T.C. İNÖNÜ ÜNİVERSİTESİ FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

# SÜPERİLETKEN MgB2 KALIN FİLMLERİN HAZIRLANMASI, MİKROYAPISAL VE ELEKTRİKSEL ÖZELLİKLERİNİN BELİRLENMESİ

MURAT ÖZABACI

YÜKSEK LİSANS TEZİ FİZİK ANABİLİM DALI

> MALATYA OCAK 2008

Tezin Başlığı	: Süperiletken MgB <sub>2</sub> Kalın Filmlerin Hazırlanması, Mikroyapısal ve
	Elektriksel Özelliklerinin Belirlenmesi

Tezi Hazırlayan : Murat ÖZABACI

Sınav Tarihi : 07/01/2008

Yukarıda adı geçen tez jürimizce değerlendirilerek Fizik Anabilim Dalında Yüksek Lisans Tezi olarak kabul edilmiştir.

# Sınav Jürisi Üyeleri

Doç.Dr. H.İbrahim ADIGÜZEL	(Başkan)	İnönü Üniversitesi	
Prof.Dr. M.Eyyüphan YAKINCI	(Üye)	İnönü Üniversitesi	
Yrd.Doç.Dr. Hüseyin GENCER	(Üye)	İnönü Üniversitesi	

İnönü Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Onayı:

Prof.Dr. Ali ŞAHİN Enstitü Müdürü

#### Onur Sözü

Yüksek Lisans Tezi olarak sunduğum "Süperiletken MgB<sub>2</sub> Kalın Filmlerin Hazırlanması, Mikroyapısal ve Elektriksel Özelliklerinin Belirlenmesi" başlıklı bu çalışmanın bilimsel ahlak ve geleneklere aykırı düşecek bir yardıma başvurmaksızın tarafımdan yazıldığına ve yararlandığım bütün kaynakların, hem metin içinde hem de kaynakçada yöntemine uygun biçimde gösterilenlerden oluştuğunu belirtir, bunu onurumla doğrularım.

\_\_\_\_\_

#### ÖZET

Yüksek Lisans Tezi

#### SÜPERİLETKEN MgB<sub>2</sub> KALIN FİLMLERİN HAZIRLANMASI, MİKROYAPISAL VE ELEKTRİKSEL ÖZELLİKLERİNİN BELİRLENMESİ

Murat ÖZABACI

İnönü Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Fizik Anabilim Dalı

83+ix sayfa

2008

Danışman: Prof.Dr. Eyyüphan YAKINCI

Bu tezde püskürtme tekniği uygulanarak Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, MgO ve SrTiO<sub>3</sub> seramik altlıklar üzerinde farklı ısıl işlemler kullanılarak MgB<sub>2</sub> kalın filmler üretilmiştir. Üretilen kalın filmlerin mikroyapısal ve elektriksel karakterizasyonu gerçekleştirilmiş olup kullanılan altlıkların ve uygulanan ısıl işlemlerin süperiletken MgB<sub>2</sub> sistemi üzerindeki etkileri incelenmiştir

Yapılan çalışmalar sonucunda, uygulanan yöntemin MgB<sub>2</sub> filmlerin süperiletkenlik karakterini olumsuz yönde etkileyebilecek bazı riskler taşıdığı bulunmuştur. Bu olumsuzlukların başlıca, film yapısında çatlakların oluşması, değişik boyutta öbeklerin ve yabancı fazların oluşumu olarak ortaya çıktığı görülmüştür. Filmlerin mikroyapısal ve elektriksel özelliklerinin bu olumsuzluklardan önemli oranda etkilendiği görülmüştür. Kullanılan üç farklı altlık içerisinde en iyi sonuçların Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> altlık üzerinde üretilen filmde oluştuğu bulunmuştur. Ayrıca farklı ısıl işlem prosedürleri arasında üst sınırını 925 <sup>o</sup>C' nin teşkil ettiği yüksek sıcaklık ve kısa süreli yöntemin düşük sıcaklık ve uzun süreli yönteme göre kalın film üretimine daha uygun olduğu sonucu da çalışmanın bir başka önemli bulgusu olmuştur.

Anahtar Kelimeler: Süperiletkenlik, MgB<sub>2</sub> alaşımı, kalın film, püskürtme yöntemi, seramik altlık.

#### ABSTRACT

M.Sc. Thesis

# FABRICATION AND INVESTIGATION OF MICROSTRUCTURE AND ELECTRICAL PROPERTIES OF SUPERCONDUCTING MgB<sub>2</sub> THICK FILMS

Murat ÖZABACI

İnönü University Graduate School of Natural and Applied Sciences Department of Physics

83+ix pages

2008

Supervisor: Prof.Dr. Eyyüphan YAKINCI

In this thesis,  $MgB_2$  thick films were prepared on three different ceramic substrates like  $Al_2O_3$ , MgO and  $SrTiO_3$  using the spray method and different heat treatment procedures. Microstructural and electrical characterization of films obtained were made and then the effects of substrates used and heat treatment methods applied on superconducting  $MgB_2$  system were investigated.

At the end of the work, it has been found that the method applied carries some risks which can depress the superconducting properties of MgB<sub>2</sub> films. It has been seen that this situation caused formation of cracks, groups and impurities with different dimensions in the structure of films. It has been also seen that these effects seriously degraded the microstructural and electrical properties of films. The investigation demonstrated that among three different substrates used the best results belong to films with  $Al_2O_3$  substrate. Another important result of this study is that higher temperature heat treatment procedure with 925  $^{\circ}$ C the highest temperature limit and short time sintering is more suitable for production of MgB<sub>2</sub> thick films than lower temperature heat treatment procedure and long time sintering.

Keywords: Superconductivity, MgB<sub>2</sub> alloy, thick film, spray method, ceramic substrate.

## TEŞEKKÜR

Bu tez çalışmamız İnönü Üniversitesi Bilimsel Araştırma Projeleri Birimi 2006/37 no' lu proje kapsamında yapılmış olup projenin maddi imkanları kullanılmıştır.

Yüksek lisans eğitiminin ders aşamasından başlayarak tez çalışmasının bitimine kadar her aşamada bana rehberlik ve yardım eden, tez danışmanım Sayın Prof.Dr. Eyyüphan YAKINCI' ya,

Bu noktaya ulaşmamda unutulmaz katkısı olan bölüm başkanımız Sayın Prof. Dr. Selçuk ATALAY'a,

Bilgi birikimini bizlerle paylaşmaya her zaman hazır olan Sayın Yrd.Doç.Dr. Yakup BALCI' ya,

Numunelerin XRD ölçümlerini gerçekleştiren ve tecrübelerinden yararlandığım Serdar ALTIN' a,

Geç saatlere kadar süren çalışmalarımda sabır gösteren ve moral desteğini hiçbir zaman eksik etmeyen eşim Hatice Özabacı' ya ve Annem, Babam ve Kardeşime,

### TEŞEKKÜR EDERİM.

ÖZET.	i
ABSTE	ii ii
TEŞEK	KKÜRiii
İÇİND	iv
ŞEKİL	LER DİZİNİ vi
TABLO	DLAR DİZİNİ viii
SİMGI	ix
1.	<b>GİRİŞ</b> 1
2.	SÜPERİLETKENLİKTE TEMEL KURAMLAR 4
2.1.	Süperiletkenliğe Teorik Yaklaşımlar 4
2.1.1.	London denklemleri
2.1.2.	Ginzburg-Landau teorisi
2.1.3.	BCS teorisi
2.1.4.	High T <sub>c</sub> süperiletkenlerde teorik çalışmalar
2.2.	Süperiletkenlik Parametreleri.
2.2.1.	Geçiş sıcaklığı 14
2.2.2.	Kritik akım voğunluğu 15
2.2.3.	Kritik manyetik alan
2.2.4.	Tip-1 ve Tip-2 süperiletkenler
2.2.5.	Meissner etkisi 18
2.2.6.	Sızma (penetration) derinliği.
2.2.7.	Uvum (coherence) uzunluğı
228	Josephson etkisi 21
23	Süperiletken Sistemler 23
231	Metal ametal varimetal ve alaşımlardan oluşan süperiletkenler Tip-1
	karakterliler 23
232	HT <sub>a</sub> süperiletken sistemler Tip-2 karakterliler
3.	$M\sigma B_{2} S \ddot{U} PER \dot{I} LETKEN ALASIMI$ 28
31	MgB <sub>2</sub> Sörr Eletten Sisteminin Genel Özellikleri 28
311	Kristal vanisi 29
312	Gecis sıcaklığı
313	İki hantlı yapı ve süperiletkenliğin oluşumu
3.1.5.	$M \sigma B_{2}$ ' de anizotroni 34
315	Ivum (Coherence) uzunluğu     35
316	İzoton etkişi 36
317	Başınç ve sıçaklığa hağlı özellikler 37
3.1.7.	MaB. Numune Hazirlama Teknikleri
3.2.	Kalın ve ince film üretim teknikleri
3.2.1.	MaBa' de Kalın Film Üretimine Vönelik Vanılan Calışmalar
J.J.	DENEVSEI TEKNIKIED ÖDNEKLEDIN ÜDETIMI VE
ч.	KARAKTERİZASVONU 45
41	X-Isınları Kırınım (XRD) Analizleri 46
4.2	Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM) İncelemeleri 46
т. <i>2</i> . ДЗ	Flektriksel ve Manvetik Ölcümler (R-T MR-T I-V)
т.у. 5	DENEVSEL SONLICLAR VE DEČERI ENDIRMEI ERI
5.1	Y-Isinlari Kirinimi (XRD) Sonuclari 40
5.1.	$Al_{\Omega} = \frac{1}{2} 1$
J.1.1. 5 1 0	$A_{12}O_3 a unixii minit a ND sonuclari 40$
J.1. <u>2</u> .	

