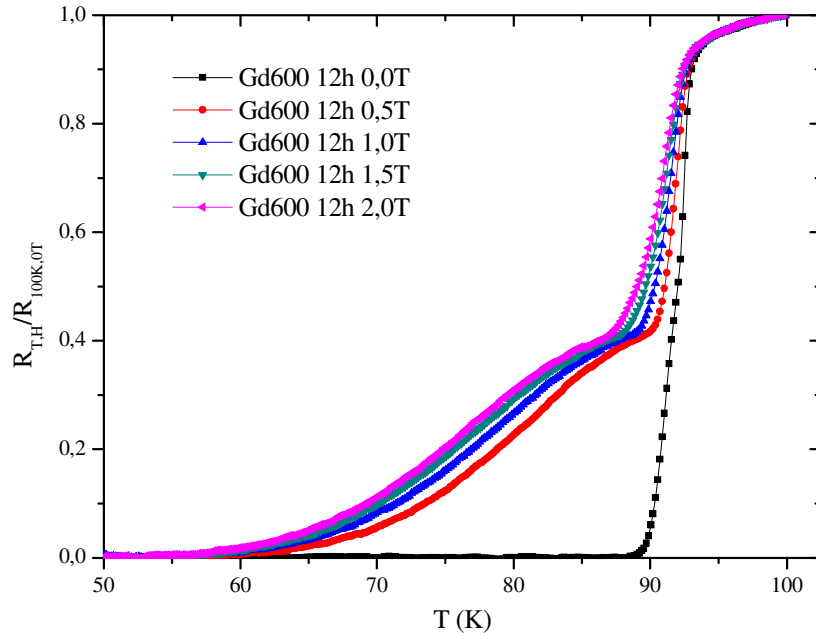
Şekil 3.14. Temiz Y123 örneğinin $H=0.0 - 2.0$ T (0,5 T aralıklarla) manyetik alan altındaki direncinin sıcaklığa göre değişimi



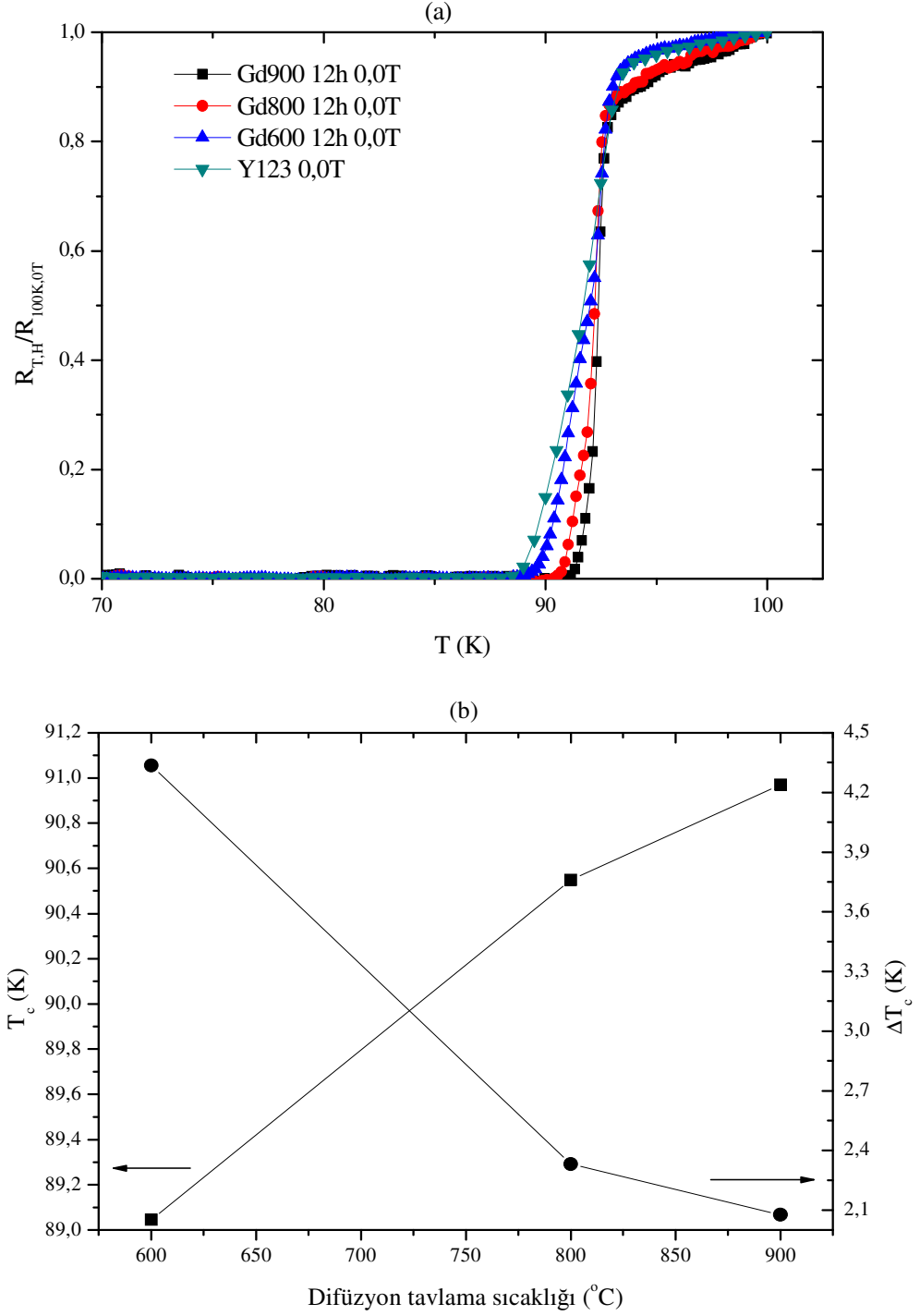
Şekil 3.15. Gd900 örneğinin (900 °C'de 12h Gd difüzyonu) $H=0.0 - 2.0$ T manyetik alan altındaki direncinin sıcaklığa göre değişimi



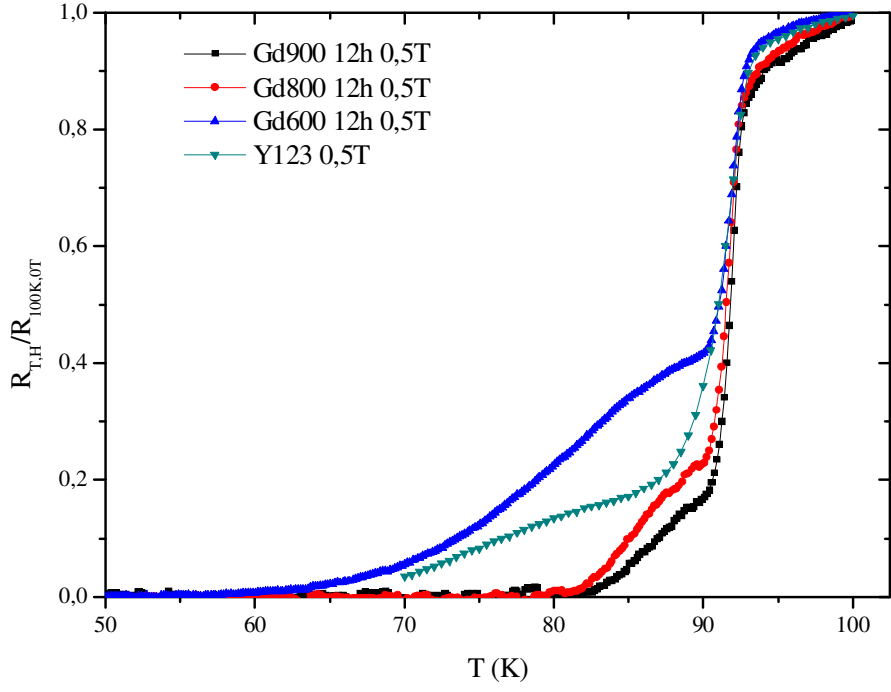
Şekil 3.16. Gd800 örneğinin (800 °C’de 12h Gd difüzyonu) $H=0.0 - 2,0$ T manyetik alan altındaki direncinin sıcaklığa göre değişimi



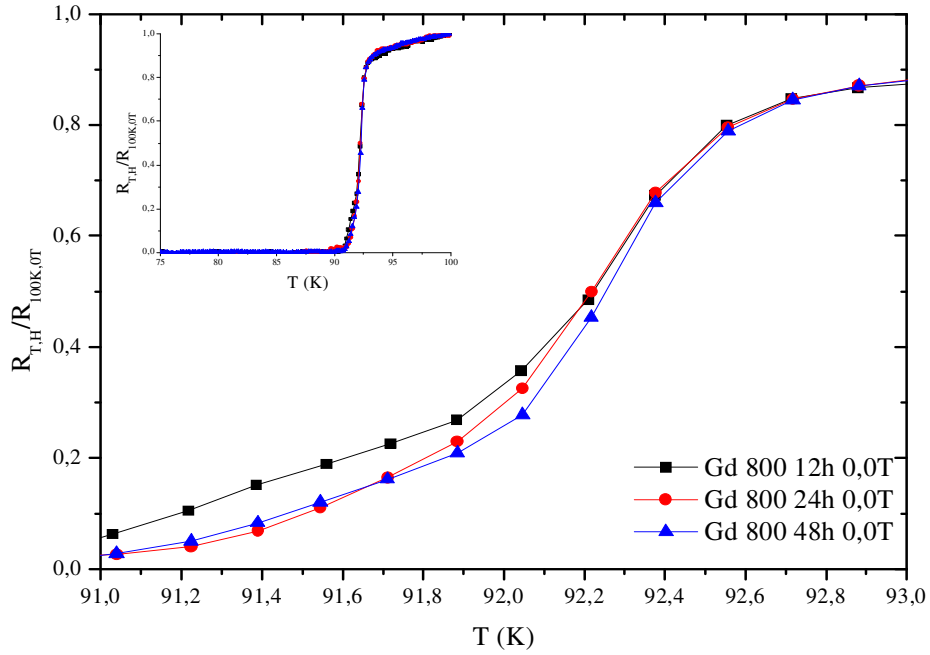
Şekil 3.17. Gd600 örneğinin (600 °C’de 12h Gd difüzyonu) $H=0.0 - 2,0$ T manyetik alan altındaki direncinin sıcaklığa göre değişimi



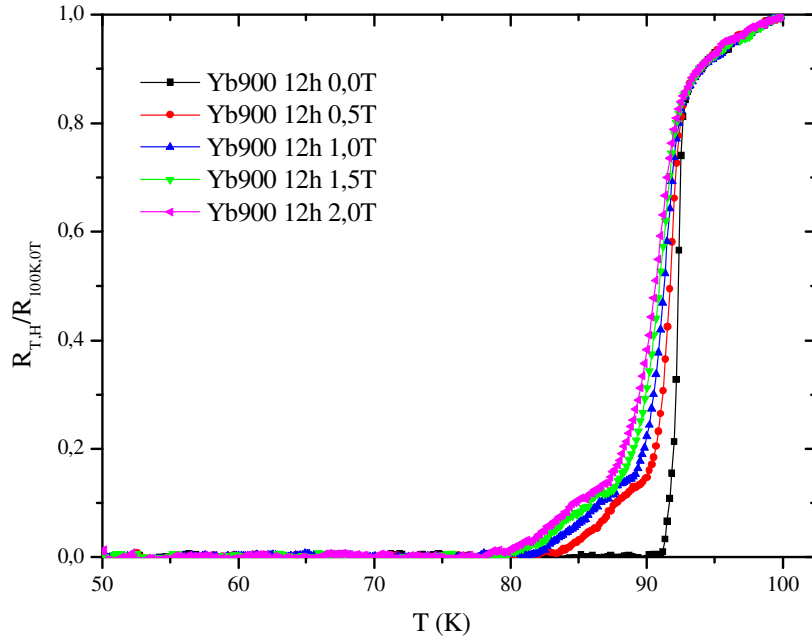
Şekil 3.18. (a) Temiz Y123 ve Gd900, Gd800, Gd600 örneklerinin alansız halde direnç değerlerinin sıcaklığa göre değişimleri, (b) T_c sıfır ve ilgili ΔT_c değerlerinin difüzyon tavlama sıcaklığına göre değişimi



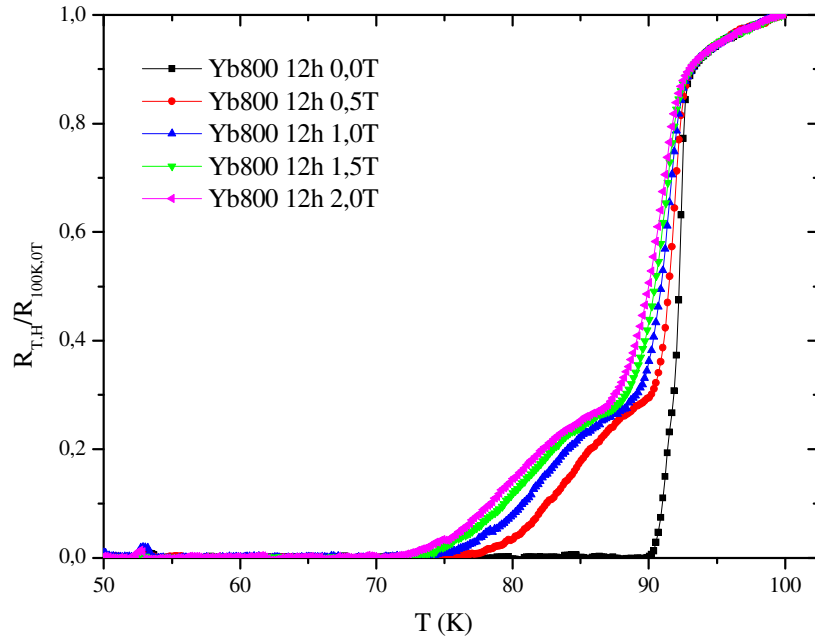
Şekil 3.19. Temiz Y123 ve Gd900, Gd800, Gd600 örneklerinin 0,5 T manyetik alan altında direnç değerlerinin sıcaklığa göre değişimleri



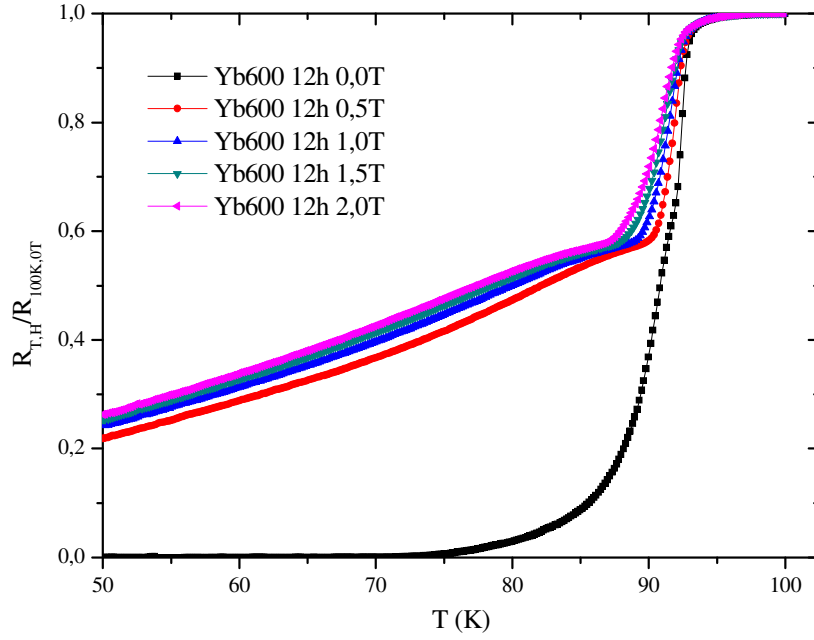
Şekil 3.20. 800 °C'de 12, 24 ve 48 saat Gd difüzyonu yapılmış Y123 örnekleri direnç değerlerinin sıcaklığa göre değişimleri



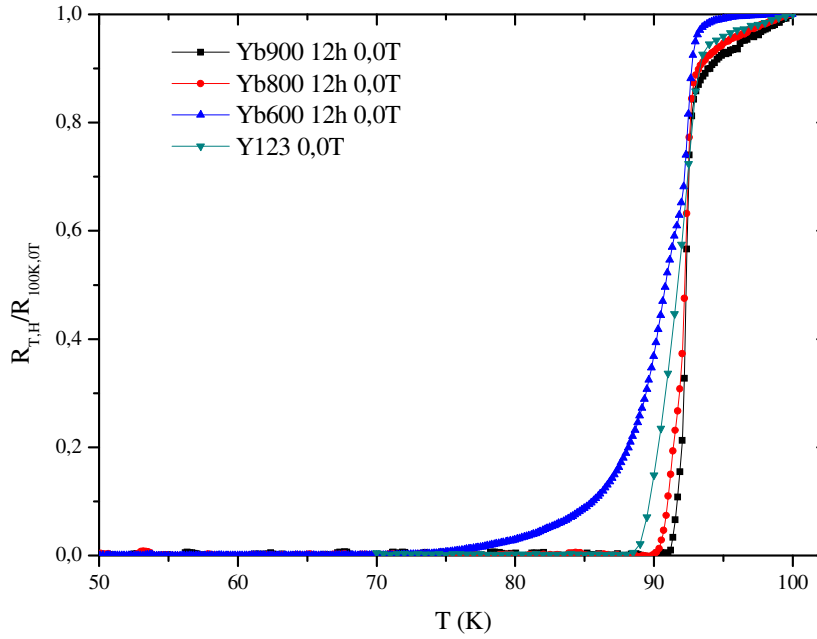
Şekil 3.21. Yb900 örneğinin $H=0.0 - 2,0$ T manyetik alan altındaki direncinin sıcaklığa göre değişimi



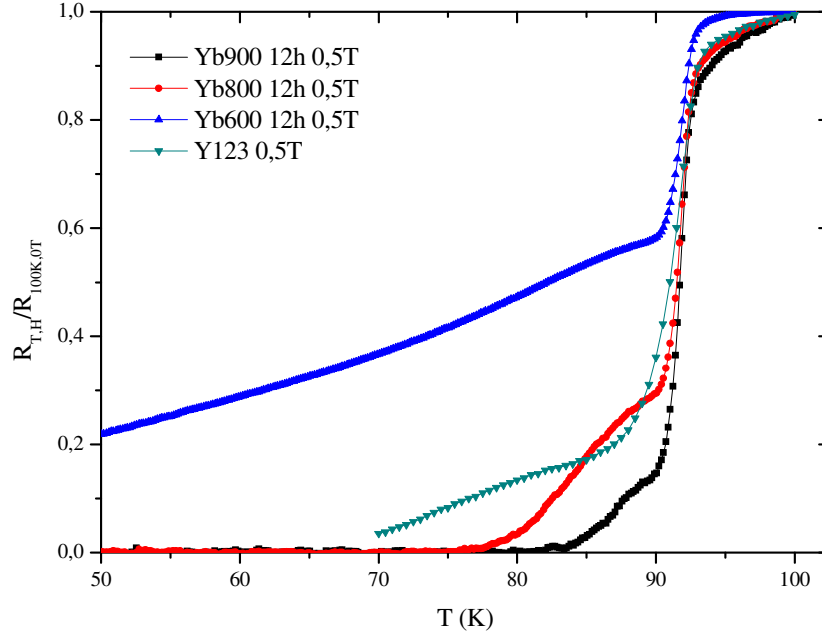
Şekil 3.22. Yb800 örneğinin $H=0.0 - 2,0$ T manyetik alan altındaki direncinin sıcaklığa göre değişimi