# İÇİNDEKİLER

5.1.3.	SrTiO <sub>3</sub> altlıklı filmlerin XRD sonuçları	50
5.2.	Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM) Sonuçları	51
5.2.1.	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> altlıklı filmlerin SEM sonuçları	53
5.2.2.	MgO altlıklı filmlerin SEM sonuçları	56
5.2.3.	SrTiO <sub>3</sub> altlıklı filmlerin SEM sonuçları	58
5.3.	Elektriksel Ölçüm Sonuçları	60
5.3.1.	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> altlıklı filmlerin R-T ve MR-T sonuçları	60
5.3.2.	MgO altlıklı filmlerin R-T ve MR-T sonuçları	63
5.3.3.	SrTiO <sub>3</sub> altlıklı filmlerin R-T ve MR-T sonuçları	66
5.4.	I-V Ölçüm Sonuçları	70
5.4.1.	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> altlıklı filmlerin I-V ölçüm sonuçları	70
5.4.2.	MgO altlıklı filmlerin I-V ölçüm sonuçları	72
5.4.3.	SrTiO <sub>3</sub> altlıklı filmlerin I-V ölçüm sonuçları	73
6.	SONUÇLARIN GENEL DEĞERLENDİRMESİ	75
6.1.	XRD sonuçları	75
6.2.	SEM Sonuçları	76
6.3.	R-T ve MR-T Ölçüm sonuçları	76
6.4.	I-V Ölçüm sonuçları	77
KAYN	AKLAR	78
ÖZGE	CMİŞ	83

# ŞEKİLLER DİZİNİ

Şekil 2.1.	a)Elektronun örgüyü geçişi esnasında meydana gelen pozitif yük	
	yoğunluğu, b)Cooper çifti adı verilen elektronların kilitlenerek	
	birlikte ilerlemesi	10
Şekil 2.2.	Chandra Varma'nın 1996 yılında açıkladığı elektrik akım	
	döngüleri	13
Şekil 2.3.	Süperiletkenlik özelliği gösteren ve göstermeyen materyallerin	
	direnç-sıcaklık eğrilerinin karşılaştırılması	15
Şekil 2.4.	Tipik bir süperiletken malzemede gerilim-akım grafiği	15
Şekil 2.5.	Tip-1 süperiletkenlerde manyetik alan etkisiyle faz geçiş şeması	17
Şekil 2.6.	Tip-2 süperiletkenin faz geçişi	17
Şekil 2.7.	Karışık durumda bulunan Tip-2 süperiletkenin vorteks yapısı	18
Şekil 2.8.	a) Mükemmel iletken ve b) süperiletken malzemelerin manyetik	
	alan altında sıfır dirençli duruma geçişi	19
Şekil 2.9.	Josephson etkisi	22
Şekil 2.10.	Josephson kavşağının akım-voltaj ilişkisi	22
Şekil 2.11.	Bazı a) metal, b) yarımetal ve c) ametal elementlerin kritik	
	sıcaklıklarına basıncın etkisi	25
Şekil 3.1.	MgB <sub>2</sub> ' nin kristal yapısı	29
Şekil 3.2.	MgB <sub>2</sub> 'deki iki farklı enerji aralığının sıcaklığa bağımlılığı	33
Şekil 3.3.	<b>a,b)</b> 4 K'de Fermi yüzeyinde MgB <sub>2</sub> ' nin süperiletken enerji	
	aralığı, renk skalası ile gösterilmiştir c) Bor tabakasında ve bu	
	tabakanın 0.05 nm, 0.1 nm, 0.15 nm, 0.18 nm üzerinde	
	süperiletken enerji aralığının dağılımı	34
Şekil 3.4.	MgB <sub>2</sub> sisteminde izotopların T <sub>c</sub> üzerindeki etkisi	37
Şekil 3.5.	MgB <sub>2</sub> ' de T <sub>c</sub> ' nin basınca bağlı değişimi	38
Şekil 3.6.	Basınçla örgü parametrelerinde (a ve c) meydana gelen değişim,	
	ve bağıl değişim (c/a)	38
Şekil 3.7.	MgB <sub>2</sub> ' de örgünün a ve c eksenleri boyunca termal genleşme	
	oranları	39
Şekil 5.1.	$Al_2O_3$ altlık üzerinde üretilen filmlerin XRD grafikleri <b>a</b> ) 610 $^{0}$ C	
	de ısıl işlem görmüş film, <b>b</b> ) 925 $^{0}$ C de ısıl işlem görmüş film	49
Şekil 5.2.	MgO altlık üzerinde üretilen filmlerin XRD grafikleri a) 610 °C	
	de ısıl işlem görmüş film, <b>b</b> ) 925 $^{0}$ C de ısıl işlem görmüş film	49
Şekil 5.3.	SrTiO <sub>3</sub> altlık üzerinde üretilen filmlerin XRD grafikleri a) 610	
	<sup>o</sup> C de ısıl işlem görmüş film, <b>b</b> ) 925 <sup>o</sup> C de ısıl işlem görmüş film.	50
Şekil 5.4.	Kısa süreli püskürtme işlemi uygulanan filmlerin SEM resimleri,	
	oklar altlık malzemelerini göstermektedir <b>a,b</b> ) Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> altlıklı	
	filmler, $\mathbf{c}$ , $\mathbf{d}$ ) MgO altlıklı filmler, $\mathbf{e}$ , $\mathbf{f}$ ) SrTiO <sub>3</sub> altlıklı filmler	52
Şekil 5.5.	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> altlık üzerinde üretilen 610 <sup>o</sup> C' de ısıl işlem görmüş	
	filmler a) Oklar öbek ve çatlakları göstermektedir, b,c ve d)	
	Tozların homojen dağılımı ve tanecikler arasındaki güçlü	
	bağlantıların ve kısmi erimenin görüntüleri	54
Şekil 5.6.	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> altlık üzerinde üretilen 925 <sup>o</sup> C ısıl işlemli filmler <b>a</b> ) Oklar	
	öbek ve çatlakları göstermektedir, <b>b,c,d,e</b> ve <b>f)</b> MgB <sub>2</sub>	
	taneciklerinin homojen dağılımı ve tanecikler arasındaki güçlü	
	bağlantıları göstermektedir	55

Şekil 5.7.	MgO altlık üzerinde üretilen 610 <sup>0</sup> C' de ısıl işlem görmüş film <b>a</b> ) Oklar öbek ve çatlakları göstermektedir, <b>b</b> ) Tanecik dağılımı ve aralarındaki sıkı kaynasmaların görünümü.	56
Şekil 5.8.	<b>a,b)</b> MgO altlık üzerinde 610 <sup>o</sup> C ısıl işlem görmüş filmin yüzeyindeki oluşumlar, <b>c,d,e,f)</b> MgO altlık üzerinde 925 <sup>o</sup> C ısıl işlemli filmin yüzey yapıları	57
Şekil 5.9.	<b>a,b,c)</b> SrTiO <sub>3</sub> altlıklı 610 $^{\circ}$ C ısıl işlemli filmin yapısı <b>d,e,f)</b> SrTiO <sub>3</sub> altlıklı 925 $^{\circ}$ C ısıl işlemli filmde çatlaklı yapı ve tanecikler arasında sıkı kaynasma	59
Şekil 5.10.	<b>a)</b> Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> altlık üzerinde üretilen farklı ısıl işlemli filmlerin 0-50 K arasında sıcaklık-direnç eğrileri <b>b)</b> Aynı eğrilerin 0-150 K arasındaki görünümü.	61
Şekil 5.11.	<b>a)</b> Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> altlık üzerinde üretilen 925 <sup>o</sup> C ısıl işlem gören filmde manyetik alanın sıcaklık direnç eğrisi üzerindeki etkisi <b>b)</b> Aynı eğrilerin 0-230 K arasındaki görünümü.	62
Şekil 5.12.	a) MgO altlık üzerinde üretilen farklı ısıl işlemli filmlerin 0-50 K arasında sıcaklık-direnç eğrileri b) Aynı eğrilerin 0-200 K arasındaki görünümü.	64
Şekil 5.13.	<b>a)</b> MgO altlık üzerinde üretilen 925 <sup>o</sup> C ısıl işlemli filmde manyetik alanın sıcaklık-direnç eğrisi üzerindeki etkisi <b>b)</b> Aynı eğrilerin 0-230 K arasındaki görünümü	66
Şekil 5.14.	a) SrTiO <sub>3</sub> altlık üzerinde üretilen farklı ısıl işlemli filmlerin sıcaklık-direnç eğrileri b) Aynı eğrilerin 0-200 K arasındaki görünümü	67
Şekil 5.15.	<b>a)</b> SrTiO <sub>3</sub> altlık üzerinde üretilen 925 <sup>0</sup> C ısıl işlemli filmde manyetik alanın sıcaklık direnç eğrisi üzerindeki etkisi <b>b)</b> Aynı eğrilerin 0-230 K arasındaki görünümü	68
Şekil 5.16.	$Al_2O_3$ altlık üzerinde üretilen 925 $^{0}$ C' de ısıl işlem görmüş filmin farklı manyetik alanlarda I-V grafikleri	71
Şekil 5.17.	MgO altlık üzerinde üretilen 925 <sup>0</sup> C' de ısıl işlem görmüş filmin farklı manyetik alanlarda I-V grafikleri	73
Şekil 5.18.	SrTiO <sub>3</sub> altlık üzerinde üretilen 925 <sup>o</sup> C' de ısıl işlem görmüş filmin farklı manyetik alanlarda I-V grafikleri	74

# TABLOLAR DİZİNİ

Tablo 2.1.	Bazı alaşımların geçiş sıcaklıklarının, yapıtaşlarının geçiş sıcaklıkları ile karşılaştırılması	14
Tablo 3.1.	Günümüzde mevcut olan bazı B' lu alaşımların T <sub>c</sub> değerleri	31
Tablo 5.1.	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> altlık üzerinde üretilen 925 <sup>0</sup> C ısıl işlemli filmin MR-T sonuçları	63
Tablo 5.2.	MgO altlık üzerinde üretilen 925 <sup>o</sup> C ısıl işlemli filmin MR-T sonucları	65
Tablo 5.3.	SrTiO <sub>3</sub> altlık üzerinde üretilen 925 <sup>0</sup> C ısıl işlemli filmin MR-T sonucları	68
Tablo 5.4.	Üç farklı altlık ve iki farklı ısıl işlem prosedürüne ait filmlerin $T_0$ , $T_c$ ve $\Delta T$ değerleri	69
Tablo 5.5.	$Al_2O_3$ , MgO ve SrTiO <sub>3</sub> altlıkların ve MgB <sub>2</sub> nin oda sıcaklığında termal genleşme katsayıları, kristal yapıları ve örgü sabitleri	70
Tablo 5.6.	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> altlık üzerinde üretilen 925 $^{6}$ C' de ısıl işlem gören filmin 4.2 K sıcaklıkta ve 0-5 Tesla manyetik alan değerlerinde kritik	- 1
	akim yogunluklari $(J_c)$	71
Tablo 5.7.	MgO altlik üzerinde üretilen 925 °C' de isil işlem gören filmin	
	4.2 K sicaklikta ve 0-5 Tesla manyetik alan degerlerinde kritik akım yoğunlukları (J <sub>c</sub> )	73
Tablo 5.8.	SrTiO <sub>3</sub> altlık üzerinde üretilen 925 <sup>o</sup> C' de 1sıl işlem gören filmin 4.2 K sıcaklıkta ve 0-5 Tesla manyetik alan değerlerinde	
	kritik akım yoğunlukları (J <sub>c</sub> )	74

## SEMBOLLER

В	Manyetik akı yoğunluğu
B(0)	Malzeme yüzeyindeki manyetik akı yoğunluğu
B <sub>c</sub>	Kritik manyetik alan
B <sub>c1</sub>	Alt kritik manyetik alan
H <sub>0</sub>	Mutlak sıfırda kritik manyetik alan
H <sub>c</sub>	Kritik manyetik alan
М	Manyetizasyon
D	Yerdeğiştirme akımı
Ψ	Kompleks düzen parametresi
$\lambda_{\rm L}$	London sızma derinliği
m	Elektronun kütlesi
e	Elektronun yükü
к	Ginzburg-Landau parametresi
$\mu_0$	Manyetik geçirgenlik katsayısı
$\mu_r$	Bağıl geçirgenlik katsayısı
n <sub>s</sub>	Süperelektron yoğunluğu
n <sub>n</sub>	Normal elektron yoğunluğu
E	Elektrik alan
k <sub>B</sub>	Boltzmann sabiti
$\omega_{\scriptscriptstyle D}$	Debye frekansı
Р	Momentum
T <sub>c</sub>	Kritik sıcaklık
$T_{c}(0)$	Sıfır direncin ortaya çıktığı sıcaklık
$\Delta T_{c}$	Faz geçişinin gerçekleştiği sıcaklık aralığı
J	Akım yoğunluğu
J <sub>s</sub>	Süperakım yoğunluğu
J <sub>c</sub>	Kritik akım yoğunluğu
$l_e$	Elektron ortalama serbest yolu
$V_{\mathrm{f}}$	Fermi enerjisindeki elektronların hızı
Δ	Enerji aralığı
ξ	Uyum (koherens) uzunluğu
ξ0	Özuyum uzunluğu

## 1.GİRİŞ

Özellikle 19'uncu yüzyılın sonlarında düşük sıcaklıklara ulaşma konusunda yapılan çalışmalarda önemli gelişmeler olmuştur. Bilimsel kariyerini mümkün olan en düşük sıcaklığı elde etmeye adamış olan Hollanda'lı fizikçi Heike Kamerlingh Onnes, 10 Temmuz 1908'de Helyumu 4 Kelvine kadar soğutarak sıvılaştırmayı başarmıştır [1]. Onnes o gün sadece birkaç mililitre sıvı Helyum elde etmiştir, fakat bu daha önce ulaşılamayan sıcaklıklarda yapacağı keşiflerin yeni bir başlangıcı olmuştur. Sonuç olarak Helyumu sıvılaştırması Onnes'a diğer maddeleri mutlak sıfır yakınlarına kadar soğutma imkanı vermiştir.

1911'de Onnes mutlak sıfır yakınlarında metallerin elektrik dirençlerini araştırmaya başlamıştır. O yıllarda, metallerin oda sıcaklığının altına soğutuldukça dirençlerinin düştüğü bilinmekteydi. Fakat mutlak sıfıra yaklaştıkça direncin hangi limit değere ulaşacağı bilinmiyordu. William Kelvin ve bazı bilim adamları mutlak sıfıra yaklaşıldıkça bir iletkende akan elektronların tamamen durma noktasına geleceğini düşünüyordu. Onnes'un da içinde bulunduğu diğer bir grup ise çok düşük sıcaklıkta akımın hemen hemen hiç dirençle karşılaşmadan akacağını tahmin ediyordu. Sonunda Onnes saf olarak bulunması kolay olduğu için bir Civa telini soğutarak direncini ölçmeye başlamış ve sıcaklık 4.2 K'e ulaştığında elektriksel direncin tamamen kayıp olduğunu görmüştür [2]. Deneyi tekrarladığında sonucun şüpheye yer bırakmadığı anlaşılmıştır. Onnes'a göre Civa farklı bir faza geçmişti ve Onnes bu yeni duruma "süperiletkenlik" adını vermiştir. Bu keşif Onnes'a 1913'te Nobel Ödülünü kazandırmıştır.

Süperiletkenliğin keşfinden sonra bilim adamlarının rüyalarını bu yeni olağanüstü olayın pratik uygulamaları süslemiştir. Artık güçlü süperiletken magnetler dirençli magnetlerden çok daha küçük yapılabilecekti, çünkü sarımlar büyük akımları enerjide kayıp olmadan taşıyabiliyordu, üreteçler aynı miktar elektriği daha küçük malzemelerle ve daha az enerji girdisi ile üretebilecekti. Elektrik bir defa üretildikten sonra süperiletken tellerle taşınacak ve böylelikle %40'lara varan enerji kaybının önüne geçilebilecekti. Aynı zamanda enerji, süperiletken sarımlarda önemli bir kayıp olmaksızın uzun süre depolanabilecekti. Sonuç olarak süperiletkenlik üzerine yaklaşık bir asırdır binlerce araştırıcının verdiği yoğun emek bu günün araştırmacılarını yüzyılın başındaki bilim adamlarının düşlerini gerçekleştirmenin eşiğine getirmiştir.

1

Süperiletkenliğin 1911'de Civa ile keşfedilmesinden sonra 1913'de Kurşunun 7.2 K'de [3] 1930'da Niyobyumun 9.2 K'de [4] süperiletkenlik özelliği gösterdikleri bulunmuştur. O tarihten bu güne kadar hem teorik hem de deneysel alanlarda kendinden sonraki çalışmalara ışık tutucu kritik dönüm noktaları olmuştur. 1933'de Walther Meissner ve Robert Ochsenfeld dışardan uygulanan manyetik alanın belirli bir değere kadar süperiletken tarafından dışlandığını buldular [5]. Bu olay mükemmel diyamanyetizmaya bir örnektir ve "Meissner Etkisi" olarak adlandırılmıştır. Süperiletkenliğin bu etkileyici özelliğinin basit bir deney düzeneği ile, süperiletken üzerinde havada asılı kalan manyetik malzeme şeklinde gösterimi oldukça popülerdir. 1935'de Heinz ve Fritz London kardeşler manyetik akının süperiletken malzemeye sızabileceğini açıkladılar ve "sızma derinliği" kavramını ortaya çıkardılar [6]. 1957'de John Bardeen, Leon Cooper ve Robert Schrieffer (BCS) isimli üç Amerikalı fizikçi kuantum mekaniğinin ileri fikirlerini kullanarak süperiletken maddede akımın nasıl dirençsiz taşındığı ve süperiletkenlik durumunun nasıl ortaya çıktığını açıklayan günümüzde de saf metal ve metal alaşımlar için geçerliliğini koruyan ve BCS teorisi olarak bilinen teoriyi ortaya koydular [7]. Bu teorinin ana fikri akımın aynı kuantum taban durumuna yoğunlaşmış elektron çiftleri tarafından taşındığı idi. Bu teori 1972'de bu üçlüye Nobel Ödülünü kazandırmıştır. Teorik alanda yaşanan bu gelişmeden sonra 1986 yılında deneysel alanda da sonraki çalışmaların yönünü belirleyecek bir gelişme yaşanmıştır. Zürih, IBM Araştırma Laboratuarı' ndan Georg Bednorz ve Alex Müller perovskitler olarak adlandırılan oksit seramiklerin özel bir sınıfı üzerine araştırmalar yaparken oda sıcaklığında iyi bir yalıtkan olan La-Ba-Cu-O sisteminde 35 K'de süperiletkenlik işaretlerini gördüler [8]. Bu değer daha önce 23 K geçiş sıcaklığı ile rekoru elinde bulunduran Nb<sub>3</sub>Ge alaşımından 12 K daha yukarıda idi [9]. Bu gelişmenin cok daha önemli neticesi ise Subat 1987'de bilesiğe Lantan yerine Yitriyum elementi katıldığında kritik sıcaklığın 92 K' e yükselmiş olmasıdır [10]. Bu noktadan sonra artık soğutucu olarak pahalı ve tehlikeli olan sıvı Helyum yerine sıvı Azot kullanılabilecekti. Bulunan bu bileşikler yüksek geçiş sıcaklığına sahip oldukları için "yüksek kritik sıcaklık süperiletkenleri"  $(HT_c)$  olarak adlandırılmaktadırlar. Yüksek kritik sıcaklık süperiletkenleri genel olarak CuO tabakalarına sahip oksit bazlı süperiletkenlerdir. 1988'de Hiroshi Maeda ve grubu 20 K, 90 K ve 110 K kritik sıcaklığa sahip üç farklı fazı olan Bi-Sr-Ca-Cu-O bileşiğini elde ettiler [11]. Bu tür bileşiklerde çalışmalar Hazen ve grubunun 125 K geçiş sıcaklığına sahip Tl-Ba-Ca-Cu-O sistemini keşfetmeleriyle devam etmiştir [12].