Şekil 3.23. Yb600 örneğinin $H=0.0 - 2.0$ T manyetik alan altındaki direncinin sıcaklığa göre değişimi



Şekil 3.24. Temiz Y123 ve Yb900, Yb800, Yb600 örneklerinin alansız halde direnç değerlerinin sıcaklığa göre değişimleri



Şekil 3.25. Temiz Y123 ve Yb900, Yb800, Yb600 örneklerinin 0,5 T manyetik alan altında direnç değerlerinin sıcaklığa göre değişimleri

3.2.4.1. Difüzyon Yapılmış Y123 Süperiletkeninde Aktivasyon Enerjisinin (U) Belirlenmesi

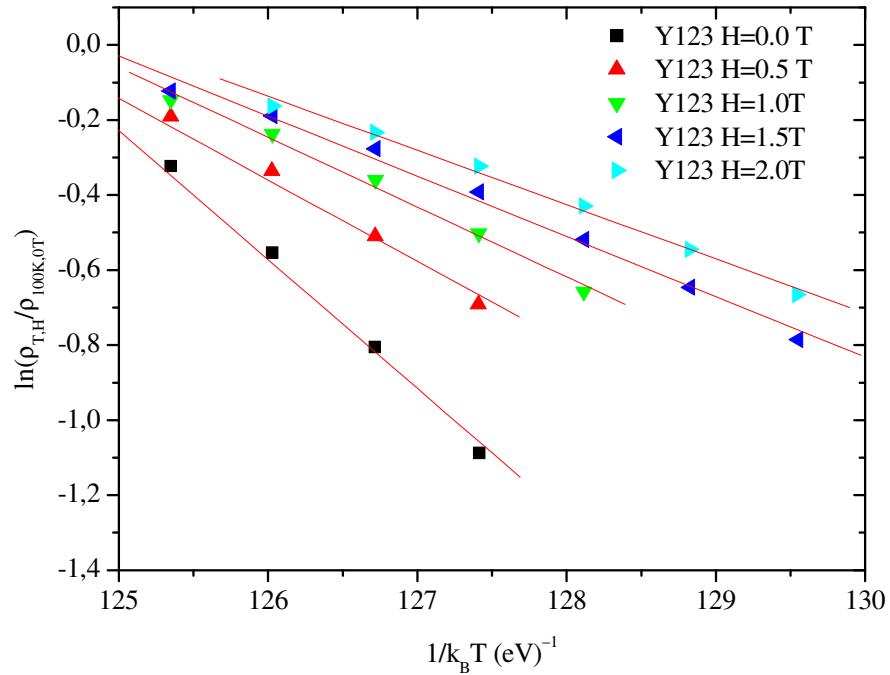
Örneklerin farklı dış manyetik alanlar altında ölçülen direnç değerlerinden her örneğin farklı alanlardaki öz direnç ve aktivasyon enerjileri hesaplandı. Bunun için öncelikle örneklerin normal halden süperiletken hale geçişin en hızlı olduğu sıcaklık aralığındaki öz dirençleri, 100K ve 0T manyetik alandaki öz direnç değerlerine normalize edildi ve hesaplamada aşağıda verilen Arrhenius aktivasyon enerjisi (Palstra vd., 1990) bağıntısı kullanıldı.

$$\rho(H,T) = \rho_0 \exp(-U(H) / k_B T) \quad (3.3)$$

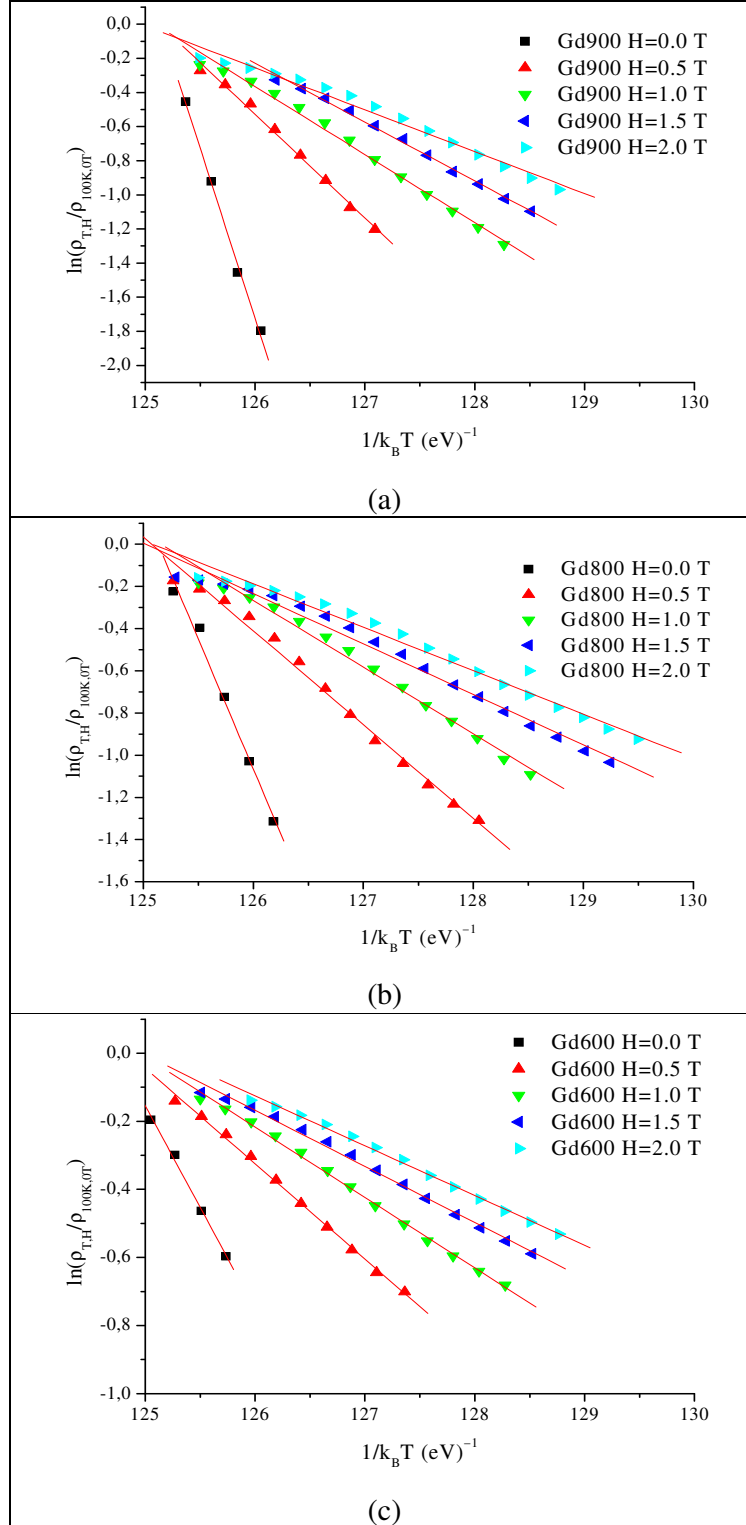
Bu ifadedeki $U(H)$, uygulanan dış manyetik alan (H) altındaki örnekte akı çizgilerinin hareket etmesi için gerekli aktivasyon enerjisi (ısıyla uyarılmış akı akışı (TAFF)); k_B Boltzmann sabiti; $\rho(H,T)$ belli bir manyetik alandaki öz direnç ve ρ_0 ise başlangıçtaki öz direnç değeridir. (3.3) ifadesinden de görüldüğü gibi normalize edilmiş öz direnç değerlerinin doğal logaritmasının $1/k_B T$ değerine göre değişimi $(\ln(\rho/\rho_0) - 1/k_B T)$ sabit olup,

bu değer aktivasyon enerjisinin negatif değerine eşittir. Şekil 3.26 ve 3.27 sırasıyla Y123 ve Gd900, Gd800, Gd600 örneklerinin farklı manyetik alanlarda aktivasyon enerjilerinin hesaplandığı doğrular olup bu grafiklerin eğimlerinden hesaplanmış aktivasyon enerjileri ise Şekil 3.28 de verildi. Şekil 3.29; Yb900 ve Yb800 örneklerinin farklı manyetik alanlardaki aktivasyon enerjilerini hesaplamak için kullanılan doğruları; Şekil 3.30 ise bu grafiklerin eğimlerinden hesaplanmış aktivasyon enerjilerini göstermektedir.

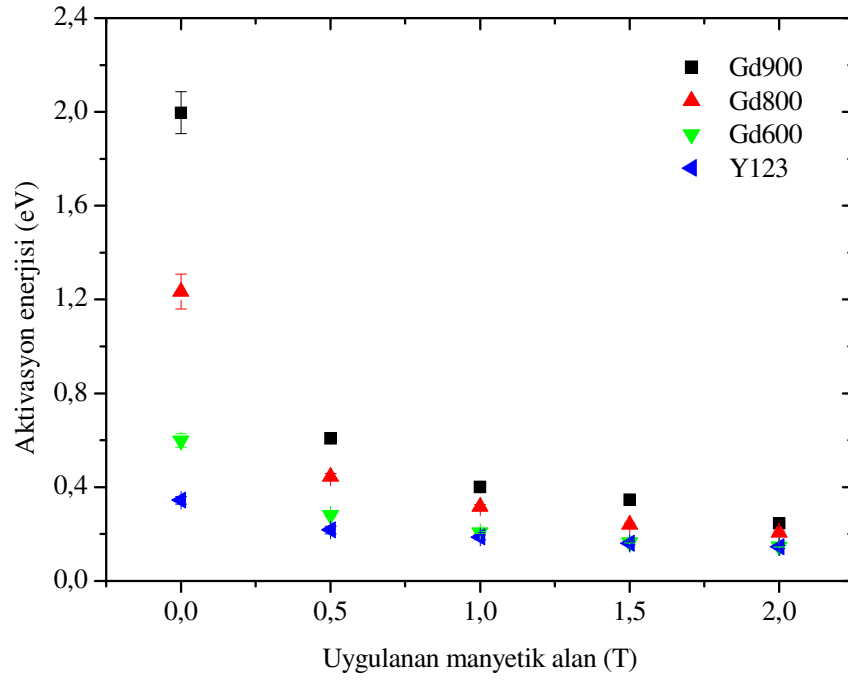
Şekil 3.28 ve 3.30 da artan difüzyon sıcaklığıyla örneklerin aktivasyon enerjilerinin de arttığı ve manyetik alanın artışıyla aktivasyon enerjilerinin üstel olarak azaldığı görülmektedir. Şekillerde ayrıca 900 ve 800 °C de Gd difüzyonu yapılan örneklerin aktivasyon enerjilerinin aynı sıcaklıklarda Yb difüzyonu yapılan Y123 ve temiz Y123 örneklerinin aktivasyon enerji değerlerinden büyük olduğu belirlendi. Bu duruma, farklı sıcaklıklardaki katkı atomu difüzyonuyla Y123 örneği içerisinde artan normal bölgelerin, akı çivileme merkezleri gibi çalışmasının sebep olduğu düşünüldü ve buna bağlı olarak süperiletkenlik özelliklerinin iyileştiği sonucuna varıldı.



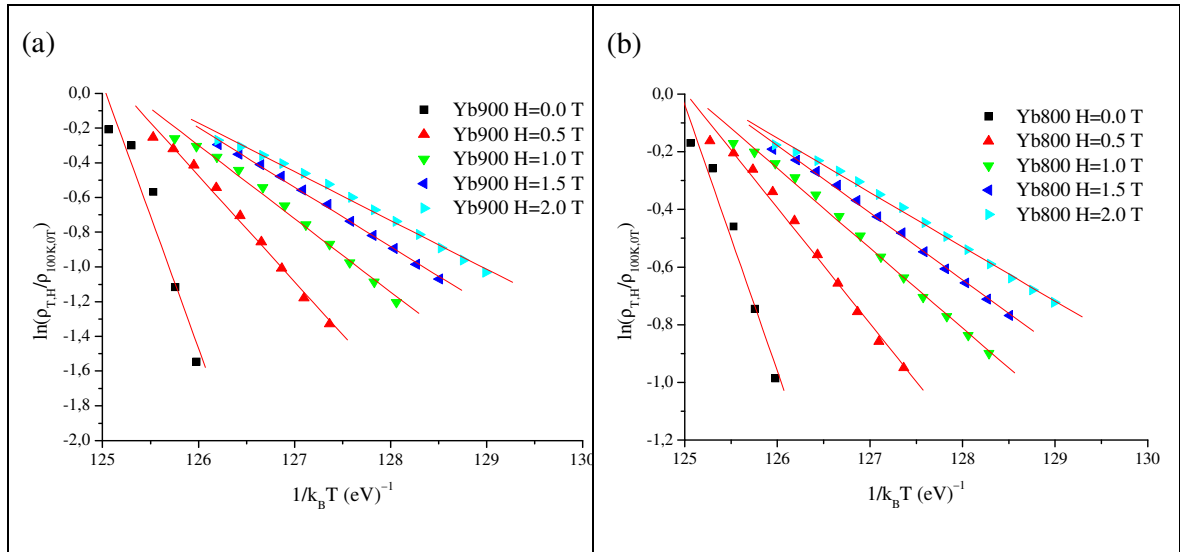
Şekil 3.26. Y123 örneğinin farklı manyetik alanlarda aktivasyon enerjilerinin hesaplandığı doğrular



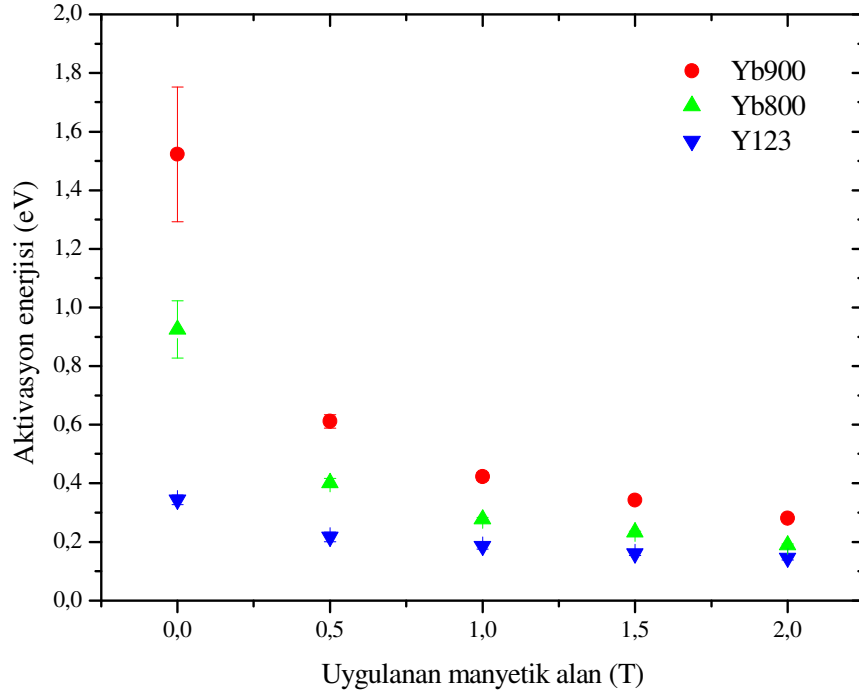
Şekil 3.27. (a) Gd900, (b) Gd800 ve (c) Gd600 örneklerinin farklı manyetik alanlardaki aktivasyon enerjilerinin hesaplandığı doğrular



Şekil 3.28. Y123, Gd900, Gd800 ve Gd600 örneklerinin aktivasyon enerjilerinin (U) uygulanan manyetik alana göre değişimi



Şekil 3.29. (a) Yb900 ve (b) Yb800 örneklerinin farklı manyetik alanlarda aktivasyon enerjilerinin hesaplandığı doğrular



Şekil 3.30. Y123, Yb900 ve Yb800 örneklerinin aktivasyon enerjilerinin (U) uygulanan manyetik alana göre değişimi

3.2.4.2. Difüzyon Yapılmış Y123 Süperiletkeninde Üst Kritik Manyetik Alan (H_{c2}) Değerinin Belirlenmesi

Süperiletken halden normal hale geçişin en hızlı olduğu sıcaklık, direncin en hızlı değişim gösterdiği sıcaklık olup bu sıcaklıkta normalize edilmiş direnç değeri yaklaşık 0,5 olarak belirlendi. Üst kritik manyetik alan (H_{c2}) ve uyum uzunluğu (ξ) daha önceki (1.13) ve (1.6) ifadelerinde sırasıyla aşağıdaki gibi verilir:

$$H_{c2}(T) = \frac{\phi_0}{2\pi\xi^2(T)}$$

ve

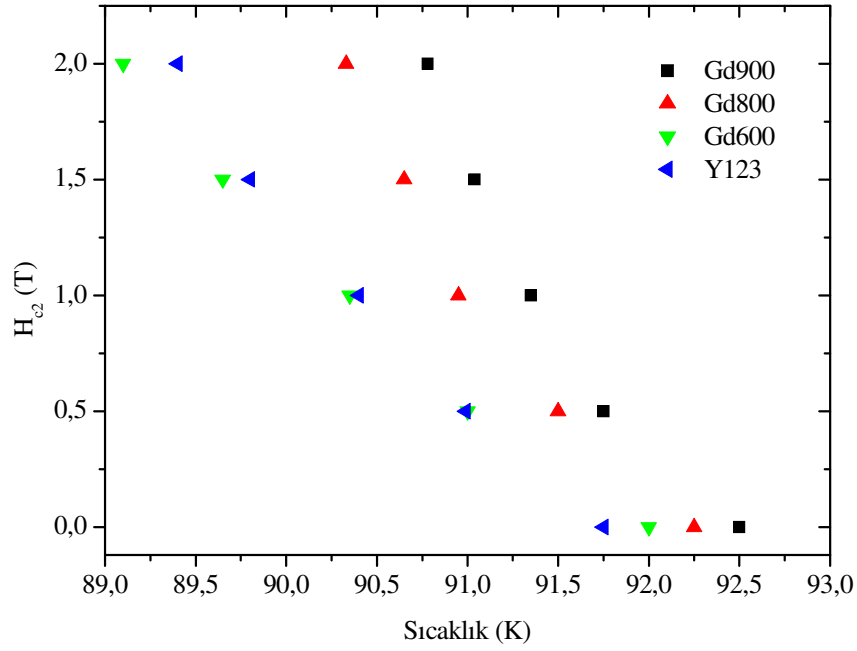
$$\xi(T) = \xi_0 \left(1 - \frac{T}{T_c}\right)^{-1/2}$$