 $HT_c$  seramik süperiletkenlerin şu anda en yüksek geçiş sıcaklığına sahip olanı Hg-Ba-Ca-Cu-O sistemidir. 1993 yılında keşfedilen Hg-Ba-Ca-Cu-O sisteminin HgBa<sub>2</sub>Ca<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>8+δ</sub> fazının normal basınç altında geçiş sıcaklığı 134 K, 30 GPa basınç altında 164 K'dir [13, 14]. Şu andaki kritik sıcaklık rekoru normal basınç altında 138 K geçiş sıcaklığıyla Hg<sub>0.8</sub>Tl<sub>0.2</sub>Ba<sub>2</sub>Ca<sub>2</sub> Cu<sub>3</sub>O<sub>8</sub> bileşimine aittir [15].

Süperiletkenlik araştırmalarında bütün ilgi tamamıyla oksit bazlı bileşiklere çevrilmiş iken 1950'li yıllardan beri bilinmekte olan MgB<sub>2</sub> metal alaşımının bir alaşım için yüksek denilebilecek sıcaklıkta, yaklaşık 40 K'de süperiletken faza geçtiği 2001 yılının Ocak ayında Japonya'da Jun Akimitsu ve ekibi tarafından bulunmuştur [16]. CuO tabakasına sahip olmayan süperiletkenler arasında daha önce ulaşılabilmiş en yüksek sıcaklık 30 K ile Ba<sub>1-x</sub>K<sub>x</sub>BiO<sub>3</sub> bileşiğine [17] ve 33 K ile elektron katkılı Cs<sub>x</sub>Rb<sub>y</sub>C<sub>60</sub> [18] bileşiğine aitti. MgB<sub>2</sub> alaşımı bütün dünyada yoğun bir ilgi gördü. Bor elementi ile elde edilebilecek bütün alternatif bileşik kombinasyonları ve MgB<sub>2</sub> 'nin farklı formlarda bütün fiziksel özellikleri de araştırılmaya başlandı ve hala güncel olarak çalışılmaya devam edilmektedir. Bu metal alaşım basit kristal yapısı, BCS teorisine uyum göstermesi ve yüksek kritik akım yoğunluğu gibi avantajlarında dolayı çok sayıda teknolojik olarak kullanım yerine sahiptir.

Şu anda bir çok devlet süperiletkenlikle ilgili araştırmalara stratejik gözle bakmakta ve birçok kuruluş ve üniversiteler yüksek sıcaklık süperiletkenlik araştırmalarına büyük miktarlarda kaynak aktarmaktadırlar. Günümüzde artan bütçeler ve teknolojinin imkanları sayesinde malzemeleri soğutarak üzerinde araştırma yapmanın kolay hale gelmesi yeni süperiletken sistemler keşfetme yönündeki yoğun çabaları ateşlemiştir. 20 K'den daha yüksek sıcaklıklıklara ulaşmanın maliyetinin düşüklüğü ve artan makina güvenirliği göz önüne alındığında yüksek sıcaklıkl süperiletkenleri elektriksel güç uygulamalarında artık çok daha pratik hale gelmekte ve hemen her alanda geliştirilen yeni teknolojilere dahil olmaktadırlar.

#### 2.SÜPERİLETKENLİKTE TEMEL KURAMLAR

Süperiletkenliği teorik olarak anlamak oldukça zor ve karmaşıktır. Günümüzde süperiletkenlik mekanizmasını açıklayan temel teori 1957 yılında ortaya konan BCS teorisidir. Fakat bu teori de, 1986 yılından sonra bulunan oksit-seramik bazlı yüksek sıcaklık süperiletkenlerinin kompleks kristal yapılarındaki akımın iletim mekanizmasını, çok fazla parametre devreye girdiği için, açıklamakta yetersiz kalmaktadır. Şu ana kadar H $T_c$  materyallerde süperiletkenlik olayını açıklamaya çalışan birçok teori geliştirilmiştir, fakat bu teoriler yeterince kapsayıcı olmamakla birlikte hiçbiri üzerinde tam bir fikir birliği de sağlanamamıştır.

#### 2.1. Süperiletkenlik ve Teorik Yaklaşımlar

1934 yılında Gorter ve Casimir "iki sıvı modeli" ni geliştirmiştir [19,20]. Bu model, normal durumda bulunan bir iletkende elektrik iletimini sağlayan elektronların yoğunluğuna n<sub>n</sub>, süperiletken fazda elektrik iletiminden sorumlu süperelektronların yoğunluğuna n<sub>s</sub> denilirse, geçiş sıcaklığının altında bir süperiletkende her iki elektron grubunun iki farklı paralel iletken tabaka gibi bir arada bulunduğunu söyler. Bu tabakalardan biri normal direnç gösterirken diğeri, süperelektronlar hiçbir saçılmaya maruz kalmadan hareket ettikleri için, dirençsiz olacaktır. Elektronların oranının ise sıcaklığa bağlı olduğunu belirtir. Mutlak sıfıra yaklaşıldıkça n<sub>s</sub> yoğunluğu artarkan, n<sub>n</sub> yoğunluğu düşer. Geçiş sıcaklığına doğru çıkıldıkça tam tersi olur, n<sub>s</sub> yoğunluğu azalır ve n<sub>n</sub> yoğunluğu artar. Geçiş sıcaklığına varıldığında n<sub>s</sub> sıfır olur. Bu ilişki aşağıdaki gibi formülize edilmiştir [19, 20] ;

$$n_s = n \left[ 1 - \left( \frac{T}{T_c} \right)^4 \right] \tag{2.1}$$

Burada  $n = n_s + n_n$  toplam elektron yoğunluğudur. Süperiletken durumda direnç sıfır olduğu için bütün akım süperelektronlar tarafından taşınır. Bir nevi süperelektronların normal elektronlara kısa devre yaptığı söylenebilir.

Fritz ve Heinz London kardeşler süperiletkenliğin bu özelliğinden ve Meissner etkisi olarak bilinen, uygulanan manyetik alanın bir süperiletken tarafından dışlanması ilkesinden yola çıkarak London denklemlerini elde etmişlerdir.

#### 2.1.1. London denklemleri

London Kardeşler bir süperiletken içerisinde manyetik alan ve elektrik akımının nasıl davrandığını açıklayan denklemler türetmişlerdir. Bu denklemlerin temelinde aslında Maxwell denklemleri vardır ve denklemleri bir süperiletken malzemenin kendine özgü şartlarına uyarlamışlardır.

Maxwell denklemleri manyetik alanı, elektrik alan, akım ve yoğunluğu ile aşağıdaki şekilde ilişkilendirmiştir;

$$\vec{B} = -\vec{\nabla} \times \vec{E} \tag{2.2}$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{H} = \vec{J} + \dot{\vec{D}} \tag{2.3}$$

Bir süperiletken malzemede, diğer manyetik olmayan malzemeler gibi bağıl geçirgenlik,  $\mu_r = 1$  alınabilir. Elektrik alan çok hızlı şekilde yön değiştirmedikçe yerdeğiştirme akımı  $\dot{\vec{D}}$  ihmal edilebilir. Bu durumda bir süperiletken içerisinde Maxwell denklemleri aşağıdaki formu alır [21];

$$\dot{\vec{B}} = -\vec{\nabla} \times \vec{E}$$
  
$$\vec{\nabla} \times \vec{B} = \mu_0 \vec{J}_s$$
(2.4)

Burada  $J_s$ , birim hacimde  $\vec{v}_s$  hızıyla hareket eden  $n_s$  sayıda süperelektronun süperakım yoğunluğudur.  $\vec{J}_s = n_s e \vec{v}_s$  şeklinde ifade edilir.  $J_s$ 'nin zamana göre türevi alınıp, elde edilen ifade yukarıdaki denklemlerde elektrik alan yerine yazılıp,  $\alpha = m/\mu_0 n_s e^2$  şeklinde bir sabit tanımlanırsa aşağıdaki eşitliğe ulaşılır;

$$\nabla^2 \vec{B} = \frac{1}{\alpha} \vec{B} \tag{2.5}$$

Uygulanan alan süperiletkenin yüzeyine paralel ve sabit, x-ekseni de yüzeye dik kabul edilirse yukarıdaki vektörel ifade skaler bir denklem gibi ele alınabilir. Sonuç olarak;

$$\dot{B}(x) = \dot{B}_a \exp(\frac{-x}{\sqrt{\alpha}})$$
(2.6)

Burada B(x) metalin x mesafesi kadar içindeki akı yoğunluğu ve  $\dot{B}_a$ 'da  $\dot{B}$ ' nin metal dışındaki değeridir. Bu denklemden görüleceği gibi,  $\dot{B}$  değeri süperiletkenin içerisine girildikçe eksponansiyel olarak azalmaktadır. Bir başka deyişle akı yoğunluğundaki değişimler süperiletkenin derinliklerine etki edememekte ve belirli bir mesafeden sonra uygulanan akı ne olursa olsun içerideki akı sabit kalmaktadır ki şu ana kadar bu sonuca elektrodinamiğin genel kanunları sıfır dirençli bir iletkene uygulanarak varılmıştır.

Fakat (2.6) mükemmel iletkenin manyetik davranışını tam olarak yansıtmasına karşı bir süperiletkenin özelliğini tarif etmekte yetersiz kalmaktadır. Meissner etkisi bir süperiletken içinde manyetik akı yoğunluğunun sadece sabit kalmadığını aynı zamanda daima sıfır olduğunu söyler. Yani sadece  $\dot{B}$  değil aynı zamanda B değeri de yüzeyin altına inildikçe hızla düşmelidir. İşte London kardeşler burada devreye girerek (2.5)'i  $\vec{B}$ 'ye de uygulamıştır ve aşağıdaki sonucu elde etmişlerdir [21].

$$\vec{B} = \frac{-m}{n_s e^2} \vec{\nabla} \times \vec{J}_s \tag{2.7}$$

$$\dot{\vec{J}}_s = \frac{n_s e^2}{m} \vec{E}$$
(2.8)

Bu iki denklem birlikte süperakımın elektrodinamiğini tarif eder ve "London Denklemleri" olarak bilinir. (2.8) eşitliği akım değişmediği müddetçe elektrik alanın mevcut olmayacağını, süperiletkenin dirençsizlik özelliğini tarif eder. (2.7) ise diyamanyetizmayı anlatır.

Sonuç olarak London denklemleri temel özelliklerden yola çıkılarak türetilmiş değildir. Sadece, sıradan elektromanyetizma eşitliklerine süperiletkenlikte deneysel olarak gözlemlenen özelliklerin uyarlanmış halidir. Yani genel denklemlerin belirli koşullara indirgenmiş halidir.

(2.5) eşitliği  $\vec{B}$  için yazılıp tek boyutta hesaplanırsa, yüzeyin  $\lambda_L$  kadar derinliğinde akı yoğunluğunun yüzeydeki değerinin 1/e'sine düştüğü görülür.  $\lambda_L$ , "London Sızma Derinliği" olarak adlandırılır ve;

$$\lambda_L = \sqrt{\frac{m}{\mu_0 n_s e^2}}$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{J}_{s} = -\frac{1}{\mu_{0} \lambda_{L}^{2}} \vec{B}$$
  $\dot{\vec{J}}_{s} = \frac{1}{\mu_{0} \lambda_{L}^{2}} \vec{E}$  (2.9)

şeklinde tanımlanır. Eğer bu eşitlikte *m* ve *e*'ye elektronun kütle ve yük değerleri yazılır,  $n_s$  yaklaşık  $4x10^{28}$  m<sup>-3</sup> (atom başına bir iletim elektronu düşecek şekilde metallerdeki ortalama yoğunluk) alınıp hesap yapılacak olursa London sızma derinliği  $10^{-6}$  cm olarak bulunur. Bu nedenle London denklemleri süperiletkenin yüzeyindeki akı yoğunluğunun çok hızlı bir şekilde eksponansiyel olarak düştüğünü tahmin eder.  $\lambda_L$ tanımlandıktan sonra London denklemleri denklem 2.9' daki gibi yeniden yazılabilir.

#### 2.1.2 Ginzburg-Landau teorisi

1950 yılında geliştirilen Ginzburg-Landau teorisi London teorisinin bir alternatifidir. Tamamen klasik olan London teorisinin aksine manyetik alanın etkisini tahmin edebilmek için kuantum mekaniğinden yararlanmıştır. Ginzburg-Landau teorisi sayısal mantığı çok iyi kullanmıştır ve manyetik alanın yokluğunda faz geçişini doğru tarif edebilmiştir.

Landau ve Ginzburg, Landau'nun daha önce geliştirdiği ikinci derece faz geçiş teorisini baz alarak kritik sıcaklık yakınlarında bir süperiletkenin serbest enerjisi F'nin "kompleks düzen parametresi"  $\psi$  cinsinden ele alınabileceğini düşünmüşlerdir.  $\Psi$ burada bir sistemin ne derece süperiletken fazda olduğunu gösterir ve  $\psi(r) = |\psi(r)|e^{i\theta}$  eşitliği ile verilir.  $|\psi(r)|^2$  ise Cooper çiftlerinin bölgesel yoğunluğunu verir. Serbest enerji aşağıdaki formdadır [22].

$$F = F_n + \alpha |\psi|^2 + \frac{\beta}{2} |\psi|^4 + \frac{1}{2m} \left| (-i\hbar\nabla - 2e\vec{A})\psi \right|^2 + \frac{\left|\vec{H}\right|^2}{2\mu_0}$$
(2.10)

Burada  $F_n$  normal durumun serbest enerjisi,  $\alpha$  ve  $\beta$  fenomenolojik parametreler,  $\vec{A}$  elektromanyetik vektör potansiyeli ve  $\vec{H}$  manyetik alandır. Düzen parametresi ve vektör potansiyelindeki dalgalanmalara göre serbest enerjiyi minimize ederek Ginzburg-Landau eşitliklerine ulaşılır [23];

$$\alpha \psi + \beta |\psi|^2 \psi + \frac{1}{2m} (-i\hbar \vec{\nabla} - 2e\vec{A})^2 \psi = 0 \qquad (2.11)$$

$$\vec{J} = \frac{2e}{m} (\psi^* (-i\hbar\vec{\nabla} - 2e\vec{A})\psi)$$
(2.12)

Burada  $\vec{J}$  elektrik akım yoğunluğunu temsil eder. İlk denklem uygulanan manyetik alana bağlı olarak düzen parametresi  $\psi$ ' nin bulunmasını sağlar. İkinci denklem süperiletken akımının bulunmasını sağlar.

Ginzburg-Landau eşitlikleri önemli sonuçlar üretmiştir. Bunların en önemlisi bir süperiletkende iki karakteristik uzunluğun varlığını tahmin etmesidir. Bunlardan biri  $\xi$ ile temsil edilen ve aşağıdaki gibi formülize edilen uyum (coherence) uzunluğudur [23];

$$\xi = \sqrt{\frac{\hbar^2}{2m|\alpha|}} \tag{2.13}$$

İkincisi ise aşağıdaki gibi verilen sızma derinliği  $\lambda$ 'nın Ginzburg-Landau ifadesidir ki bu ifade de daha önce belirtildiği gibi dış manyetik alanın süperiletkene sızabildiği derinliktir [23];

$$\lambda = \sqrt{\frac{m}{4\mu_0 e^2 \psi_0^{\ 2}}}$$
(2.14)

Bu iki karakteristik uzunluğun birbirine oranı  $\kappa = \lambda/\xi$  "Ginzburg-Landau Parametresi" olarak bilinir ve teoride önemli bir yeri vardır. Malzemede  $\kappa < 1/\sqrt{2}$  ise Tip-1,  $\kappa > 1/\sqrt{2}$  ise Tip-2 süperiletkenler olduğu bulunmuştur. Tip-2 süperiletkenlerin bir çoğu için normal fazdan süperiletken faza geçiş ikinci dereceden, Tip-1 süperiletkenlerde ise bu faz geçişi genellikle birinci derecedendir [24].

#### 2.1.3. BCS teorisi

Süperiletkenliğin keşfinden 46 yıl sonra 1957' de John Bardeen ve arkadaşları Leon Cooper ve John Schrieffer süperiletkenliğe ilk kez mikroskobik bir açılım getirmiş ve o zamanın süperiletken yapıları için süperiletkenlik mekanizmasının tam bir tanımını yapmışlardır. Daha sonra bu teori isimlerinin baş harfleri alınarak BCS teorisi olarak adlandırılmış ve 1972 yılında bu üçlüye Nobel Ödülünü kazandırmıştır ki, tarihte hayatında bu ödülle iki defa onurlandırılan tek bilim adamı John Bardeen'dir.

Bardeen, Cooper ve Schrieffer, kritik sıcaklıkta ortaya çıkan ikinci derece faz geçişini, T=0 K' de  $\exp(-T_0/T)$  olarak değişen ve enerji aralığının bir kanıtı olan elektronik özısıyı, Meissner etkisini, sınırsız iletkenlik etkilerini ve kritik sıcaklığın izotop kütlesine bağlılığını baz alarak teorilerini geliştirmişlerdir.

BCS teorisi en basit formuyla daha önce geliştirilen makroskobik yaklaşımlarla çelişmektedir. Önceleri, elektronların kristal örgü ile yıkıcı bir şekilde etkileşmedikleri veya herhangi bir çarpışma yapmadıkları için süperiletkenliğin oluştuğu iddia ediliyordu. Fakat BCS teorisi tam tersine elektronların örgü ile etkileştiğini ama yapıcı bir şekilde etkileştiğini iddia etmiştir.