Bu ifadelerde ϕ_0 akı kuantumu ($\phi_0 = 2,067833636 \times 10^{-15} \text{Tm}^2$), $\xi(T)$ sıcaklığa bağlı koherens (uyum) uzunluğu olup H_{c2} ifadesinde yerine yazılırsa:

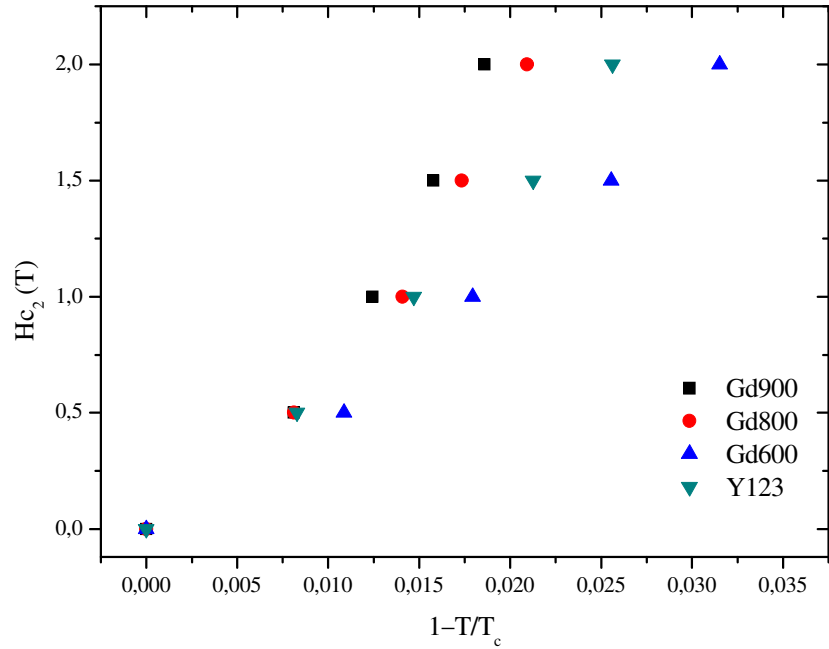
$$H_{c2}(T)=H_{c2}(0)\left(1-\frac{T}{T_c}\right) \quad (3.4)$$

eşitliği elde edilir (Poole, 2000;Thinkam, 1996). (3.4) ifadesindeki T_c sıcaklığı, dış manyetik alan olmadığı durumda; T ise manyetik alanın olması durumunda normalize edilmiş direncin 0,5 olduğu değerdeki sıcaklığa karşılık gelmektedir. Belirli bir dış manyetik alan varken elde edilen R-T (normalize edilmiş direnç-sıcaklık) ölçümlerinde normalize edilen direncin değişiminin maksimum olduğu sıcaklık T ve dış manyetik alan değeri ise $H_{c2}(T)$ olarak belirlendi. Farklı manyetik alan değerleri için bu iki parametre belirlenerek $H_{c2}(T) - T$ grafikleri Gd ve Yb difüzyon katkılı numuneler için sırasıyla Şekil 3.31 ve 3.34 de; $H_{c2}(T) - (1-T/T_c)$ grafikleri ise Gd ve Yb difüzyon katkılı numuneler için sırasıyla Şekil 3.32 ve 3.35 de verildi. Şekillerde difüzyon sıcaklığı büyük olan örneklerin (900 ve 800 °C gibi) belli sıcaklıklardaki H_{c2} değerlerinin de büyük olduğu görülmektedir. $H_{c2}(T) - (1-T/T_c)$ grafiklerindeki doğruların eğimlerinden her numune için mutlak sıfır sıcaklığındaki $H_{c2}(0)$ değerleri, difüzyon tavlama sıcaklığına göre belirlendi.

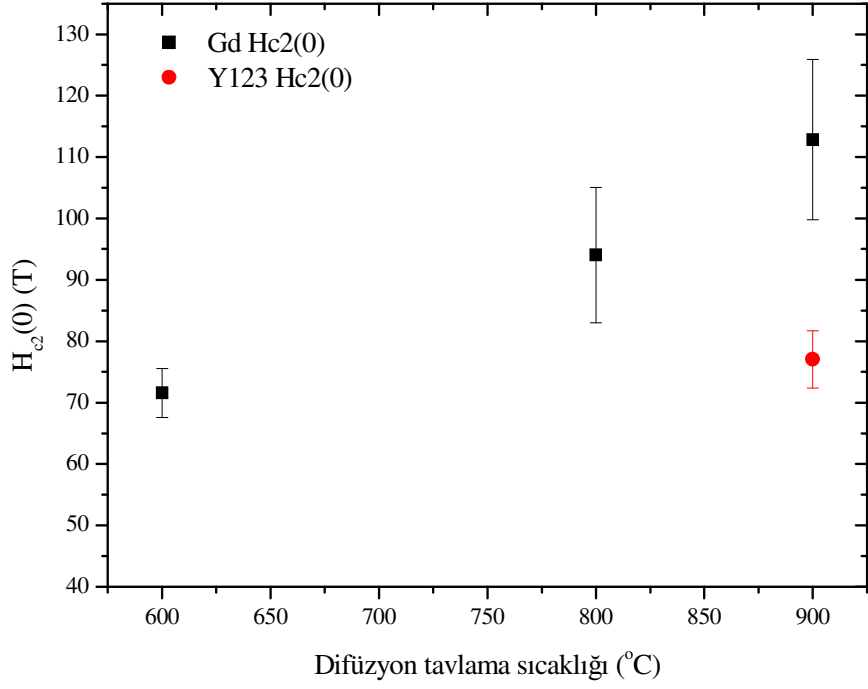
Şekil 3.33; Y123, Gd900, Gd800 ve Gd600 örneklerinin hesaplanan $H_{c2}(0)$ değerlerinin difüzyon tavlama sıcaklığına göre değişimini göstermektedir. Şekilde, $H_{c2}(0)$ değeri ile gadolinyum difüzyonu yapılmış örneklerin difüzyon tavlama sıcaklığı arasında doğrusal bir ilişki görülmektedir. Gd difüzyon yapılmış örneklerin difüzyon tavlama sıcaklığı ile c- örgü parametresi ve aktivasyon enerjisi arasında daha önceden buna benzer bir ilişki görülmüştür. Bu durum yüksek sıcaklıklardaki Gd difüzyonunun Y123 örneğinin yapısal ve süperiletkenlik özelliklerini iyileştirdiğini gösterir. Şekil 3.35 deki Yb900, Yb800 ve Y123 örneklerinin üst kritik manyetik alanının $1-T/T_c$ ile değişimi doğrularından Yb900, Yb800 ve Y123 örneklerine ait $H_{c2}(0)$ değerleri sırasıyla $108,706\pm 9,606$; $84,102\pm 6,005$ ve $77,036\pm 4,671$ T olarak belirlendi. Yb difüzyonu için hesaplanan $H_{c2}(0)$ değerlerinin Şekil 3.33 de aynı sıcaklıkta Gd difüzyonu yapılan örneklerin $H_{c2}(0)$ değerlerinden daha küçük olduğu görülmektedir.



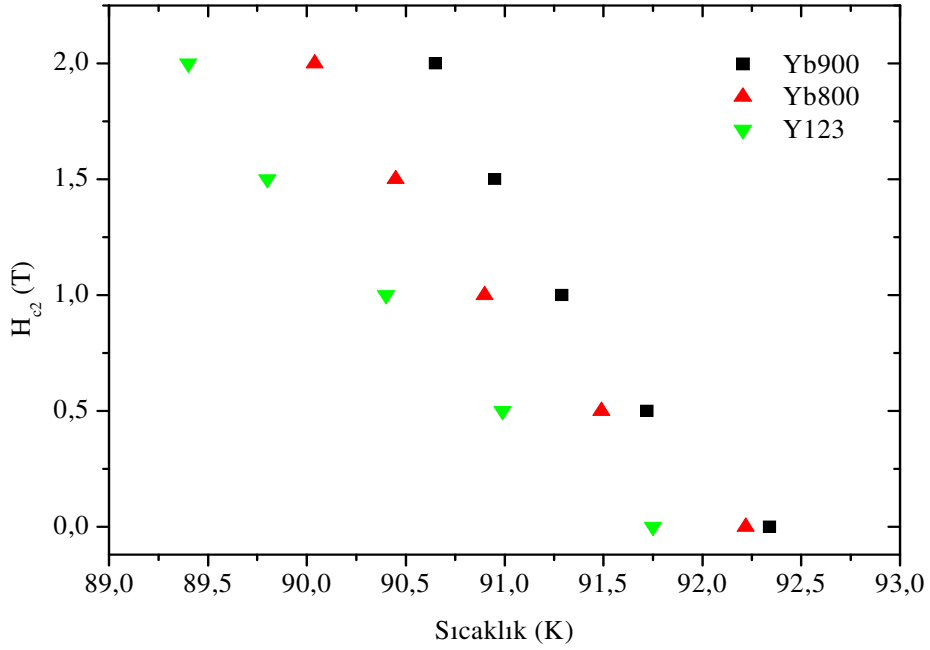
Şekil 3.31. Y123, Gd900, Gd800 ve Gd600 örneklerinin üst kritik manyetik alanının (H_{c2}) sıcaklığa göre değişimi



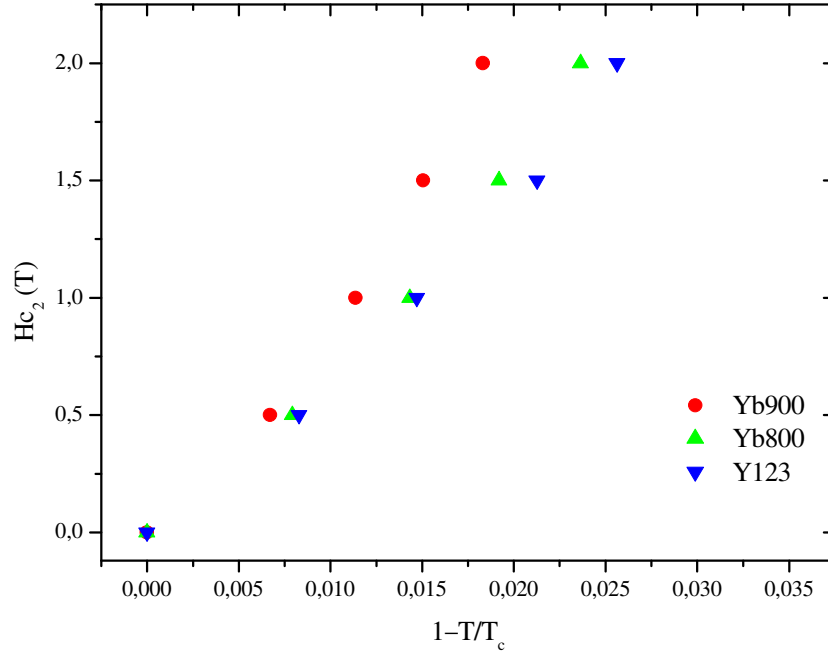
Şekil 3.32. Y123, Gd900, Gd800 ve Gd600 örneklerinin üst kritik manyetik alanının $1-T/T_c$ ile değişimi (doğruların eğimi mutlak sıfır sıcaklığındaki üst kritik manyetik alan ($H_{c2}(0)$) değeridir)



Şekil 3.33. Y123, Gd900, Gd800 ve Gd600 örneklerinin hesaplanan $H_{c2}(0)$ değerlerinin difüzyon tavlama sıcaklığına göre değişimi



Şekil 3.34. Y123, Yb900 ve Yb800 örneklerinin üst kritik manyetik alanının (H_{c2}) sıcaklığa göre değişimi



Şekil 3.35. Y123, Yb900 ve Yb800 örneklerinin üst kritik manyetik alanı H_{c2} 'nin $1-T/T_c$ ile değişimi

3.2.5. Gadolinyum ve İterbiyum Difüzyonunun Y123 Süperiletkeninin Manyetizasyon Özelliklerine Etkisi

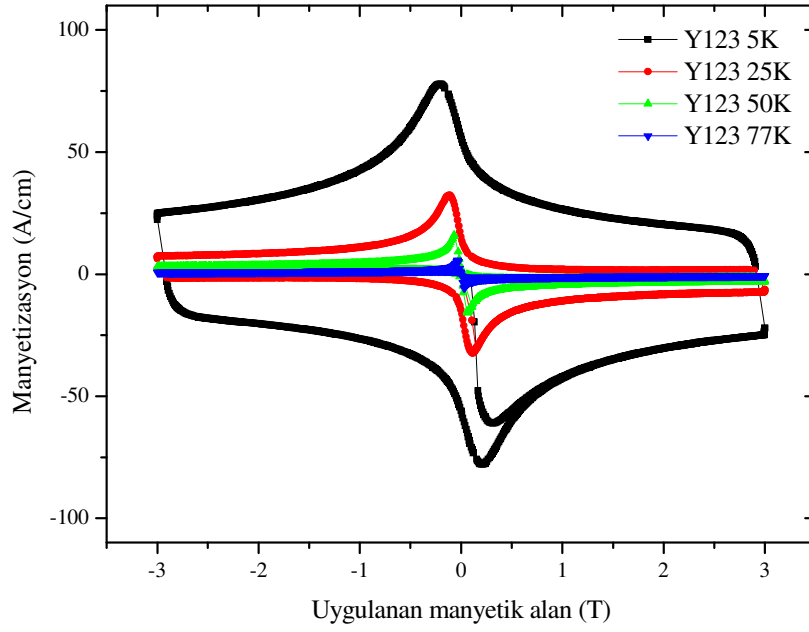
3.2.5.1. Gadolinyum ve İterbiyum Difüzyonu Yapılmış Y123 Süperiletkenlerinde Manyetizasyon Ölçümleri

Çalışmada kullanılan örneklerin manyetizasyon ölçümleri, 5; 25; 50 ve 77 K'lık sabit sıcaklıklarda, 5 mT/s'lik süpürme hızında ve -3 T ile +3 T arasında manyetik alan uygulayarak alansız soğutma rejiminde yapıldı. Ölçüm süresince manyetik alan örneğin difüzyon yapılmış yüzeyine dik olarak uygulandı ve örneğin soğutulması işlemine, örnek içerisinde tuzaklanabilecek akıyı yok etmek için T_c 'nin üzerindeki sabit bir sıcaklıkta 1-2 dakikalık bekleme süresinden sonra başlandı. Örnek sıcaklığı 0,05 K hassasiyetinde düşünülen değere ulaştıktan sonra, ısıtma esnasında ölçümler alındı. Manyetizasyon ölçümlerinde, manyetik alan değişimleri beş aşamada gerçekleştirildi: 1. aşama (0) - (+ H_{maks}), 2. aşama (+ H_{maks}) - (0), 3. aşama (0) - (- H_{maks}), 4. aşama (- H_{maks}) - (0) ve 5. aşama (0) - (+ H_{maks}) şeklindedir. Her iki aşama arasında beklenmeden bir sonraki aşamaya geçildi.

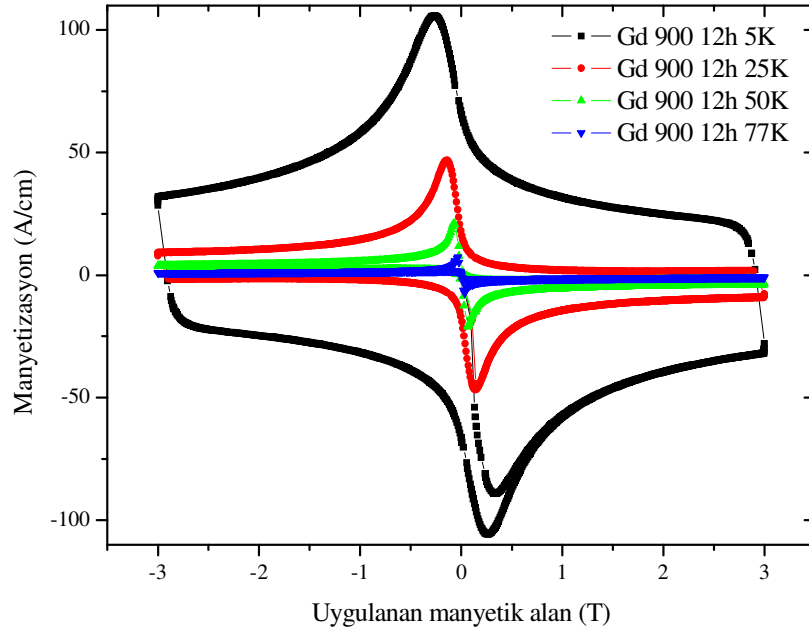
VSM sisteminde kullanılan manyetometre “emu” cinsinden manyetik moment ölçmekte olup ölçülen veriler ilk başta örneğin hacmine bölünerek manyetizasyon değeri olan A/cm birimine dönüştürüldü. Şekil 3.36, 3.37 ve 3.38’de sırasıyla temiz Y123, Gd900 ve Gd800 örneklerinin; Şekil 3.43 ve 3.44 de ise Yb900 ve Yb800 örneklerinin 5, 25, 50, 77 K sıcaklıklarındaki M-H ilmekleri verilmektedir. Her örneğin kritik sıcaklık değerine yaklaştıkça, manyetizasyon değerleri azalmaktadır. Bu şekillerde ölçüm sıcaklığı azaldıkça manyetizasyon eğri genişliğinin artması, örnek içerisinde süperiletken taneler arasındaki temasın dereceli olarak iyileştiğini gösterir. Buna ek olarak, manyetizasyon ilmek genişliği ile malzeme içerisindeki akı çivileme merkezi sayısının orantılı olduğu bir çok çalışma rapor edilmiştir (Feng vd., 1998). Gd900, Gd800 ve Y123 örneklerinin 5, 25 ve 77 K gibi farklı sıcaklıklarda ölçülen manyetizasyonun alana bağlı değişim eğrileri sırasıyla Şekil 3.39, 3.40 ve 3.41’de verilmektedir. Bu şekillerden difüzyon tavlama sıcaklığı arttıkça M-H ilmeklerinin genişliğinin arttığı ve dolayısıyla örneklerin manyetizasyon özelliklerinin iyileştiği söylenebilir. Benzer özellik, 900 °C’de 12 saat iterbium difüzyonu yapılan örneğin manyetizasyon ilmeğinin Y123 örneğinin manyetizasyon ilmeğinden daha geniş olduğu Şekil 3.45 ve 3.46’da da görülmektedir. Bu durum nadir toprak elementlerinden (RE) olan gadolinyum atomuyla aynı periyotta bulunan iterbium atomu için beklenen bir sonuçtur.

Ayrıca hemen hemen tüm şekillerde M-H ilmeklerinde belirli bir manyetik alan değerine kadar ΔM değeri artmakta ve belli bir tepe değerinden sonra uygulanan manyetik alan arttıkça ΔM değeri düşmektedir. Bunun nedeni, taneli yapıya sahip örneğin içindeki taneler arası etkileşimin zayıf olması ve düşük manyetik alanın ise bu etkileşimi bir dereceye kadar arttırdığı düşünülmektedir. Manyetik alan değeri belli bir değerden daha yüksek olduğunda ise taneler arası etkileşim ortadan kalkmakta ve artan manyetik alanla manyetizasyon tekrar azalmaktadır. Bu durum gadolinyum ve iterbium difüzyonu yapılan her iki grup örnekte de mevcut olup kritik akım yoğunluğunda daha net görülmektedir.

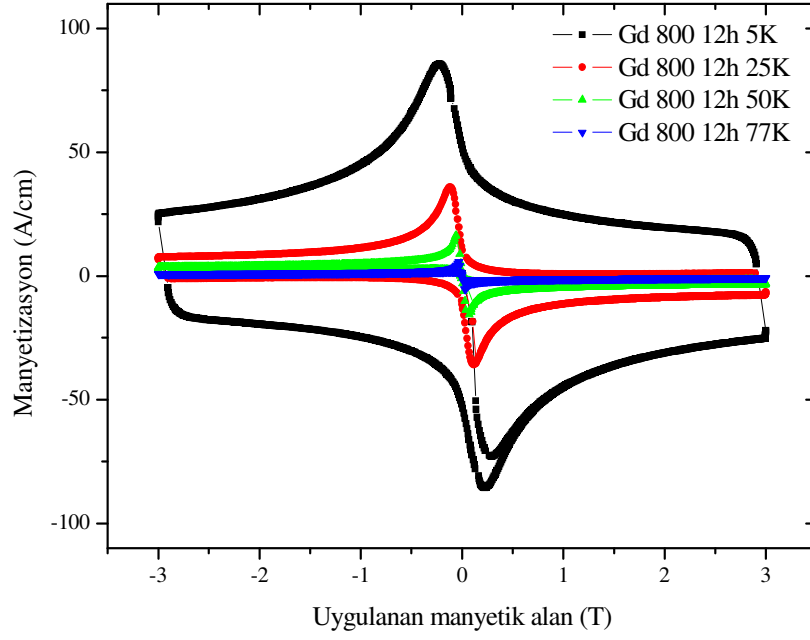
Şekil 3.42, 800 °C’de 12 ve 48 saat gadolinyum difüzyonu yapılan Y123 örneklerinin 5 K de alınan M-H ilmeklerini göstermektedir. Şekilde difüzyon tavlama süresi arttıkça manyetizasyon ilmek genişliğinin çok az miktarda değiştiği görülmektedir. Böylece 800 °C’de 12 veya 48 saat difüzyon tavlama süresinin örnek üzerinde çok fazla bir etki yapmadığı sonucuna varıldı.



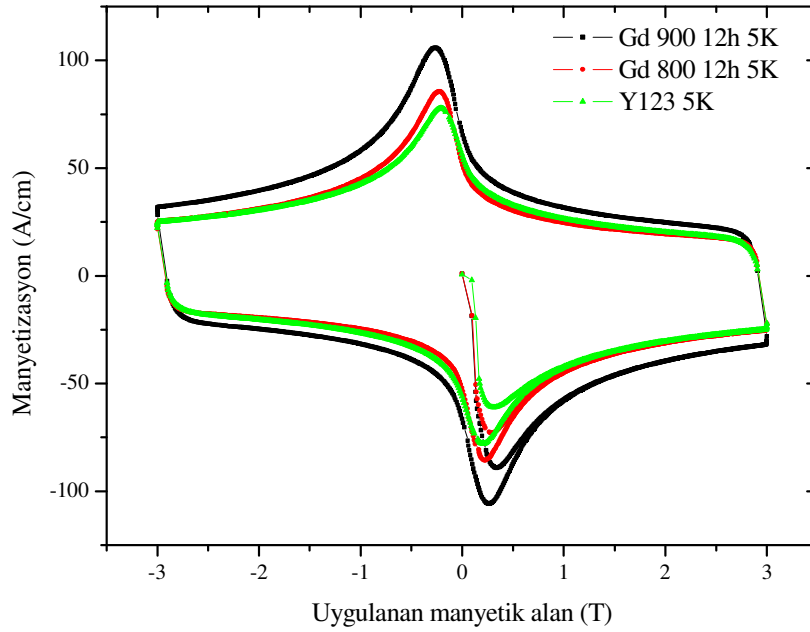
Şekil 3.36. Temiz Y123 örneğinin 5, 25, 50, 77 K sıcaklıklarındaki M-H ilmekleri ($H_{\text{maks}} = 3 \text{ T}$)



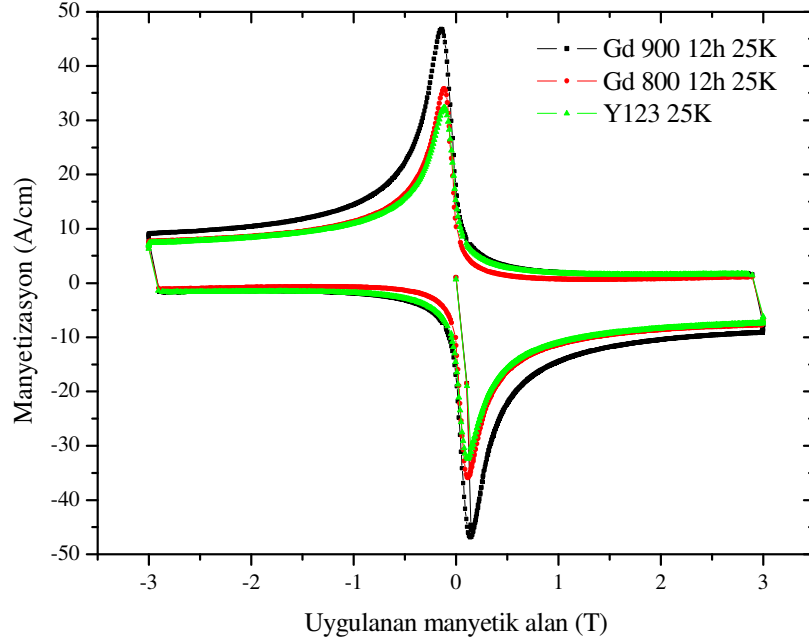
Şekil 3.37. Gd900 örneğinin 5, 25, 50, 77 K sıcaklıklarındaki M-H ilmekleri ($H_{\text{maks}} = 3 \text{ T}$)



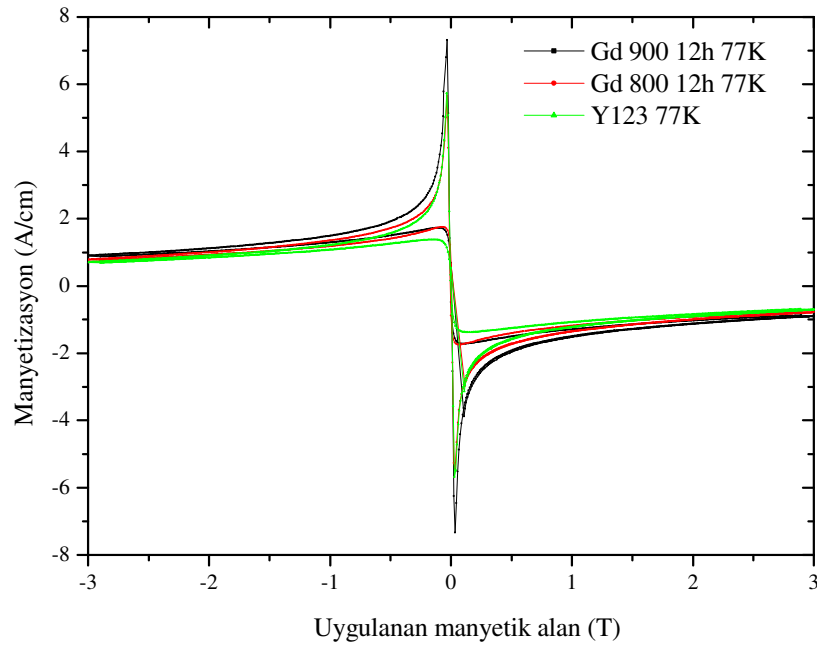
Şekil 3.38. Gd800 örneğinin 5, 25, 50, 77 K sıcaklıklarındaki M-H ilmekleri ($H_{maks} = 3 \text{ T}$)



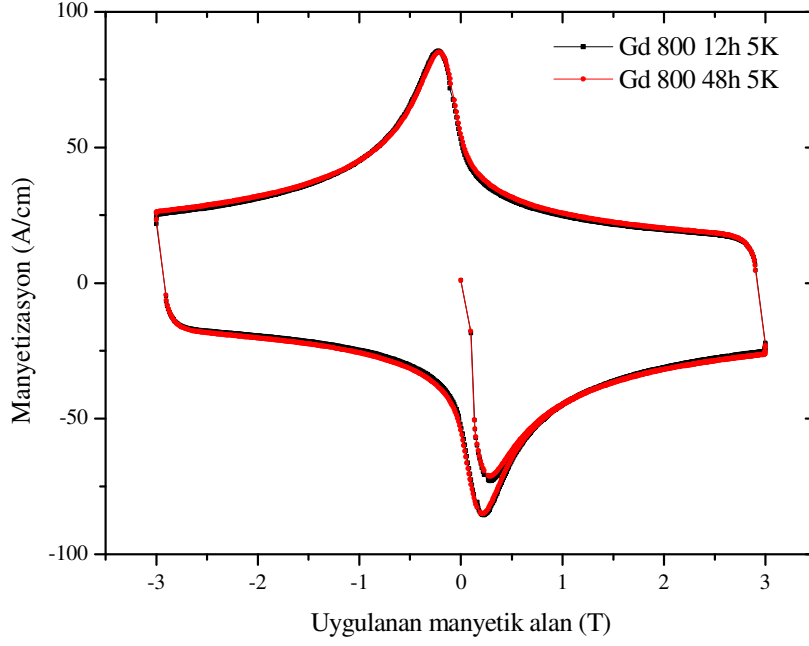
Şekil 3.39. Gd900, Gd800 ve Y123 örneklerinin 5 K'deki M-H ilmekleri



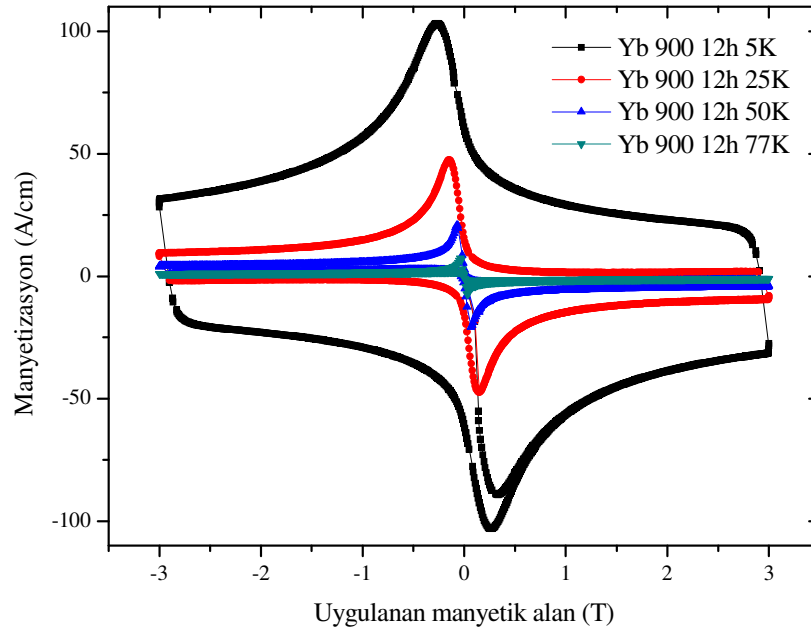
Şekil 3.40. Gd900, Gd800 ve Y123 örneklerinin 25 K'deki M-H ilmekleri ($H_{\text{maks}} = 3$ T)



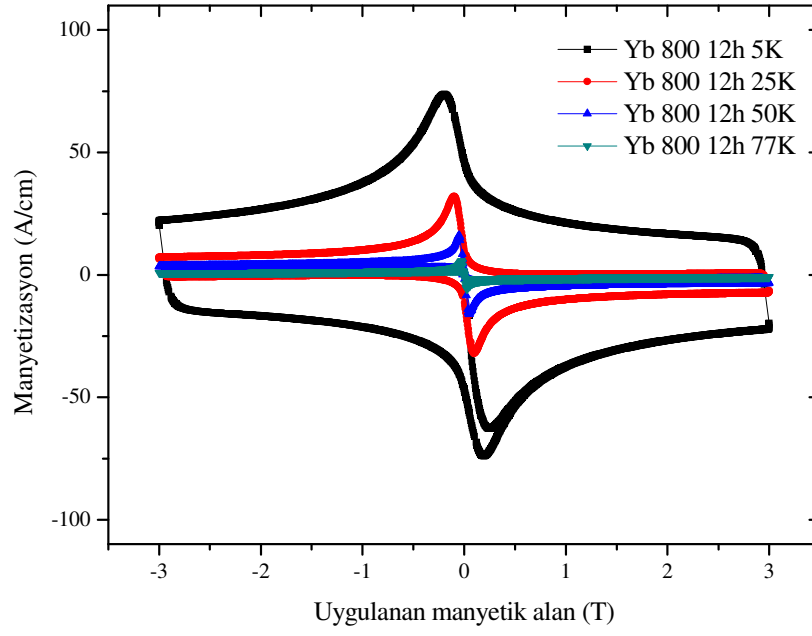
Şekil 3.41. Gd900, Gd800 ve Y123 örneklerinin 77 K'deki M-H ilmekleri ($H_{\text{maks}} = 3$ T)



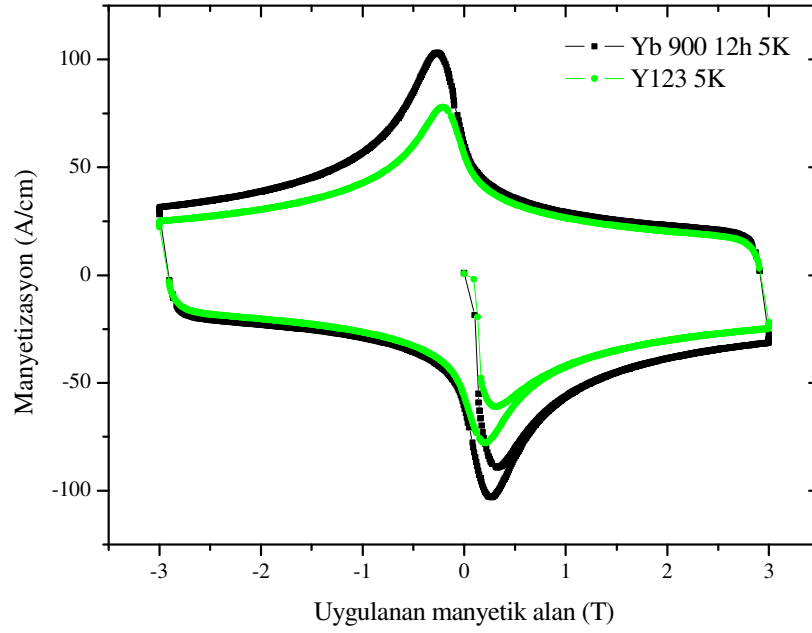
Şekil 3.42. 800 °C’de 12 ve 48 saat gadolinyum difüzyonu yapılan Y123 örneğinin 5 K’deki M-H ilmekleri



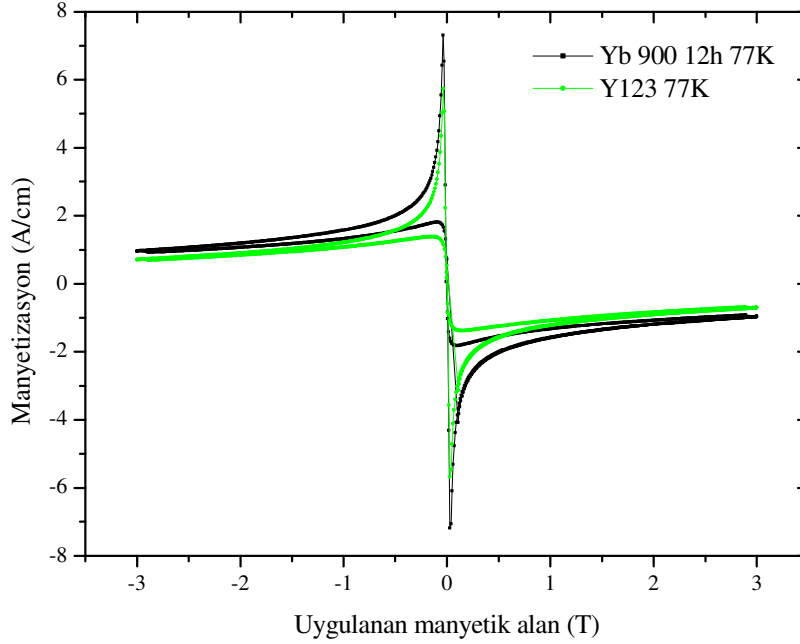
Şekil 3.43. Yb900 örneğinin 5, 25, 50, 77 K sıcaklıklarındaki M-H ilmekleri



Şekil 3.44. Yb800 örneğinin 5, 25, 50, 77 K sıcaklıklarındaki M-H ilmekleri



Şekil 3.45. Yb900 ve Y123 örneklerinin 5 K sıcaklığındaki M-H ilmekleri



Şekil 3.46. Yb900 ve Y123 örneklerinin 77 K sıcaklığındaki M-H ilmekleri

3.2.5.2. Difüzyon Yapılmış Y123 Süperiletkenlerinde Kritik Akım Yoğunluğunun Belirlenmesi

Farklı sıcaklık ve sürelerde gadolinyum ve iterbiyum difüzyonu yapılan örneklerin kritik akım yoğunlukları (J_c), manyetizasyon ölçümlerinden hesaplandı. Bunun için M-H ilmeğinde manyetik alan artırılırken ve azaltılırken örneğin sahip olduğu pozitif ve negatif manyetizasyon değerleri ele alındı. M-H ilmeğinin I. aşamadaki manyetik alan uygulamasında ((0) - (+ H_{maks}) aralığı) ölçülen manyetizasyon değerleri hesaba katılmadı. Uygulanan manyetik alan, kesit alanı $L_1 \times L_2$ olan difüzyon yapılmış yüzeye dik olup, manyetizasyon ölçüm şekillerinden örneklerin kritik akım yoğunluğu aşağıda (3.5) ifadesiyle verilen genişletilmiş 'Bean modelinden' yararlanılarak hesaplandı (Campbell ve Evetts, 1972).

$$J_c(H,T) = 20 \frac{\Delta M}{L_1} \left(1 - \frac{L_1}{3L_2} \right)^{-1} \quad (3.5)$$

Bu ifadedeki ΔM manyetizasyon farkını (M-H ilmeğinde H_{maks} manyetik alanından düşerken belli manyetik alandaki manyetizasyon ile $-H_{maks}$ 'dan H_{maks} 'a artarken aynı manyetik alandaki manyetizasyon değerleri arasındaki fark), L_1, L_2 ise sırasıyla uygulanan

manyetik alana dik doğrultudaki kısa ve uzun kenarı ($L_2 > L_1$) temsil etmektedir. Böylece kritik akım yoğunluğu yukarıdaki formül kullanılarak hesaplandı ve sonuçlar grafiklerle gösterildi.