Üç bilim adamı en önemli varsayımını başta yaparak elektronlar arasında çekici bir etkileşimin olduğunu öngörmüşlerdir. BCS teorisine göre sıradan bir Tip-1 süperiletkeninde bu kuvvet elektron ile kristal örgü arasındaki Coulomb etkileşiminden kaynaklanmaktadır. Şekil 2.1' de gösterildiği gibi örgüdeki bir elektron kendi çevresinde bulunan atomların pozitif yüklü çekirdeklerini kendine doğru hafifçe çeker ve çevresindeki pozitif yük yoğunluğunda küçük bir artış meydana getirir. Bu yük yoğunluğu örgüye girecek başka bir elektronu cezbeder. Eğer yük yoğunluğu ile elektron arasında oluşan Coulomb etkileşmesinin şiddeti iki elektron arasında oluşan itici Coulomb kuvvetinden büyük ise Coulomb etkisi perdelenir ve iki elektron bir çift oluşturur. Bu şekilde oluşan elektron çiftine "Cooper Çifti" adı verilir. Eğer bu çiftleri bir arada tutmak için gerekli olan enerji, çiftleri parçalamaya çalışan örgüdeki termal salınım kaynaklı enerjiden az ise çift bağlı kalır. Bu, kabaca neden süperiletkenliğin düşük sıcaklık gerektirdiğinin nedenidir. Yani örgünün termal salınımları Cooper çiftlerinin oluşmasına izin verecek kadar küçük olmalıdır. Bir süperiletkende akım, bağımsız elektronlar yerine Cooper çiftlerinden oluşur [21].



**Şekil 2.1.** *a)* Elektronun örgüyü geçişi esnasında meydana gelen pozitif yük yoğunluğu *b)* Cooper çifti adı verilen elektronların kilitlenerek birlikte ilerlemesi [25]

BCS teorisinde yer alan Cooper çiftinin örgü ile etkileşmesi tahmini, izotop etkisi ile de deneysel olarak doğrulanmıştır. Yani, materyalin geçiş sıcaklığı atom çekirdeğinin kütlesine bağlıdır. Elementi daha ağır yapmak için çekirdeğe nötron eklenerek elde edilen izotop kullanılırsa, örgü daha ağır hareket edeceği, bir başka deyişle fonon frekansı düşeceği için geçiş sıcaklığı da düşecektir. Bu etki daha çok Tip-1 süperiletkenlerde belirgindir. Tip-2' de ise zayıftır [26].

Normal sıcaklıkta oldukça iyi iletken olan bazı yapıların süperiletkenlik özelliği göstermemesi veya oda sıcaklığında yalıtkan olan bazı yapılarında yüksek geçiş sıcaklıklarına sahip olmasına BCS teorisi açıklık getirmektedir. Şöyle ki, normal sıcaklıkta yapının gösterdiği yüksek direncin nedeni elektronların örgü ile fazlaca etkileşmesidir, düşük direncin nedeni ise serbest elektronların örgü ile etkileşim oranının düşük olmasıdır. Süperiletkenlik güçlü elektron örgü etkileşimi gerektirdiği için başta paradoks gibi görülen bazı gözlemler aslında mantıklı bir temele oturtulmuştur.

Cooper çifti elektronları zıt momentuma sahiptirler ve  $\vec{P} = 0$  momentumlu bozon gibi davranırlar. İkisi de BCS taban durumunu paylaşırlar. Diğer bozonların aksine Cooper çiftleri için uyarılmış durum mevcut değildir. Çünkü uyarılma, çiftin parçalanmasına neden olabilir. BCS taban durumu makroskobik dalga fonksiyonu  $\psi$ tarafından tanımlanabilir. Taban durumu enerjisi ile çiftlenmemiş elektronların enerji seviyeleri arasında  $\Delta$  kadar bir enerji boşluğu mevcuttur ve süperiletkende kaybolan direnç bu enerji boşluğu ile açıklanabilmektedir [22];

$$\Delta(0K) = 2\hbar\omega_D \exp(-\frac{1}{V_0 N(E_f)})$$
(2.15)

Denklemde  $\omega_D$ , teorik olarak bir örgüdeki atomların sahip olabilecekleri en büyük frekans olan debye frekansı,  $N(E_F)$  fermi enerjisinde bağımsız elektron durumundaki elektronların yoğunluğudur. Çifti bozmak için 2 $\Delta$  kadar enerjiye ihtiyaç vardır.  $V_0$ potansiyeli çok zayıf olmasına rağmen Taylor serisinden türetilememektedir. Kritik sıcaklık  $T_c$  de benzer ifade ile elde edilir [22];

$$k_{B}T_{C} = 1.14\hbar\omega_{D} \exp(-\frac{1}{V_{0}N(E_{f})})$$
(2.16)

 $k_B$  Boltzmann sabitidir. (2.15) ve (2.16) birleştirilecek olursa aşağıdaki eşitlik elde edilir. Bu eşitlik tip-1 süperiletkenler için tamamıyla başarılıdır [27];

$$\Delta(0K) = 1.76k_B T_C \tag{2.17}$$

BCS teorisi bir fiziksel teorinin yapması gerekeni yapmış, uzun zamandır deneysel olarak gözlemlenen özellikleri açıklamış ve deneysel olarak kanıtlanabilir olayları tahmin etmiştir. Fakat teori, sadece Tip-1 s-dalga süperiletkenliğini açıklayabilmiş ve yapılan deneyler yüksek sıcaklık süperiletkenlerde yeterince açıklayıcı olmadığını göstermiştir.

#### 2.1.4 High-T<sub>c</sub> süperiletkenlerde teorik çalışmalar

Düşük sıcaklık süperiletkenlerde elektron çiftleri birlikte hareket etmekte ve toplam orbital açısal momentum sıfır olmakta idi. Çiftlenmeden ise elektron ve fononlar arasındaki etkileşim sorumlu idi.  $HT_c$  sistemlerde yapılan akı kuantalanması ve Josephson tünellemesi gibi deneylerde süperiletkenliğin yine çiftler tarafından oluşturulduğu bulunmuş fakat bu çiftleri bir arada tutan kuvvetin tam olarak mahiyeti anlaşılamamıştır. Zira, yapılan izotop etkisi çalışmaları, bu sistemlerde elektron-fonon

etkileşiminin oldukça zayıf olduğunu ortaya koymuştur. Bu durumda çiftin bir araya gelmesi için sadece fononların yeterli olmayacağı ortadadır. Ayrıca yüksek sıcaklık süperiletkenlerinde çiftlerde d-dalga hali mevcuttur. S-dalga simetrisinde ikinci elektron küre ile çevrilmiş bir alanda olabilirken, d-dalga simetrisi genellikle elektronun 45 derece köşegen boyunca hareket edebileceği halleri temsil eder. D-dalga simetrisi ancak son zamanlarda yapılan çok detaylı deneylerle doğrulanmıştır. Ek olarak  $HT_c$  süperiletkenleri çok çeşitlilik arz eden sıra dışı vorteks durumları göstermektedir. Diğer bir sıra dışı durum ise bu malzemelerin normal durumda bile, bazı artık süperiletken boşluklar içerebilmeleridir. Bütün bu veriler geleneksel süperiletkenlik teorilerinin geliştirilmesini gerektirmiştir.

 $HT_c$  üzerine çok sayıda teorik yaklaşımda bulunulmuştur. Bunların en önemlilerinden biri 1987 yılında Anderson'un geliştirdiği Rezonans Valans Band (RVB) teorisidir [28]. Bu modele göre tek elektron spinleri örgü noktalarında lokalize olurlar ve bir diğeri ile etkileşerek antiferromanyetik düzenleme oluştururlar. Atomlar arası yer değiştirme, ara yere girme ve yük perdelemesi gibi uygun örgü durumunda komşu elektronlar (spin↓, spin↑) net bir çekim oluşturur. Bu çift, termodinamik bakımdan da kararlıdır ve akım bu elektron çifti tarafından taşınır.

Bir başka önemli yaklaşım 1989 yılında Varma tarafından yapılmıştır [29]. Varma süperiletkenliğin ortaya çıkışını bu yapılara özel, sıcaklığın düşmesi ile birlikte artan kuantum-mekaniksel dalgalanmaların varlığına bağlamış ve oldukça radikal bir fikir sunmuştur. Evrendeki bütün maddelerin özelliğine karar veren bu dalgalanmalar genellikle sıcaklığın düşmesi ile birlikte azalmaktadır. Bu dalgalanmaların özelliklerini ise Varma 1996' da açıklamıştır. Süperiletkenliğin, bakır oksitli yapılarda, elektrik akım döngülerinin kendiliğinden ortaya çıktığı ve Şekil 2.2' de şematize edildiği gibi bakırdan oksijen atomlarına sonra tekrar bakır atomlarına hareket ettiği yeni bir halin oluşumuyla ilgili olduğunu iddia etmiştir. Varma' nın teorisi kuantum mekaniksel dalgalanmaların aslında bu elektrik akım döngüleri olduğu sonucunu doğurmuştur.

Varma' nın bu teorisini Bourge ve grubu 2002' de yaptığı polarize olmuş nötronların kırınımını içeren deneylerinde direkt olarak gözlemlemişlerdir. Ve sonuçlarını Mayıs 2006' da yayınlamışlardır. Deneylerinde nötron demetinin yönünün manyetizasyonun yönü ile birlikte değişmekte olduğunu bulmuşlardır [30]. Bu, maddenin içindeki akım döngülerinin geometrik düzeni ile yakından ilgilidir.



Şekil 2.2. Chandra Varma'nın 1996 yılında açıkladığı elektrik akım döngüleri [30]

1969-2001 yıllarında Bell Laboratuarları' nda araştırmacı olarak çalışan Varma 2003'te katıldığı bir seminerde bakır-oksit yapılarda ne olduğuna dair devam eden ihtilafın Bourge ve grubunun yaptığına benzer çalışmalarla sona ereceğini ve artık bilimsel camiada bir konsensus sağlanacağını umduğunu söylemiştir [31].