Şekil 3.47, 3.48 ve 3.49 sırasıyla, farklı sıcaklıklarda ölçüm alınan Y123, Gd900 ve Gd800 örneklerinin; Şekil 3.50, 3.51 ve 3.52 ise Gd900, Gd800 ve Y123 örneklerinin sırasıyla 5, 25 ve 77 K sıcaklıklarındaki kritik akım yoğunluğunun manyetik alana göre değişimini göstermektedirler. Bu şekillerden 5 K de hesaplanan J_c değerleri (0 T manyetik alandaki), Gd900, Gd800 ve Y123 örnekleri için sırasıyla $2,12 \times 10^4$; $1,70 \times 10^4$ ve $1,64 \times 10^4$ A/cm² olarak belirlendi. Tüm şekillerde ölçüm sıcaklığı arttıkça kritik akım yoğunluğunda azalma meydana gelmektedir ve 77 K sıcaklığında hesaplanan J_c değerleri Gd900, Gd800 ve Y123 örnekleri için sırasıyla 122, 101 ve 55 A/cm² olarak belirlendi. Gd900, Gd800 ve Yb900, Yb800 (Şekil 3.55-3.59) örneklerinde manyetik alan artarken kritik akım yoğunluğu da belirli bir değere kadar artmakta ve daha yüksek manyetik alanlarda ise kritik akım yoğunluğu azalmaktadır. Difüzyon yapılan Y123 örneğinin polikristal olduğu ve taneler arası etkileşimin zayıf olduğu göz önüne alınır, küçük şiddetteki manyetik alanın taneler arası etkileşimi arttırdığı bu durum, örneğin kritik akım yoğunluğunun düşük manyetik alanda artmasına neden olmaktadır. Belli değerin üzerindeki manyetik alanlarda ise taneler arası etkileşim azalmakta ve böylece kritik akım yoğunluğu tekrar azalmaktadır. Gadolinyum ve iterbiyum difüzyonu yapılmış örneklerin J_c -H grafiklerinde, taneler arası etkileşimi arttıran manyetik alan aralığı ise sıcaklık arttıkça azalmaktadır.

900 ve 800 °C'de gadolinyum difüzyonu yapılan örneklerde ölçüm sıcaklığının düşmesiyle kritik akım yoğunluğunda büyük artışın meydana gelmesi, örnek içerisindeki akı çivileme kuvvetinin aşamalı olarak geliştiğini gösterir (Feng vd., 1998). Gd900 örneğinin diğer örneklerle karşılaştırıldığında maksimum kritik akım yoğunluğuna sahip olması, artan difüzyon sıcaklığıyla malzeme içerisinde daha fazla çivileme merkezleri oluştuğuna işaret eder. Bu durum 800 °C'lik sabit difüzyon sıcaklığında, difüzyon süresinin artmasıyla J_c 'nin arttığı Şekil 3.53, 3.54, 3.60 ve 3.61'de verilen grafiklerle de kısmen doğrulanmıştır. Şekil 3.53 ve 3.54, 800 °C'de 12 ve 48 saat gadolinyum difüzyonu yapılan Y123 örneklerinin; Şekil 3.60 ve 3.61 ise 800 °C'de 12 ve 48 saat iterbiyum difüzyonu yapılan Y123 örneklerinin sırasıyla 5 ve 50 K sıcaklıklarındaki J_c -H grafiklerini göstermektedirler. Bu şekillerde 800 °C'de 48 saat gadolinyum difüzyonu yapılan örneğin

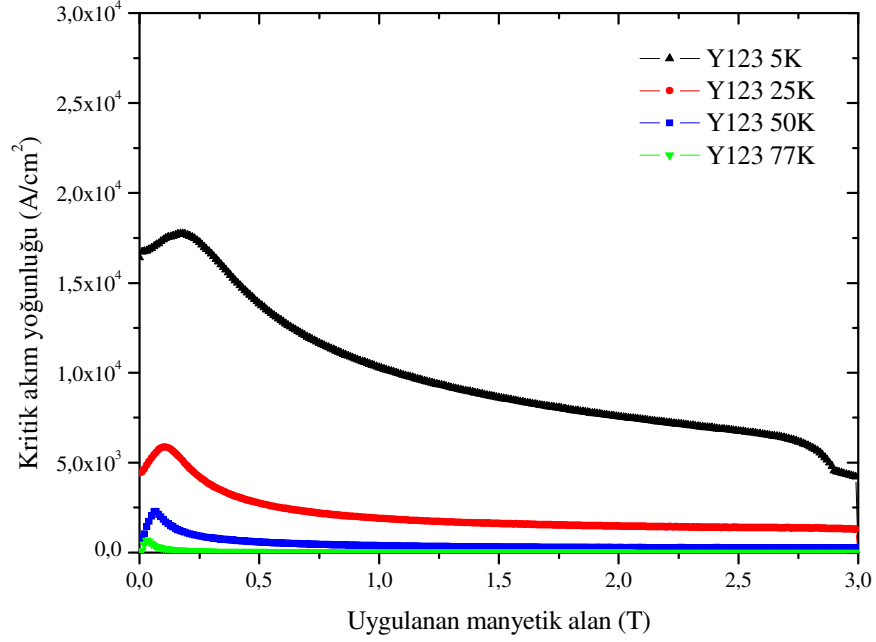
kritik akım yoğunluğunun aynı sıcaklık ve sürede iterbiyum difüzyonu yapılan örneğin kritik akım yoğunluğundan daha büyük olduğu görülmektedir.

Şekil 3.62, Gd900, Yb900 ve Y123 örneklerinin 5 K sıcaklığındaki kritik akım yoğunluğunun (J_c) manyetik alana göre değişimini göstermektedir. Bu şekilde, 900 °C'de gadolinyum ve iterbiyum difüzyonu yapılan örneklerin J_c değerlerinin, difüzyon yapılmamış Y123 örneğinin J_c değerinden daha büyük olduğu görülmektedir. Bu durum gadolinyum ve iterbiyumun Y123 örneğinin tavlama sıcaklığına yakın sıcaklıklardaki difüzyonunun, Y123 örneğinin süperiletkenlik özelliklerini iyileştirdiğini işaret eder. Şekilde, Yb900 örneğinin Gd900 örneğinin kritik akım yoğunluğundan daha küçük değere sahip olduğu görülmektedir. Bu durum nispeten küçük erime sıcaklığına sahip Yb atomunun (824 °C) 900 °C gibi yüksek difüzyon sıcaklığında Y123 ana malzemesiyle reaksiyona girerek yabancı fazlar oluşturmasıyla açıklanabilir. Ayrıca 800 ve 900 °C'de 12 saat iterbiyum difüzyonu yapılmış örneklerin Şekil 3.9'daki XRD desenlerinde yabancı fazların görülmesi bu durumu doğrular.

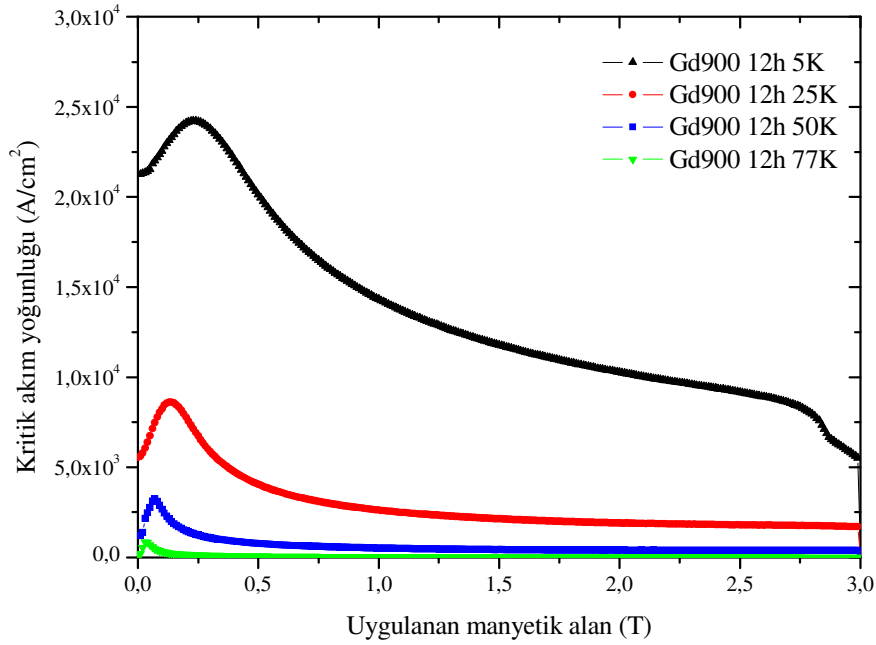
Daha önce değişik araştırmacılar tarafından yapılan çalışmalarda, nadir toprak elementlerinin (RE) Y123 süperiletkenine ekleme ve katılama yöntemiyle katılmasında, akı çivilenmesi etkisi araştırılmasına karşılık, J_c ve akı çivilemesinin artış mekanizması tam olarak açıklanamamıştır. Bizim çalışmamızda elde edilen veriler ışığında gadolinyum ve iterbiyum difüzyonu yapılan örneklerin (temiz Y123 örneğine göre) J_c değerinin artmasında aşağıdaki etkenler neden olabilir:

Gd ve Yb difüzyon katkı atomları eşzamanlı olarak Y123 süperiletkeninin tane içine ve taneler arasına yerleşmiştir. Tane içine yerleşemeyen katkı atomları, tane dışında kalarak tane sınırlarının yapısal kalitesinin gelişmesinde katalizör görevi yapmış olabilir. Bu durum (özellikle Y123 ve normal fazlar) taneler arası temas yüzeylerinin artışına (taneler arası direncin azalmasına) ve J_c artışı için gerekli olan akı çivileme merkezleri sayısının artışına sebep olur (Stalbov vd., 1999; Feng vd., 1998). J_c 'nin artmasında etkili olabilecek ikinci etken, Y123 süperiletkenlerinde akı çivilenme etkisinin, bu süperiletkendeki girdap örgüsü ile gerilme alanının (stress field) elastik etkileşmesinden ortaya çıkabileceğinin bilinmesiyle açıklanabilir. Bölgesel örgü uyumsuzluğuna, Y123 süperiletkenlerindeki Y'un, farklı iyonik yarıçapa sahip nadir toprak elementlerinin kısmi yerdeğiştirmesi neden olabilir ve bu durum gerilme alanının oluşumuna yol açar. Böylece akı çivileme bölgeleri ortaya çıkar. Bizim çalışmamızda Gd³⁺'un iyonik yarıçapı Y³⁺'un iyonik yarıçapından daha büyük olduğundan (Yb³⁺ iyonik yarıçapı ise Y³⁺'den daha küçük)

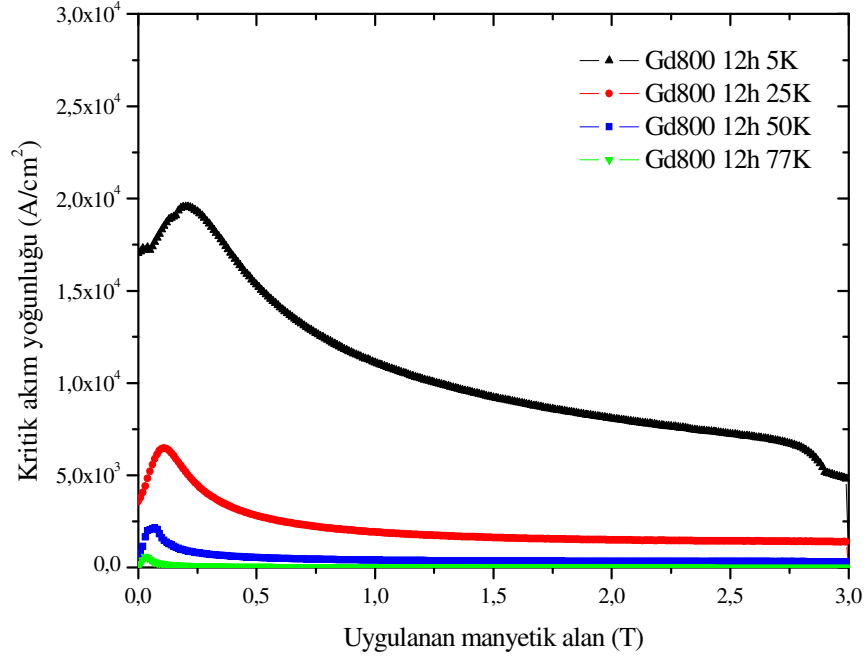
Gd difüzyonuyla gerilme alanı rahatlıkla oluşabilir ve böylece J_c artırılabilir (Li vd., 1994; Campbell ve Evetts, 1972).



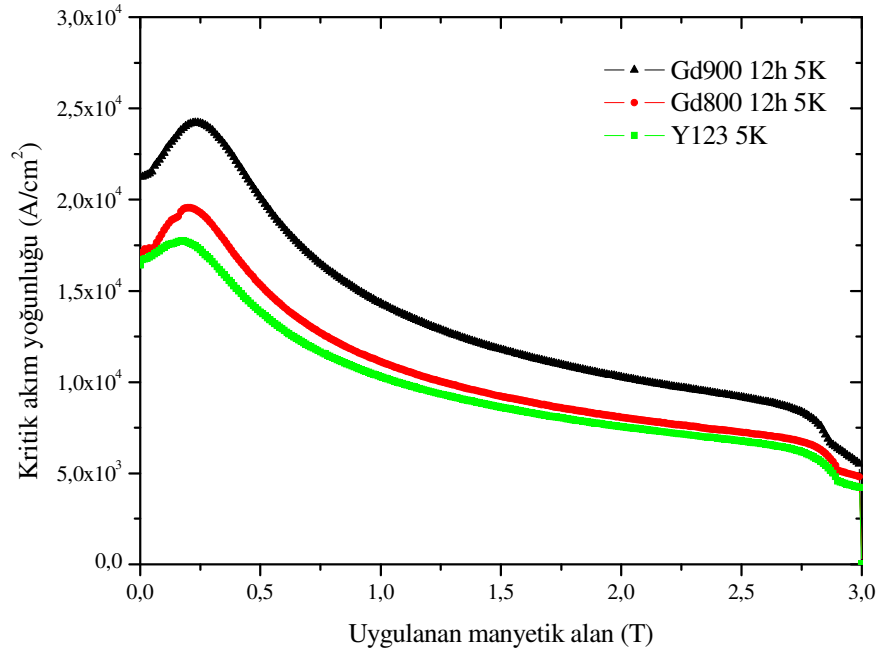
Şekil 3.47. Y123 örneğinin 5, 25, 50, 77 K sıcaklıklarındaki J_c -H grafikleri



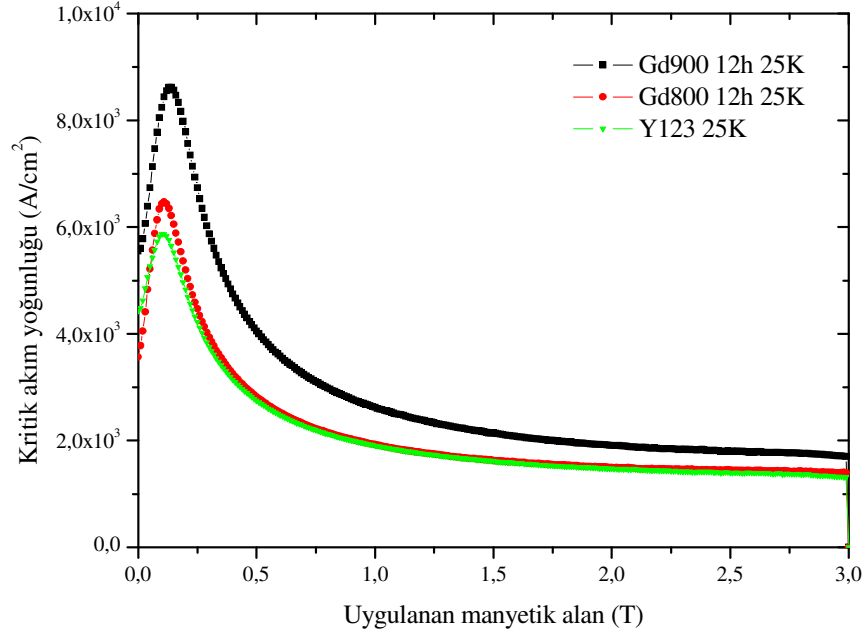
Şekil 3.48. Gd900 örneğinin 5, 25, 50, 77 K sıcaklıklarındaki J_c -H grafikleri



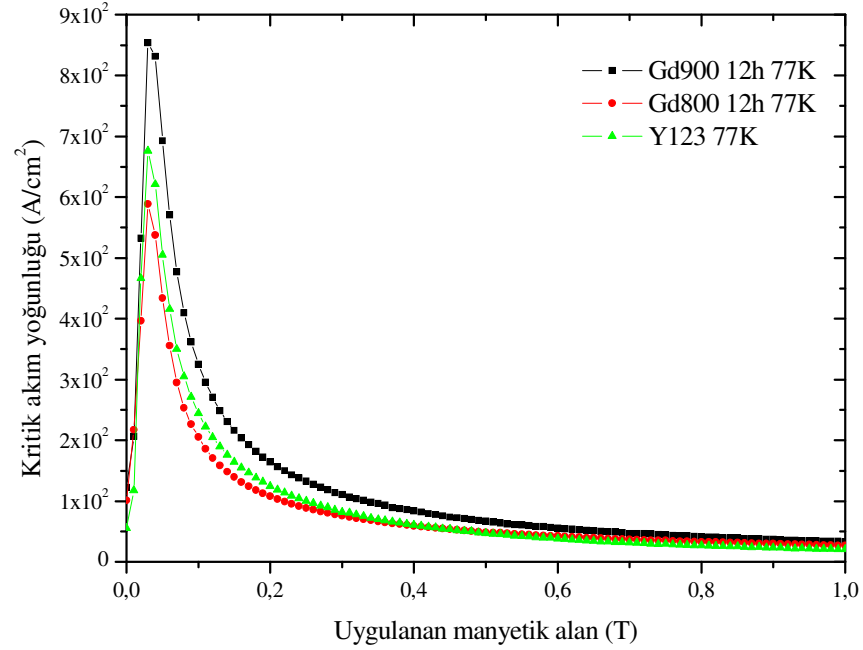
Şekil 3.49. Gd800 örneğinin 5, 25, 50, 77 K sıcaklıklarındaki J_c -H grafikleri



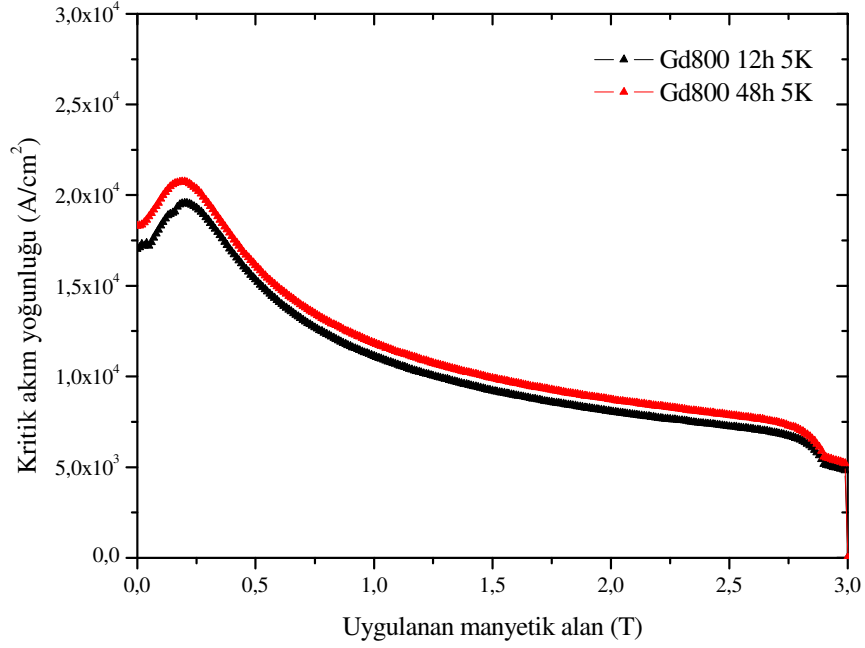
Şekil 3.50. Gd900, Gd800 ve Y123 örneklerinin 5 K sıcaklığındaki kritik akım yoğunluğunun (J_c) manyetik alana göre değişimi



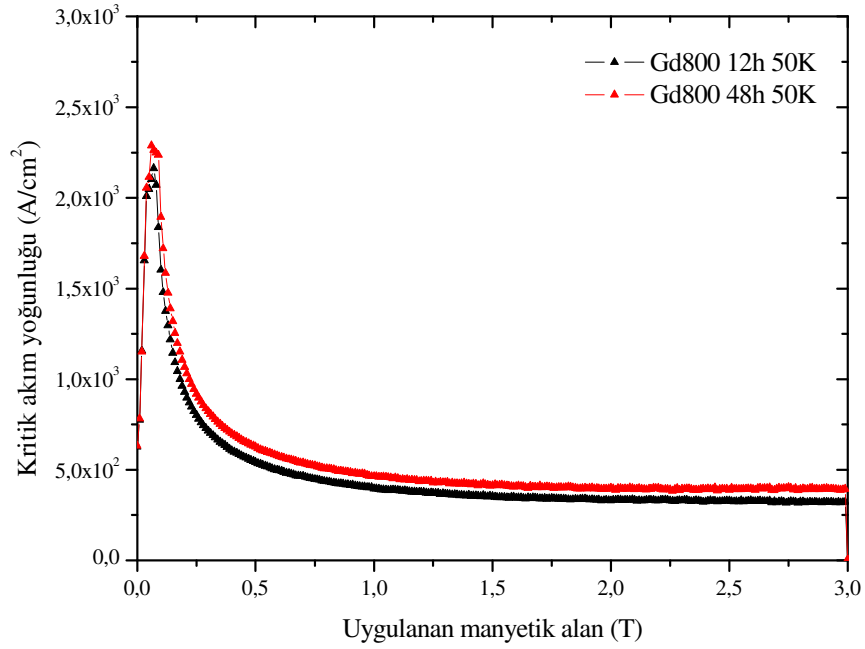
Şekil 3.51. Gd900, Gd800 ve Y123 örneklerinin 25 K sıcaklığındaki kritik akım yoğunluğunun (J_c) manyetik alana göre değişimi



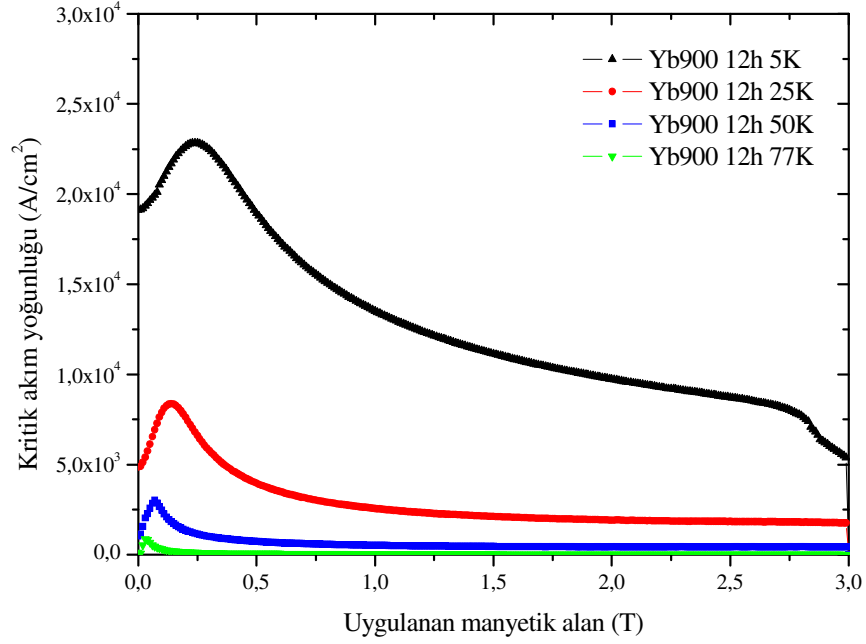
Şekil 3.52. Gd900, Gd800 ve Y123 örneklerinin 77 K sıcaklığındaki kritik akım yoğunluğunun (J_c) manyetik alana göre değişimi



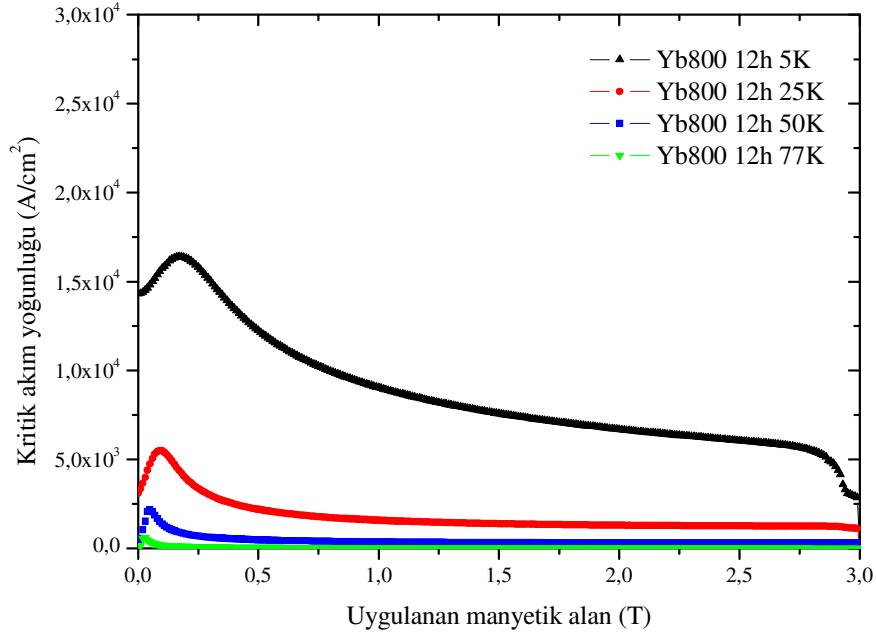
Şekil 3.53. 800 °C'de 12 ve 48 saat gadolinyum difüzyonu yapılan Y123 örneklerinin 5 K sıcaklığındaki J_c -H grafikleri



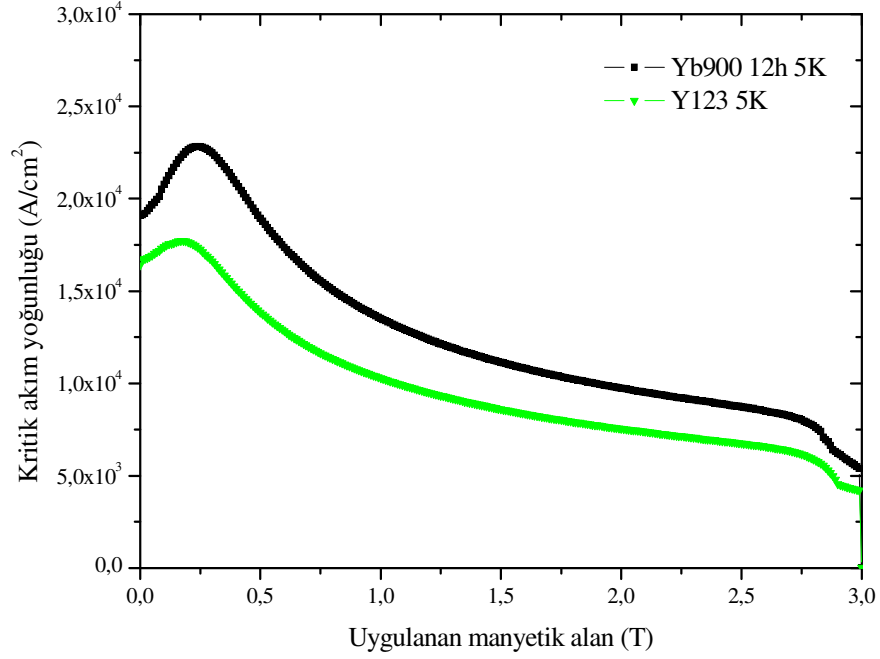
Şekil 3.54. 800 °C'de 12 ve 48 saat gadolinyum difüzyonu yapılan Y123 örneklerinin 50 K sıcaklığındaki J_c -H grafikleri



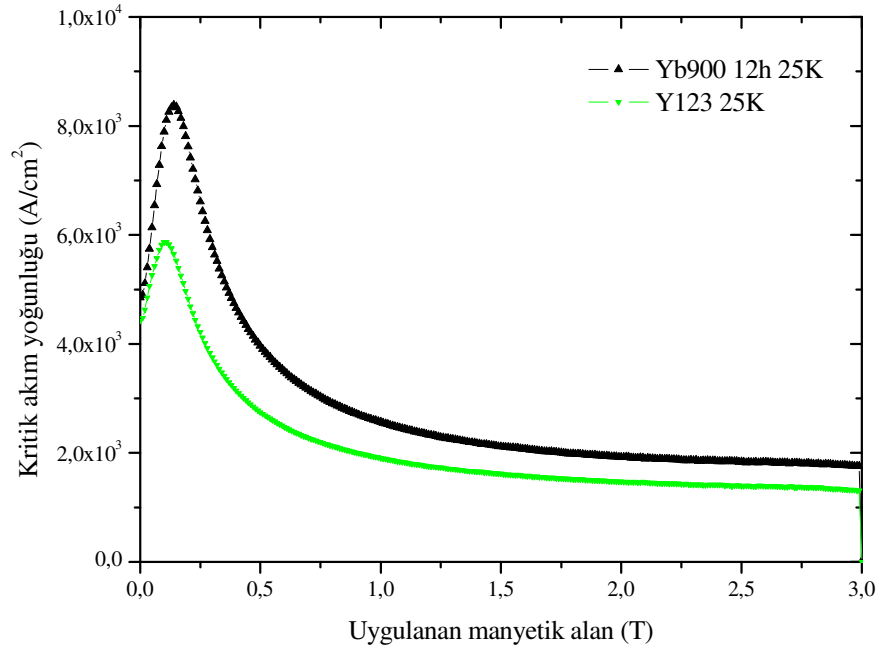
Şekil 3.55. Yb900 örneğinin 5, 25, 50, 77 K sıcaklıklarındaki kritik akım yoğunluğunun (J_c) manyetik alana göre değişimi



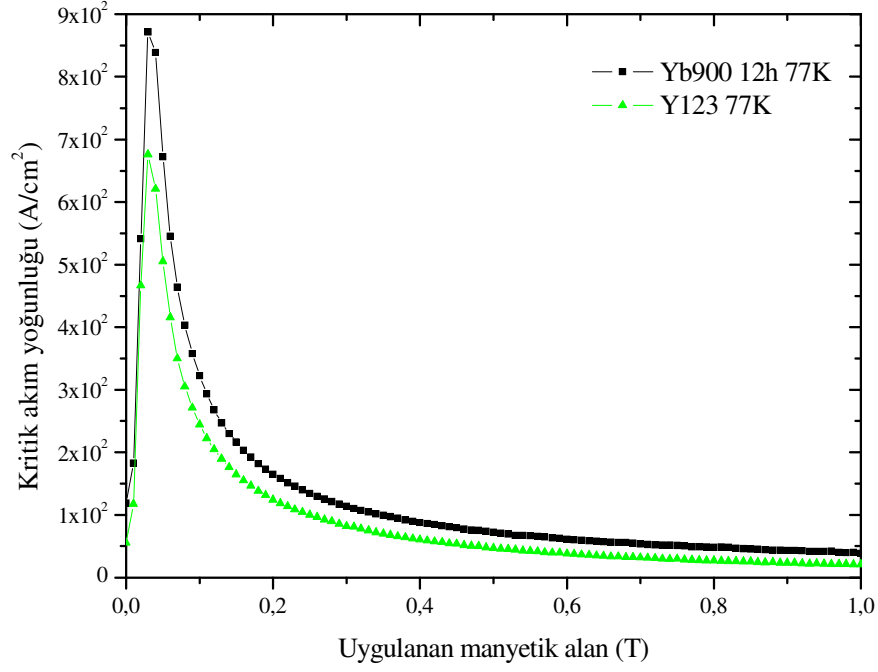
Şekil 3.56. Yb800 örneğinin 5, 25, 50, 77 K sıcaklıklarındaki kritik akım yoğunluğunun (J_c) manyetik alana göre değişimi



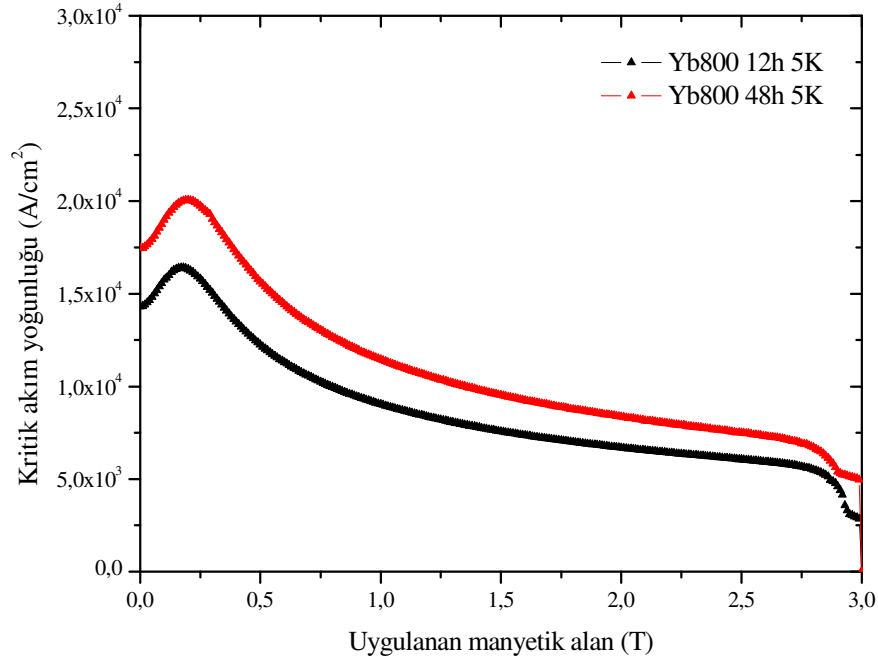
Şekil 3.57. Yb900 ve Y123 örneklerinin 5 K sıcaklığındaki kritik akım yoğunluğunun (J_c) manyetik alana göre değişimi



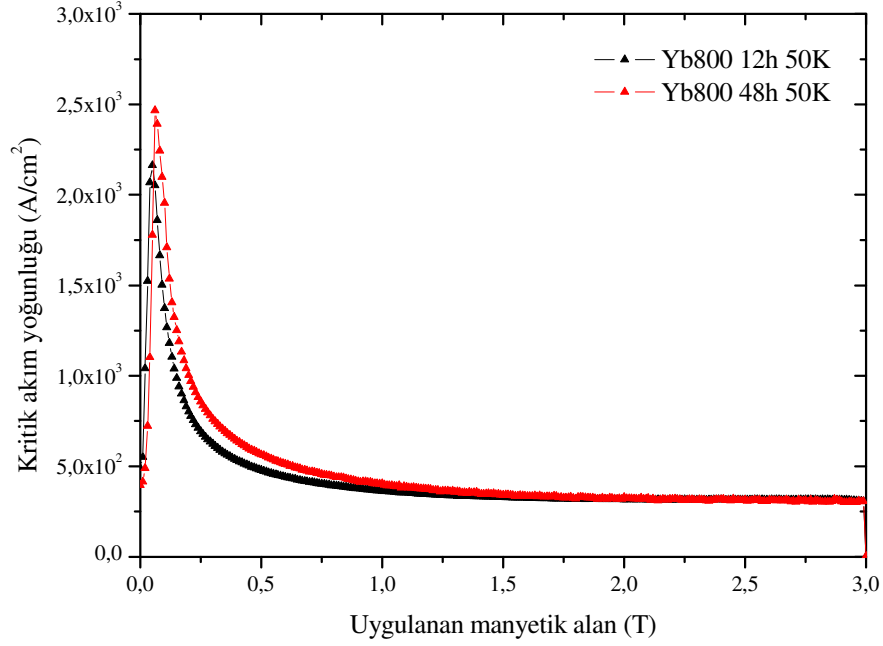
Şekil 3.58. Yb900 ve Y123 örneklerinin 25 K sıcaklığındaki kritik akım yoğunluğunun (J_c) manyetik alana göre değişimi