Anderson ve Varma'dan başka Blacstead ve Dow' un kristaldeki zincir yapılardan yola çıkarak geliştirdiği teori [32], Chakravarty ve Tewari tarafından 2001 yılında geliştirilen D-yoğunluklu dalga durumundaki süperiletkenlere yönelik teori [33], Laughin tarafından 2002 yılında Gossamer superconductivity teorisi [34] ve daha başka çok sayıda bilim adamının high- $T_c$  süperiletkenliğine farklı yaklaşımları olmuş, fakat hiçbirinin üzerinde tam bir uzlaşmaya varılamamıştır.

#### 2.2 Süperiletkenlik Parametreleri

Her süperiletken malzemenin karakterini yansıtan temel süperiletkenlik özellikleri vardır. Bunlar, malzemenin normal fazdan süperiletken faza geçtiği geçiş sıcaklığı  $T_c$ , süperiletken malzemenin maksimum akım taşıma kapasitesini temsil eden kritik akım yoğunluğu  $J_c$ , süperiletkenlik özelliklerinin bozulmadan kaldığı uygulanan en yüksek manyetik alan değeri  $H_c$ , uygulanan manyetik alanın malzemeye girebildiği mesafe sızma derinliği  $\lambda$ , süperiletkenliğin oluşabildiği veya yok olabildiği en kısa mesafe uyum uzunluğu  $\xi$  ve süperiletkenlere has Meissner etkisidir.

#### 2.2.1. Geçiş Sıcaklığı, $T_c$

Süperiletken malzemede, termal titreşimlerin azalarak Cooper çiftlerinin oluşmasına imkan verdikleri sıcaklıktır. Bir başka deyişle dirençsiz iletim ortaya çıkmadan hemen önceki sıcaklık değeridir. Bu değere, geçiş sıcaklığı veya kritik sıcaklık denir ve  $T_c$  ile sembolize edilir. Genel olarak geçiş sıcaklığı küçük miktar safsızlıklara çok duyarlı değildir. Ama manyetik safsızlıklar kritik sıcaklığı düşürme eğilimindedirler.

Molibden ve İridyum gibi çok düşük geçiş sıcaklığı gösteren elementler manyetik safsızlığın küçük bir miktarından bile etkilenir ve süperiletkenlik özelliklerini tamamen kaybederler. Bu nedenle bu tip elementler ancak son derece saf oldukları zaman süperiletkenlik geçiş sıcaklığına sahip olurlar. Bununla birlikte Bakır, Demir ve Sodyum gibi bazı saf metaller ne kadar soğutulursa soğutulsun süperiletkenlik geçişi göstermezler. Metalik elementlerin bazılarında, çok sayıda alaşımda, bazı ağır fermiyonlarda, organik ve perovskit yapılarda süperiletkenlik geçişi görülebilmektedir.

Niyobyum 9.3 K' le en yüksek geçiş sıcaklığına sahip metaldir. Ancak bazı metalik alaşımlar daha yüksek geçiş sıcaklığına sahip olabilmektedirler. Tablo 2.1' de bu durumun bazı örnekleri verilmiştir.

**Tablo 2.1** Bazı alaşımların geçiş sıcaklıklarının, yapıtaşlarının geçişsıcaklıkları ile karşılaştırılması [21]

Alaşım	Ta-Nb	Pb-Bi	3Nb-Zr	Nb <sub>3</sub> Sn	Nb <sub>3</sub> Ge
$T_c({}^oK)$	6.3	8	11	18	23

Metal	Nb	Pb	Та	Sn	Zr	Bi	Ge
$T_c(^{o}K)$	9.3	7.2	4.5	3.7	0.8	S.İ. değil	S.İ. değil

Malzeme eğer saf ve fiziksel olarak mükemmel ise Şekil 2.3' te gösterildiği gibi soğutma esnasında süperiletken faza geçiş son derece keskin olur. Örneğin iyi bir Galyum numunesinde geçiş 10<sup>-5</sup> K kadar iken, saf olmayan ve kristal yapısı bozulmuş bir örnekte 1-4 K' e kadar çıkabilmektedir.



**Şekil 2.3** Süperiletkenlik özelliği gösteren ve göstermeyen materyallerin direnç-sıcaklık eğrilerinin karşılaştırılması

#### 2.2.2. Kritik akım yoğunluğu, J<sub>c</sub>

Süperiletkenler elektriği taşırken herhangi bir enerji kaybına yol açmadıkları için süperiletken malzemeden yapılmış çok ince teller bile, normal iletkenlerle karşılaştırıldıklarında, büyük miktarlarda akım taşıyabilirler. Bununla birlikte, süperelektronların net momentumu belirli bir limitin üzerine çıkarsa materyalin süperiletkenlik özelliği sona erer ve normal duruma geçer. Bu olay "Silsbee Etkisi" olarak isimlendirilir.

Sıcaklık geçiş sıcaklığının çok altında olsa bile bu durum değişmez. Süperiletken malzemenin taşıyabileceği maksimum akım değerine "Kritik Akım Yoğunluğu" denilir ve  $J_c$  olarak sembolize edilir. Kritik akım yoğunluğu sıcaklığa bağlı olarak değişir. Sıcaklık azaldıkça malzeme daha fazla akım taşımaya başlar. Şekil 2.4' te bir süperiletken tel için gerilim-akım grafiği verilmiştir.



**Şekil 2.4** *Tipik bir süperiletken malzemede gerilim-akım grafiği* [35]

#### 2.2.3. Kritik manyetik alan, H<sub>c</sub>

Bir malzemenin süperiletkenlik özellikleri sadece yüksek akım uygulanması ile değil aynı zamanda manyetik alan etkisi ile de son bulabilir. Uygulanan manyetik alan belirli bir değerin üzerine çıktığında süperiletkenlik özellikleri ortadan kalkar.

Aslında manyetik alanın süperiletkenliği yok etmesi doğrudan kritik akım yoğunluğu ile ilgilidir. Şöyle ki, bir süperiletkenin mükemmel diyamanyetizma göstermesini yüzeyde oluşan dirençsiz yüzey veya diğer adıyla perdeleme akımları sağlar. Bu akımlar, malzemenin içerisindeki manyetik akıyı sıfırlamak için dışarıdan uygulanan manyetik alana zıt yönde ve eşit büyüklükte manyetik alan üretirler. Uygulanan manyetik alan değeri arttıkça yüzey akımları kritik akım yoğunluğuna ulaşır ve geçerse metal süperiletkenliğini yitirir. Böylece manyetik alan artık malzeme içerisine rahatlıkla girebilir. Bu nedenle malzemenin süperiletken kalabilmesi için uygulanan manyetik alan belirli bir değerin altında kalmalıdır. Bu değere "Kritik Manyetik Alan" değeri denilir ve  $H_c$  olarak sembolize edilir. Deneysel olarak kritik manyetik alan değerinin hemen hemen sıcaklığın karesi ile orantılı olarak düştüğü bulunmuştur ve aşağıdaki formda verilmektedir.

$$H_{c}(T) \approx H_{0}(0) \left[ 1 - (T/T_{c})^{2} \right]$$
 (2.18)

Denklemde  $H_0$  mutlak sıfırdaki kritik alandır. Her süperiletken kendine özgü  $H_0$  ve  $T_c$  değerleri ile karakterize edilir. Bu değerler bilindikten sonra (2.18) eşitliği ile herhangi bir sıcaklıkta kritik manyetik alan değeri bulunabilir. Sıcaklık mutlak sıfıra yaklaştıkça kritik manyetik alan değeri önemli ölçüde artmaktadır. Ayrıca bu değerler uygulanan manyetik alanın yönüyle de değişebilmektedir.

#### 2.2.4. Tip-1 ve Tip-2 süperiletkenler

Önceki bölümde, süperiletken malzemelere uygulanan manyetik alan kritik değere ulaştığında malzemenin normal faza geçtiği açıklandı. Süperiletkenler bu geçişin şekline göre ikiye ayrılır. Tip-1 denilen ve daha çok ilk dönemde keşfedilen Civa, Kurşun, Kalay gibi çok saf metal ve metal alaşımlardan oluşan grupta manyetik alan etkisiyle süperiletkenlikten normal faza geçiş Şekil 2.5' te gösterildiği gibi keskindir.



Şekil 2.5 Tip-1 süperiletkenlerde manyetik alan etkisiyle faz geçiş şeması

Bu tip süperiletkenler genellikle oda sıcaklığında da iletkenlik özelliği gösterirler, BCS teorisine uyarlar ve süperiletken faza geçmek için çok düşük sıcaklığa ihtiyaç duyarlar. Tip-2 adı verilen diğer grupta şekil 2.6' da gösterildiği gibi faz geçişi keskin değildir. Daha çok metalik bileşik, alaşım ve sonradan keşfedilen  $HT_c$ süperiletkenlerde gözlenen bu özellikte iki farklı kritik manyetik alan değeri mevcuttur. Malzeme,  $B_{cl}$  denilen alt kritik alan değerinden daha küçük manyetik alan altında Tip-1 gibi davranır ve mükemmel diyamanyetizma gösterir. Alan  $B_{cl}$  değerinin üzerine çıktığı zaman malzemede "Karışık Durum" denilen girdaplı hal ortaya çıkar. Yani manyetik alan malzemeye sızarak girdaplar oluşturur. Şekil 2.7' de gösterilen manyetik vorteksler Lorentz kuvveti ile akımın akış yönüne dik olarak itilirler. Bu olayın neticesinde sistemden enerji alınır ve bu enerji direnç olarak karşımıza çıkar. Bu durumda malzeme kısmen normal kısmen süperiletken özellik gösterir. Alan, B<sub>c2</sub> olarak sembolize edilen üst kritik alan değerini aşarsa girdaplar genişleyerek birleşmeye başlar süperelektronlar tamamen kaybolur ve malzeme normal duruma geçer.