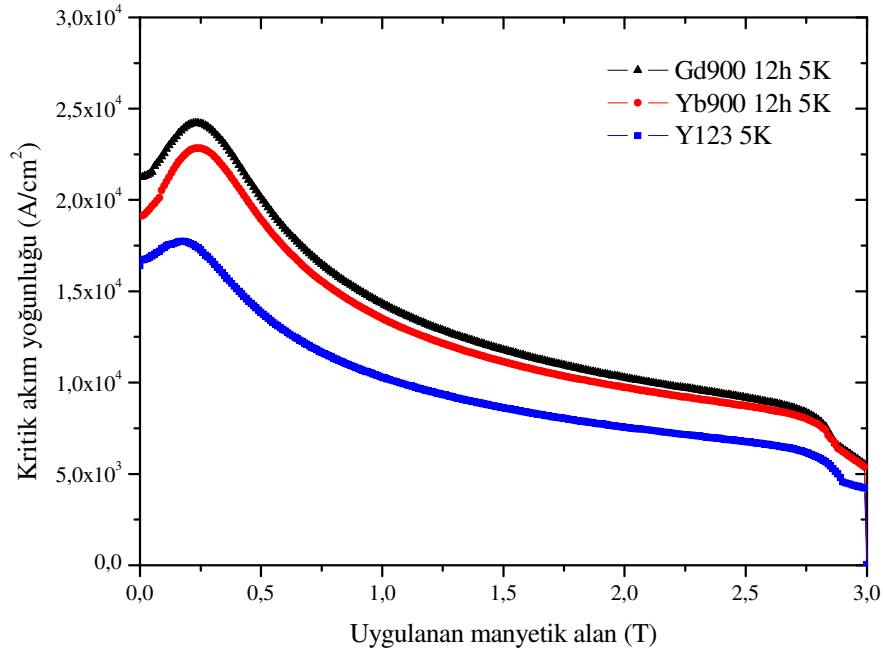
Şekil 3.59. Yb900 ve Y123 örneklerinin 77 K sıcaklığındaki kritik akım yoğunluğunun (J_c) manyetik alana göre değişimi



Şekil 3.60. 800 °C'de 12 ve 48 saat iterbiyum difüzyonu yapılan Y123 örneklerinin 5 K sıcaklığındaki J_c -H grafikleri



Şekil 3.61. 800 °C'de 12 ve 48 saat iterbiyum difüzyonu yapılan Y123 örneklerinin 50 K sıcaklığındaki J_c -H grafikleri



Şekil 3.62. Gd900, Yb900 ve Y123 örneklerinin 5 K sıcaklığındaki kritik akım yoğunluğunun (J_c) manyetik alana göre değişimi

4. SONUÇLAR

Bu çalışmada, katıhal tepkime yöntemiyle hazırlanmış $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ (Y123) örneklerine Gd ve Yb'un 800, 850 ve 900 °C sıcaklıklarında yapılan difüzyonu EDXRF yöntemiyle araştırıldı. Y123 süperiletkeninde Gd ve Yb'un difüzyon katsayısı (D) ve difüzyon katkı atomu aktivasyon enerjisi (E_a) değerleri hesaplandı. Difüzyon sıcaklığı ve süresinin; Y123 süperiletkeninin yapısal, elektriksel ve manyetik özelliklerinde meydana getirdiği değişimler incelendi. Araştırmada, Y123 külçe örneği üzerine Gd ve Yb difüzyonu uygulandıktan sonra difüzyon edilmiş örneklerin yapısal özellikleri X-ışını kırınım analizi, taramalı elektron mikroskobu ve optik mikroskop ölçümleriyle; elektriksel ve manyetik özellikleri de PPMS sistemi kullanılarak R-T ve M-H ölçümleri ile incelendi. Farklı sıcaklıklarda termal difüzyon yapılan Y123 örneklerinin direnç ölçümlerinden yararlanarak değişik manyetik alanlardaki aktivasyon enerjisi (U) ve üst kritik manyetik alan (H_{c2}) değerleri; manyetizasyon ölçümlerinden ise kritik akım yoğunluğu (J_c) değerleri hesaplandı.

Yapılan çalışmada ortaya çıkan sonuçlar aşağıdaki gibi sıralanabilir:

1-) Gd ve Yb'un Y123 örneklerine yapılan difüzyon çalışmalarında en uygun difüzyon tavlama sıcaklığının 900 °C olduğu; 600 ve 700 °C gibi düşük sıcaklıklarda difüzyonun düşük oranda gerçekleştiği, 900 °C ve üzeri difüzyon sıcaklıklarında ise Y123 süperiletkeninde kısmi erimelerin ve ikincil fazların ortaya çıktığı görüldü.

2-) 900 °C'de Gd ve Yb difüzyonu yapılan Y123 örneklerinin SEM ve optik fotoğraflarının incelenmesinde, difüzyon yapılan örneklerin temiz örneğe göre boşluk oranının azaldığı, kristalleşme oranının arttığı ve dolayısıyla külçe özelliklerin iyileştiği tespit edildi.

3-) Gadolinyum ve iterbiyum'un Y123 örneğine farklı sıcaklıklarda yapılan difüzyonu neticesinde elde edilen konsantrasyon dağılımı eğrilerinden, Gd ve Yb'un tane içine yavaş difüzyon katsayısı D_1 ve taneler arası yüzeylere hızlı difüzyon katsayısı D_2 gibi iki farklı difüzyon katsayısıyla ifade edilebileceği bulundu. Bu difüzyon katsayılarının 800-900 °C aralığındaki sıcaklık bağımlılıkları Gd ve Yb katkı atomları için sırasıyla; $D_1=8,9 \times 10^{-6} \exp[-(1,25 \pm 0,10)/kT]$, $D_2=2,3 \times 10^{-5} \exp[-(1,09 \pm 0,10)/kT]$ ve $D_1=4,8 \times 10^{-6} \exp[-(1,15 \pm 0,10)/kT]$, $D_2=2,2 \times 10^{-5} \exp[-(1,05 \pm 0,10)/kT]$ olarak belirlendi. Difüzyon katkı

atomlarının örnek derinliğine bağlı değişim eğrilerinde, yüzeye yakın bölgedeki katkı atomlarının yavaş difüzyonu (D_1), katkı atomunun tane içine taşınmasıyla açıklanabilir. Örneğin iç bölgelerinde Y123 süperiletkenine katkı atomlarının hızlı difüzyonu (D_2) ise, safsızlık atomlarının, tane sınırlarına; ikizlenme sınırlarına; gözeneklere ve diğer kusurlara olan taşınmayla ilgili olabilir.

4-) Aynı sıcaklıklarda difüzyon tavlama yapılan örneklerde Yb difüzyon katsayısının Gd difüzyon katsayısından büyük, aktivasyon enerjisi değerlerinin ise küçük olması, aynı periyotta bulunan Yb iyonik yarıçapının ($0,868 \text{ \AA}$) Gd iyonik yarıçapından ($0,938 \text{ \AA}$) küçük olmasıyla açıklanabilir.

5-) X-ışınımı kırınımı desenlerinin incelenmesi sonucunda $900 \text{ }^\circ\text{C}$ 'de Gd difüzyonu yapılmış Y123 örneğinin c örgü sabitinin, difüzyon yapılmamış örneğe göre % 0,23 oranında arttığı ve difüzyon yapılmış yüzeyden derinlere inildikçe c örgü sabitinin azaldığı saptandı. Bu durum Gd'un bir kısmının yüksek difüzyon sıcaklığında örgü içerisine, kalan kısmının ise Y123 örneğinin daha iç kısımlarında taneler arasına yerleştiğini gösterir.

6-) Difüzyon yapılmış örneklerin R-T grafiklerinden, difüzyon tavlama sıcaklığının artışıyla daha keskin geçişin olduğu ve en keskin geçişin $900 \text{ }^\circ\text{C}$ 'de 12 saat Gd ve Yb difüzyonu yapılan örneklerde olduğu görüldü (Y123 ve Gd900 örnekleri için $T_{c \text{ sıfır}}$ değerleri sırasıyla 88 ve 91K dir). Bu gelişmeye yüksek sıcaklıktaki Gd difüzyonuyla Y123 örneği içerisindeki porozitenin ve kirlilik fazının azalmasının sebep olduğu düşünülmektedir. Ayrıca 800°C 'de 12, 24 ve 48 saat Gd difüzyonu yapılmış Y123 örnekleri direnç değerlerinin sıcaklığa göre değişimleri incelendiğinde, difüzyon süresi 24 ve 48 saat olan örneklerin kritik geçiş sıcaklığı değerlerinin, 12 saat'lik örneğe göre daha keskin olduğu tespit edildi

7-) Hesaplanmış aktivasyon enerjisi değerlerinden, artan difüzyon sıcaklığıyla örneklerin aktivasyon enerjilerinin de arttığı ve manyetik alanın artışıyla aktivasyon enerjilerinin üstel olarak azaldığı görüldü (0 T manyetik alanda Gd900 ve Y123 örnekleri için sırasıyla 1,99 ve 0,34 eV). Ayrıca 900 ve $800 \text{ }^\circ\text{C}$ de Gd difüzyonu yapılan örneklerin aktivasyon enerjilerinin aynı sıcaklıklarda Yb difüzyonu yapılan Y123 ve temiz Y123 örneklerinin aktivasyon enerji değerlerinden büyük olduğu belirlendi. Bu duruma farklı sıcaklıklardaki katkı atomu difüzyonuyla Y123 örneği içerisinde artan normal bölgelerin, akı çivileme merkezleri gibi çalışmasının sebep olduğu düşünülmektedir.

8-) Gd900, Gd800, Yb900, Yb800 ve Y123 örneklerine ait $H_{c2}(0)$ değerleri sırasıyla $112,825 \pm 13,080$; $94,042 \pm 11,039$; $108,706 \pm 9,606$, $84,102 \pm 6,005$ ve $77,036 \pm 4,671 \text{ T}$ olarak

belirlendi. Yb difüzyonu için hesaplanan $H_{c2}(0)$ değerlerinin, Gd difüzyonu yapılan örneklerin $H_{c2}(0)$ değerlerinden daha küçük olduğu görüldü.

9-) 900 ve 800 °C gibi yüksek sıcaklıklarda 12 saat Gd ve Yb difüzyonu yapılmış Y123 örneklerinin M-H eğrileri incelendiğinde her örneğin ölçüm sıcaklığı azaldıkça manyetizasyon eğri genişliğinin arttığı görülmüştür. Bu durum, örnek içerisinde süperiletken taneler arasındaki temasın dereceli olarak iyileştiğini gösterir. Buna ilave olarak, literatürde manyetizasyon ilmek genişliği ile malzeme içerisindeki akı çivileme merkezi sayısının orantılı olduğu birçok çalışmanın rapor edilmesi, difüzyonla örnek içerisinde akı çivileme merkezi sayısının artabileceğine işaret eder. Ayrıca manyetizasyon ölçümlerinden, difüzyon tavlama sıcaklığı arttıkça M-H ilmeklerinin genişliğinin arttığı ve dolayısıyla örneklerin manyetizasyon özelliklerinin iyileştiği tespit edildi.

10-) Farklı sıcaklıklarda Gd ve Yb difüzyonu yapılan Y123 örneklerinin 5 K de hesaplanan J_c değerleri (0 T manyetik alandaki); Gd900, Gd800, Y123, Yb900 ve Yb800 örnekleri için sırasıyla $2,12 \times 10^4$; $1,70 \times 10^4$; $1,64 \times 10^4$; $1,91 \times 10^4$ ve $1,43 \times 10^4$ A/cm² olarak belirlendi. Tüm örneklerde ölçüm sıcaklığı arttıkça kritik akım yoğunluğunda azalma meydana geldiği görüldü. 77 K sıcaklığında hesaplanan J_c değerleri Gd900, Gd800 ve Y123 örnekleri için sırasıyla 122, 101 ve 55 A/cm² olarak bulundu.

11-) 900 °C'de Gd difüzyonu yapılan örneğinin diğer örneklerle karşılaştırıldığında maksimum kritik akım yoğunluğuna sahip olduğu görüldü. Bu durum artan difüzyon sıcaklığıyla malzeme içerisinde daha fazla çivileme merkezleri oluştuğuna işaret eder.

12-) Gd900, Yb900 ve Y123 örneklerinin 5 K sıcaklığındaki kritik akım yoğunluğunun (J_c) manyetik alana göre değişimi incelendiğinde, 900 °C'de gadolinyum ve iterbiyum difüzyonu yapılan örneklerin J_c değerlerinin, difüzyon yapılmamış Y123 örneğinin J_c değerinden daha büyük olduğu belirlendi. Bu durum gadolinyum ve iterbiyum'un Y123 örneğinin tavlama sıcaklığına yakın sıcaklıklardaki difüzyonunun, Y123 örneğinin süperiletkenlik özelliklerini iyileştirdiğini gösterir.

Sonuç olarak, Y123 örneğindeki difüzyon katkı atomları konsantrasyonunun derinliğe bağlı değişim grafiklerinden, yüksek sıcaklıkta Gd ve Yb'un bir kısmının ana örgüye, kalan kısmının da boşluklu yapıya dağıldığı belirlendi. Bunun sonucu olarak süperiletken taneler arası temasın arttığı, dolayısıyla Y123 örneğinin yapısal ve süperiletkenlik özelliklerinin iyileştiği söylenebilir.

5. ÖNERİLER

Yapılan çalışmada difüzyon yapılacak tüm Y123 örnekleri belli basınçta preslendi ve sabit sinterleme sıcaklığında üretildi. Bundan sonra yapılacak çalışmalarda değişik basınçta ve sinterleme sıcaklığında Y123 örnekleri üretilerek saf Y123 örneklerinin yoğunlukları değiştirilebilir. Böylece gadolinyum ve iterbiyum difüzyon parametrelerinin örnek yoğunluğuna ve dolayısıyla boşluk oranına göre değişimi incelenebilir.

Farklı yoğunlukta hazırlanacak Y123 örneklerine, belli difüzyon sıcaklığı ve süresinde yapılacak Gd ve Yb atomları difüzyon girme derinliği de değişecektir. Gd ve Yb difüzyon girme derinliğinin, difüzyon yapılmış Y123 süperiletkeninin yapısal, elektriksel ve manyetik özelliklerini hangi oranda değiştirdiği araştırılabilir.

Bu çalışmada 900 °C'de 12 saat Gd ve Yb difüzyonu yapılan Y123 örneklerinin yapısal ve süperiletkenlik özelliklerinde, temiz Y123 örneğine göre iyileşme olduğu görüldü. Yapılacak çalışmada, 900 °C'deki difüzyon tavlama sıcaklığı sabit tutularak, difüzyon süresi arttırılabilir (48 ve 96 saat gibi) ve böylece yüksek sıcaklıklardaki difüzyon süresinin Y123 örneğinin yapısal ve süperiletkenlik özelliklerine etkisi araştırılabilir.

Yapılan çalışmadaki difüzyon işleminde tüm örnekler yavaş soğutma uygulanmıştır. İleriki çalışmalarda Gd ve Yb difüzyonu yapılacak örnekler hızlı soğutma (1000 °C/dak) uygulanarak, hızlı soğutmanın Y123 örneğinin difüzyon parametreleri, yapısal ve fiziksel özelliklerine etkisi incelenebilir.

Bu çalışmada bulk Y123 örnekleri üretildi ve bunlara farklı sıcaklık ve sürelerde Gd ve Yb difüzyonu yapıldı. Difüzyon ve süperiletkenlik mekanizmasının anlaşılması açısından yararlı sonuçlar gösteren bu katkı elementleri, Y123 ve BiPbSrCaCuO (Bi-2223) ince film örneklerine difüzyon yöntemiyle katılarak, bu örneklerin süperiletkenlik parametrelerindeki değişimleri araştırılabilir.

6. KAYNAKLAR

- Abdullaev, G.B. ve Dzhafarov, T.D., 1987. Atomic Diffusion in Semiconductor Structures, Harwood Academic Publishers, New York
- Ateş, A., Yanmaz, E. ve Çelebi, s., 1998. Thermally Activated Flux Dissipation in Ag-Added $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ (123) Prepared by Flame-Quench-Melt-Growth (FQMG) Method, Journal of Alloys and Compounds, 268, 215-220
- Athur, S.P., Putman, P., Balachandran, U. ve Salama, K., 1998. Phase Formation and Melt Processing of Yb-123, Journal of Superconductivity, Vol. 11, No. 5
- Bacaksız, E., Dzhafarov, T.D., Novruzov, V.D., Öztürk, K., Tomakin, M., Küçükömeroğlu, T., Altunbaş, M., Yanmaz, E. ve Abay, B., 2004. Copper Diffusion in ZnS Thin Films, Phys. Stat. Sol. (a), 201, 2948-2952
- Bardeen, J., Cooper, L.N. ve Schrieffer, J.R., 1957, Theory of Superconductivity, Physical Review, 108, 5, 1175-1204
- Bean, C.P., 1964. Magnetization of High-Field Superconductors, Review of Modern Physics, 36, 31-38
- Bednorz, J.G. ve Müller, K.A., 1986, Possible High-Tc Superconductivity in the Ba-La-Cu-O System, Z. Phys., 64, 189-193
- Berenov, A., Farvacque, C., Q, X., MacManus-Driscoll, J.L., MacPhail, D. ve Foltyn S., 2002. Ca Doping Grain Boundaries, Physica C, 372-376, 1059-1062
- Berenov, A.V., Foltyn, S.R., Schneider, C.W., Warburton, P.A. ve MacManus-Driscoll, J.L., 2003, Determination of Ca Diffusion in YBCO Films by Secondary Ion Mass Spectroscopy, Solids State Ionics, 164, 149-158
- Biju, A., Aloysius, R.P. ve Syamaprasad, U., 2005. Enhanced Critical Current Density in Gd-Added (Bi, Pb)- 2212 Bulk Superconductor, Supercond. Sci. Technol., 18, 1454-1459
- Campbell, A.M. ve Evetts, J.E., 1972. Flux Vortices and Transport Currents in Typ II Superconductors, Advances in Physics, 21, 90, 199-428
- Cava, R.J., Battlog, B., van Dover, R.B., Murphy, D.W., Sunshine, S., Siegrist, T., Remeika, J.P., Reitman, E.A., Zahurak, S. ve Espinosa, G.P., 1987. Bulk Superconductivity at 91 K in Single-Phase Oxygen-Deficient Perovskite $\text{Ba}_2\text{YCu}_3\text{O}_{9-\delta}$, Physical Review Letters, 58, 1676

- Chen, Q., Fang, M., Jiao, Z., Zhang, Q., Wen, H. ve Zhao, Z., 1997. Flux Pinning in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ Through Nanometer-Sized MgO Particles, Physica C, 282-287, 2097-2098
- Cheng, C.H. ve Zhao, Y., 2003. Enhancement of J_c by Doping Silver in Grain Boundaries of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ Polycrystals with Solid-State Diffusion Method, Journal of Applied Physics, V 93, N4, 2292-2295
- Cheng, C.H., Zhu, X.T. ve Zhao, Y., 2003. Chemical Preferential Doping in Grain Boundaries of Melt Textured $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ Superconductors, Supercond. Sci. Technol., 16, 130-136
- Choi, J.S., Sarıkaya, M., Aksay, I.A. ve Kikuchi, R., 1990. Theory of Oxygen Diffusion in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ Superconducting Compound, Physical Review B, 42, 4244-4254
- Cieplak, M.Z., Xiao, G., Chien, C.L., Bakhshai, A., Artymowicz, D., Bryden, W., Stalick, J.K. ve Rhyne, J.J., 1990. Incorporation of Gold into $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$: Structure and T_c Enhancement, Physical Review B, 42, 10, 6200-6208
- Conder, K., 2001. Oxygen Diffusion in the Superconductors of the YBaCuO Family: Isotope Exchange and Engineering, R32, 41-102
- Cyrot, M. ve Pavuna, D., 1992. Introduction to Superconductivity and High-Tc Materials, World Scientific, Singapore
- Çelebi, S., Öztürk, A., Yanmaz, E. ve Kopya, A.İ., 2000. Determination of the Material Parameters of a Melt-Textured YBCO Superconductor by DC Magnetization Analysis, J. Alloy and Compounds, 298, 285-290
- Çelik, Ş., 2006. $(\text{Y}_{1-x}\text{Yb}_{x/2}\text{Gd}_{x/2})\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ve $(\text{Yb}_{1-x}\text{Gd}_x)\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ Süperiletkenlerinin Yapısal ve Fiziksel Özelliklerinin İncelenmesi, Doktora Tezi, K.T.Ü. Fen-Bilimleri Enstitüsü, Trabzon
- Çevik, U., 1998. Demir ve Kobalt Difüzyonunun $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ Süperiletkeninin Yapısal ve Süperiletken Özellikleri Üzerine Etkisi, Doktora Tezi, KTÜ Fen Bilimleri Enstitüsü, Trabzon
- Delamare, M.P., Walter, H., Bringmann, B., Leenders, A. ve Freyhardt, H.C., 2000. Characterization of Natural and Artificial Low-Angle Boundaries in YBCO TSMG Samples, Physica C, 329, 160-177
- Dew-Hughes, D., 1989. Ceramic Superconductors- Development and Prospects, Ceramics, 741-745
- Doss, J.D., 1989, Engineer's Guide to High-Temperature Superconductivity, John Wiley & Sons
- Duzer, T.D. ve Turner, C.W., 1999. Principles of Superconductive Devices and Circuits, Prentice Hall PTR Ltd., New Jersey

- Dzhafarov, T.D., 1996, Diffusion in High-Temperature Superconductors, Physics Status Solid A, 158, 335-357
- Dzhafarov, T.D., Altunbaş, M., Varilci, A., Çevik, U. ve Kopya, A.I., 1996, The Effect of Fe Diffusion on Structural and Superconducting Properties of YBaCuO, Materials Letters, 6, 305-311
- Felner, I. ve Brosh, B., 1991. Effects of Fe and Zn Substitution upon Superconductivity in YBa₂Cu₄O₈, Physical Review B, 43, 10364-10367
- Feng, Y., Zhou, L., Wen, J.G., Koshizuka, N., Sulpice, A., Tholence, J.L., Vallier, J.C. ve Monceau, P., 1998. Fishtail Effect, Magnetic Properties and Critical Current Density of Gd-Added PMP YBCO, Physica C, 297, 75-84
- Fujimoto, H., 2000. Technical Issues of a High-T_c Superconducting Bulk Magnet, Supercond. Sci. Technol. 13, 827-829
- Fujimoto, H., Murakami, M., Gotoh, S., Yamaguchi, K., Yoshida, M., Takata, T., Koshizuka, N. ve Tanaka, S., 1992. Critical Current and Magnetization Properties of YBCO Prepared by MPMG Process, Supercond. Sci. Technol., 5, 93-96
- Georgiopoulos, E. ve Tsetsekou, A., 2000. Development of YBCO Coatings by Atmospheric Plasma Spraying, J. European Ceramic Society, 20, 2779-2787
- Ginsberg, D.M., 1994. Physical Properties of High Temperature Superconductors, IV. World Scientific, Singapore
- Ginzburg, V.L. ve Kirznits, D.A., 1982. High Temperature Superconductivity, Consultants Bureau, New York and London
- Glicksman, M.E., 2000. Diffusion in Solids: Field Theory, Solid State Principles and Applications, J. Wiley Co., New York
- Görür, O., Küçükömeroğlu, T., Terzioğlu, C., Varilci, A. ve Altunbaş, M., 2005, The Effect of Ag Diffusion on Properties of YBa₂Cu₃O_{7-x} Thin Films Produced by Electron Beam Deposition Techniques, Physica C, 418, 35-42
- Hagen, C.V. ve Griessen, R., 1989. Distribution of Activation Energies for Thermally Activated Flux Motion in High-T_c Superconductors: An Inversion Schema, Phys. Rev. Lett., 62, 2857
- Hook, J.R. ve Hall, H.E., 1991. Solid State Physics, John Wiley & Sons Ltd., England
- Hu, A., Sakai, N. ve Murakami, M., 2003. Large Grain Growth and Superconducting Properties of GdBa₂Cu₃O_{7-δ} Fabricated in Air with BaCuO_{2-x} Addition, Physica C, 386, 275-278
- Huang, Z.J., Meng, R.L., Qiu, X.D., Sun, Y.Y., Kulik, J., Xue, Y.Y. ve Chu, C.W., 1993. Superconductivity, Structure and Resistivity in HgBaCaCuO, Physica C, 217, 1-5

- Hull, J.R., 2000. Superconducting Bearing, Supercond. Sci. Technol. 13, R1-R15
- Ichino, Y., Honda, R., Sudoh, K., Yoshida, Y., Matsumoto, K., Kita, R. ve Takai, Y., 2003. The Advantages of $\text{YbBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ Thin Films for Superconducting Wire Application, Physica C, 392-396, 1250-1255
- Inoue, A., Kai, M., Hoshi, S., Izumi, T., Shiohara, Y. ve Murata, K., 2003. RE123 LPE Films on BaZrO_3 Buffered MgO Substrate for PCS Material, Physica C, 392-396, 965-969
- Islam, M.S. ve Baetzold, R.C., 1989. Atomistic Simulation of Dopant Substitution $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$, Physical Review B, 40, 10926-10935
- Jenkins, R., 1988. X-Ray Fluorescence Spectrometry, John Wiley & Sons Inc., New York
- Jin, S., Tiefel, T.H., Sherwood, R.C., van Dover, R.B., Davis, M.E., Kammlott, G.W. ve Fastnacht, R.A., 1988. Melt-Textured Growth of Polycrystalline $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ with High Transport J_c at 77 K, Physical Review B, 37,13, 7850-7853
- Karaca, İ., 2001. Yüksek Sıcaklık Süperiletkenlerin Üretimi ve Katkı Maddelerinin Fiziksel Özellikler Üzerine Etkisi, Doktora Tezi, K.T.Ü. Fen Bilimleri Enstitüsü, Trabzon
- Kawakami, T., Harada, T. ve Yoshida, K., 2003. Effect of Pr-Doping on the Pnning Properties in $\text{YbBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, Physica C, 391, 8-16
- Kita, R. ve Yokoyama, K., 2003. Substitution Effect of RE Elements of (Yb,RE) $\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$, Physica C, 392-396, 488-492
- Koblischka-Veneva, A., Koblischka, M.R., Mücklich, F., Ogasawara, K. ve Murakami, M., 2005. Interaction of Y_2BaCuO_5 Particles and the YBCO Matrix within Melt-Textured YBCO Samples Studied by Means of Electron Backscatter Diffraction, Supercon. Sci. Technol., 18, 158-163
- Koshizuka, N., Pradhan, A.K., Shibata, S., Feng, Y., Machi, T. ve Nakao, K., 2001. Magnetic and Magneto-Transport Properties of NdBaCuO Single Crystal with Varying Nd/Ba Substitution and Oxygen Content, Physica C, 364-365, 320-325
- LaGraff, J.R., Han, P.D. ve Payne D.A., 1991. Resistance Measurements and Oxygen Out-Diffusion Near the Orthorhombic-Tetragonal Phase Transformation in Single-Crystal $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$, Physical Review B, 49, 6382-6384
- Li, S., 1998. Magnetic and Magnetotransport Properties of Polycrystalline YBCO, Doktora tezi, Purdue University
- Li, Y., Chen, N. ve Zhaou, Z.X., 1994. Stress-Field Pinning Induced by Lattice Mismatch in Y-123 Superconductors, Physica C, 224, 391-395

- Maeda, H., Tanaka, Y., Fukutumi, M. ve Asano, T., 1988, New High-Tc Oxide Superconductor without a Rare Earth Element, Jpn. J. Appl. Phys., 27, 209-210
- Manuel, P., Aguillonb, C. ve Senoussi, S., 1991. Exponential Decay of Current in Y-Ba-Cu-O Relationship with the Pinnin Potential Profile and Physical Origin, Physica C, 177, 281
- Meissner, W.H. ve Ochsenfeld, R., 1933, Upper Critical Field of High Tc Superconducting Y-Ba-Cu-O, Natura, 132, 931-935
- Mendoza, E., Puig, T., Varesi, E., Carrillo, A.E., Plain, J. ve Obradors, X., 2000. Critical Current Enhancement in YBCO-Ag Melt-Textured Composites: Influence of Microcrack Density, Physica C, 334, 7-14
- Miyachi, K., Sudoh, K., Ichino, Y., Yoshida, Y. ve Takai, Y., 2003, The Effect of the Substitution of Gd for Ba site $Gd_{1+x}Ba_{2-x}Cu_3O_{6+\delta}$, Physica C, 392-396, 1261-1264
- Mochida, T., Sakai, N., Yoo, S. ve Murakami, M., 2002. Pinning Properties in Melt-Processed $YbBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ with Finely Dispersed Yb_2BaCuO_5 Inclusion, Physica C, 366, 229-237
- Mukhopadhyay, S.M., Mahadev, N. ve Sengupta, S., 2000. Microstructural and Spectroscopic Analyses of a Strongly-Linked Joint Formed in a Superconductor, Physica C, 329, 95-101
- Murakami, M., 1992. Processing of Bulk YBaCuO, Superconductor Science and Technology, 5, 185-203
- Murakami, M., Sakai, N., Higuchi, T. ve Yoo, S.I., 1996, Melt-Processed Light Rare Earth Element-Ba-Cu-O, Supercon. Sci. Technol., 9, 1015-1032
- Müller, P. ve Ustinov, A.V., 1997. The Physics of Superconductors, Springer, Germany
- Nariki, S., Sakai, N., Inou, K. ve Murakami, M., 2003. Effect of Ag Addition on Cold-Seeded Melt-Growth of Gd-Ba-Cu-O Superconductor Using Nd123 Seed Crystal, Physica C, 392-396, 468-472
- Narlikar, A., 2000. Studies of High Temperatur Superconductors, Nova Science Publishers, Inc., Commack, New York
- Nishida, A., Taka, C. ve Shigeta, I., 2003. Effect of Y Substitution on the Temperature and Field Dependence of Magnetic Hysteresis in $Y_xGd_{1-x}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$, Physica C, 392-396, 349-350
- Nishida, A., Teshima, S. ve Taka, C., 2002, Magnetic Properties of Y-Substituted $Y_xGd_{1-x}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$, Physica C, 378-381, 349-353

- Ochsenkühn-Petropoulou, M., Argyropoulou, R., Tarantilis, P., Kokkinos, E., Ochsenkühn, K.M. ve Parissakis, G., 2002. Comparison of the Oxalate Co-Precipitation and the Solid State Reaction Methods for the Production of High Temperature Superconducting Powders and Coatings, J. Materials Processing Technology, 127, 122-128
- Onnes, H.K., 1911, Superconductivity and Magnetizm, Comm. Phys. Lab. Univ. Leiden, 119-120
- Palstra, T.T.M., Batlogg, B., van Dover, R.B., Schneemeyer, L.F. ve Waszczak J.V., 1990. Dissipative Flux Motion in High-Temperature Superconductors, Physical Review B, 41, 10, 6621-6632
- Pathak, L.C. ve Mishra, S.K., 2005. A Review on the Synthesis of Y-Ba-Cu-Oxide Powder, Supercond. Sci. Technol. 18, R67-R89
- Pathak, L.C., 2004. Fabrication and Sintering Characteristics of Doctor Blade YBCO-Ag Tapes, Ceramics International, 30, 417-427
- Poole, C.P., 2000. Handbook of Superconductivity, Academic Press, New York
- Prado, F., Caneiro, A. ve Serquis, A., 1998. High Temperature Thermodynamic Properties, Orthorhombic/Tetragonal Transition and Phase Stability of $GdBa_2Cu_3O_y$ and Related R123 Compounds, Physica C, 295, 235-246
- Rose-Innes, A.C. ve Rhoderick, E.H., 1980. Inroduction to Superconductivity, İkinci baskı, Pergamon Press Ltd., England
- Schilling, A., Cantoni, M., Guo, J.D. ve Ott, H.R., 1993. Superconductivity above 130 K in the Hg-Ba-Ca-Cu-O System, Natura, 363, 56-58
- Seeber, B., 1998. Handbook of Applied Superconductivity, 1.Cilt, Institute of Physics Publishing, Bristol, UK
- Shewmon, P.G., 1963. Diffusion in Solids, McGraw-Hill Publishers Co. New York
- Silsbee, F.B., 1916. A note on electrical conduction in metals at low temperatures, journal of Washington Academy of Science, 6, 597-602
- Soh, D. ve Fan, Z., 2000. Study on YbBaCuO Superconductor of Yb_2O_3 - $BaCO_3$ -CuO System, Physica C, 337, 292-296
- Specht, E.D., Sparks, C.J., Dhere, A.G., Brynestad, J., Cavin, O.B., Kroeger, D.M. ve Oye, H.A., 1988. Effect of Oxygen Pressure on the Orthorhombic-Tetragonal Transition in the High Temperature Superconductor $YBa_2Cu_3O_x$, Physical Review B, 37, 7426-7434
- Stalbov, S.V., Mironova, M.K. ve Salama, K., 1999. Microscopic Origin of the Grain Boundary Effect on the Critical Current in Superconducting Copper Oxides, Spurcond. Sci. Technol., 12, 1071-1074

- Taka, C., Teshima, S. ve Nishida, A., 2002. Effect of Y Substitution and Oxygen Deficiency on the Superconducting Transitions in the $Y_xGd_{1-x}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$, Physica C, 378-381, 344-348
- Thinkam, M., 1996, Introduction to Superconductivity, Second Ed., Mc Graw-Hill, New York, P118
- Wu, M.K., Ashbum, J.R., Tomg, C.J., Hor, P.H., Meng, R.L., Gao, L., Huang, Z.J., Wang Y.Q. ve Chu, C.W., 1987, Superconductivity at 93K in a New Mixed-Phase Y-Ba-Cu-O Compound System at Ambient Pressure, Phys. Rev. Lett., 58, 908-910
- Xu, Y., Seunega, M., Gao, Y., Crow, J.E. ve Spencer, N.D., 1990. Irreversibility Temperatures in c-Axis-Oriented Powders of $YBa_2Cu_3O_7$, $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$ and $Bi_2Sr_2Ca_2Cu_3O_{10}$, Physical Review B, 42, 13, 8756-8759
- Yamaguchi, I., Watanabe, T., Sohma, M., Tsuchiya, T., Mizuta, S., Manabe, T. ve Kumagai, T., 2003. Low Temperature Fabrication of Epitaxial Yb123 Films by Coating-Pyrolysis Process, Physica C, 392-396, 1281-1285
- Yanmaz, E., 1997. Melt Processed $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ Superconductors, Journal of Alloys and Compounds, 260, 242-249
- Yanmaz, E., Drake, A., Harris, I.R. ve Abell, J.S., 1993. Melt Processing of Powdered Arc-Cast $YBa_2Cu_3O_y$ Materials, Journal of Alloys and Compounds, 195, 23-26
- Yokoyama, K. ve Kita, R., 2004. Effect of RE (RE = La, Pr, Sm, Gd) Elements on Formation of (Yb, RE) $Ba_2Cu_3O_y$, Physica C, 412-414, 592-596
- Zhao, Y. ve Cheng, C.H., 2003. Grain Boundary Doping on Critical Current Density in $YBa_2Cu_3O_7$ Polycrystalline Materials, Physica C, 386, 286-291

ÖZGEÇMİŞ

1 Haziran 1967 yılında Trabzon'da doğdu. İlk, orta ve lise öğrenimini Trabzon'da tamamladı. 1995 yılında, Marmara Üniversitesi Atatürk Eğitim Fakültesi Fizik Öğretmenliği Bölümü'nde başladığı lisans eğitimi programından 1998 yılında birincilikle mezun oldu. 1999-2002 yılları arasında Karadeniz Teknik Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Fizik Anabilim Dalında " Kimyasal Püskürtme Yöntemiyle ZnS İnce Filmlerinin Üretimi ve Karakteristik Özellikleri'nin İncelenmesi" adlı yüksek lisans tezini tamamladı. Yurt dışı bilimsel dergilerde yayınlanmış bir, baskıda olan bir makalesi ve yurt içinde yayınlanmış birçok bildirisi vardır. Halen KTÜ Gümüşhane Mühendislik Fakültesinde Öğretim Görevlisi olarak çalışan Kemal Öztürk evli olup, İngilizce bilmektedir.