Şekil 2.6 Tip-2 süperiletkenin faz geçişi



Şekil 2.7 Karışık durumda bulunan Tip-2 süperiletkenin vorteks yapısı [36]

Tip-1 süperiletkenlerin  $B_c$  değerleri çok düşük olduğu için kullanım alanları geniş değildir. Tip-2 süperiletkenler çok daha büyük  $B_{c2}$  değerlerine sahiptirler. Örneğin YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub> süperiletken sistemi için  $B_{c2}$  değeri 100 Tesla mertebesine varabilmektedir.

#### 2.2.5. Meissner etkisi

Bir malzemenin süperiletken faza geçerken içindeki manyetik alanı dışlaması olayına Meissner veya Meissner-Ochsenfeld etkisi denilir. Süperiletken malzeme bu yönüyle mükemmel iletkenden farklılık gösterir. Mükemmel iletkene normal sıcaklıkta manyetik alan uygulanıp sıcaklık düşürülürse manyetik alanı dışlayamaz.

Ama bir süperiletkene normal sıcaklıkta manyetik alan uygulanarak içine nüfus etmesi sağlandıktan sonra geçiş sıcaklığının altına soğutulursa ortaya çıkan yüzey veya perdeleme akımlarının etkisi ile manyetik alan artık malzeme içerisine giremez. Şekil 2.8' de bu olay şematize edilmiştir.



**Şekil 2.8** *a)* Mükemmel iletken ve *b)* süperiletken malzemelerin manyetik alan altında sıfır dirençli duruma geçişi

Meissner etkisinin teorik açıklamasına London denklemlerinden ulaşılabilir.  $\vec{\nabla} \times \vec{J}_s = -\frac{1}{\mu_0 \lambda_L^2} \vec{B}$  formundaki London denklemi ve  $\nabla \times \vec{B} = \mu_0 \vec{J}_s$  formundaki Maxwell denklemleri birleştirilip manyetik alanın solenoidal yapısı göz önüne alınırsa aşağıdaki eşitliğe ulaşılır;

$$\nabla^2 \vec{B} = \frac{\vec{B}}{\lambda_L^2} \tag{2.18}$$

 $\vec{B}$ ' nin laplasyeni sıfıra eşit olduğu için malzeme içerisinde manyetik alan sızma derinliğinin ötesinde hızlı bir şekilde sıfıra düşer.

#### 2.2.6. Sızma (penetration) derinliği, $\lambda$

Bir süperiletkenin gösterdiği mükemmel diyamanyetizma özelliği gereği akım malzemenin içinden değil yüzeyinden geçer. Diğer taraftan akım tamamen yüzeyle sınırlı da değildir. Eğer sınırlı olsaydı akım tabakasının hiçbir kalınlığı olmaz ve akım yoğunluğu sonsuz olurdu. Bu da fiziksel olarak imkansızdır. Gerçekte olan şudur ki, elektrik yüzeyde kalınlığı yaklaşık 10<sup>-5</sup> cm mertebesinde olan bir katman boyunca akar. Bu kalınlığın tam değeri malzemenin cinsine göre değişir ve süperiletkenin özelliğine karar vermede önemli bir rol oynar.

Manyetik ortamdaki bir süperiletkende manyetik alanın içeri sızmaması için yukarıda bahsedilen yüzey katmanında perdeleme akımları oluşur. Bunun sonucu olarak dış manyetik akı yoğunluğu keskin bir şekilde değil perdeleme akımlarının oluşturduğu yüzey katmanı boyunca sıfıra düşer. Akının sıfırlanırken katettiği mesafeye "sızma derinliği" adı verilir. Bu nedenle her ne kadar süperiletkenin mükemmel diyamanyetizma özelliği gösterdiği söylensede gerçekte içeride bir miktar akı vardır.

London teorisi sızma derinliğinden çok daha kalın olan bir süperiletkende manyetik akı yoğunluğunun eksponansiyel şekilde sıfıra düştüğünü aşağıdaki formülle tahmin etmiştir [21].

$$B(x) = B(0)e^{-x/\lambda} \tag{2.19}$$

Denklemde yer alan B(0) yüzeydeki akı yoğunluğunu temsil etmektedir. Bu gerçeğe rağmen basit hesaplamalarda, uygulanan manyetik alanın akı yoğunluğu B(0)' ın  $\lambda$  derinliğine kadar sabit kalıp, bu derinlikte birdenbire sıfıra düştüğü yaklaşımında bulunulabilir. Ayrıca  $\lambda$  değerinin numune boyutuna göre çok küçük kaldığı durumlarda ki genelde böyledir numunenin mükemmel diyamanyetizma özelliği gösterdiği söylenebilir.

#### 2.2.7. Uyum (Coherence) uzunluğu, $\xi$

Uyum uzunluğu Pippard'ın 1953 yılında formülize ettiği önemli bir konsepttir. Bir süperiletken malzeme geçiş sıcaklığının altına soğutulduğunda iletim elektronlarının farklı bir düzen aldığı bilinir. Ayrıca bir süperiletkende normal ve süperelektronların paralel iletken iki farklı tabaka gibi bir arada bulunduğu da bilinmektedir. Termodinamik açıdan bakıldığında süperelektronlar bir şekilde normal elektronlardan daha yüksek bir düzenliliğe sahiptirler ve bir süperiletkendeki düzenlilik derecesi süperiletken elektronların yoğunluğu n<sub>s</sub> ile tanımlanabilir. Pippard n<sub>s</sub>' in pozisyona bağlı olarak hızlı bir şekilde değişmeyeceğini ancak saf bir süperiletken için  $10^{-4}$  cm mertebesinde olan belirli bir mesafenin kat edilmesi ile kaydadeğer bir değişiklik olacağını öngörmüştür ki bu mesafeye de "uyum (koherens) uzunluğu,  $\xi$ " adını vermiştir [37]. Koherens uzunluğunun bir sonucu olarak normal ve süperiletken bölgeler arasındaki mesafe keskin olamaz. Çünkü süperelektronların yoğunluğu normal bölgedeki sıfır değerinden, süperiletken bölgedeki n<sub>s</sub> değerine ancak uyum uzunluğu,  $\xi$ , kadar bir mesafede derece derece yükselir.

Uyum uzunluğunun önemli bir özelliği de malzemenin safsızlığına bağlı olmasıdır. Eğer malzemede safsızlık var ise uyum uzunluğu düşer. Mükemmel saflıkta süperiletkenin uyum uzunluğu ki bu, süperiletkenin karakteristik özelliklerinden biridir,  $\xi_0$  sembolü ile tanımlanır ve Pippard tarafından saf metaller için  $\xi_0$  değeri aşağıdaki eşitlikle tanımlanmıştır [38];

$$\xi_0 \approx \frac{\hbar v_F}{\pi \Delta(0)} \approx 0.18 \frac{\hbar v_F}{k_B T_c}$$
(2.20)

Denklemde  $k_{B_i}$  Boltzmann sabiti,  $\Delta(0)$ , süperiletken durumda mutlak sıfırda oluşan fermi yüzeyindeki enerji aralığı,  $v_F$ , Fermi enerji seviyesinde elektronların hızıdır.

Gerçek durumda ise yeterince saf olmayan süperiletkenler için uyum uzunluğu  $\xi$  sembolü ile gösterilir. Elektron ortalama serbest yolunun  $l_e$  ile gösterildiği ve safsızlıkların çok fazla olduğu süperiletkenlerde uyum uzunluğu yaklaşık olarak  $(\xi_0 l_e)^{\frac{1}{2}}$  değerine düşmektedir.

#### 2.2.8. Josephson etkisi

İki süperiletken metal eğer ince bir yalıtkanla örneğin 10-20 Å kalınlığında oksit tabakayla ayrılacak olursa elektron çiftlerinin yalıtkan tabakayı tünelleyerek dirençsiz geçmeleri mümkündür. Bu olay "Josephson Etkisi" olarak bilinir. Elektronların boşluğu geçişi potansiyel duvarının varlığından dolayı klasik fizik tarafından yasaklandığı için tünelleme gerçekleşir ve bu olay elektronun dalga yapısında olmasıyla ilgilidir. Sıradan metallerde elektronun akması için potansiyel farkına ihtiyaç duyulur ama burada böyle bir ihtiyaç söz konusu değildir. Josephson etkisini ilk olarak henüz 22 yaşında iken 1962 yılında İngiliz fizikçi Brian David Josephson bulmuştur [39]. Şekil 2.9' da Josephson etkisi gösterilmiştir.



#### Şekil 2.9 Josephson etkisi

Bir Josephson kavşağı birbiriyle ince bir yalıtkan tabaka ile ayrılmış iki süperiletkeni içerir. Josephson kavşağından akan akımın materyalin yapı ve geometrisine bağlı olarak bir kritik akım değeri vardır. Akım, kritik değerin altında kaldığı sürece birleşim bölgesinde voltaj düşüşü ve direnç olmaz. Eğer kavşak, içinden akım geçen bir telin yanına konulacak olursa, telden kaynaklanan manyetik alan kritik akım değerini düşürecektir. Yani kavşaktan geçen toplam akımda bir değişiklik olmayacaktır ama kritik akım değeri aşılacaktır. Böyle bir durumda kavşakta bir miktar direnç ortaya çıkacak ve akım dağılacaktır. Şekil 2.10' da Josephson kavşağının akım-voltaj ilişkisinin grafiği verilmiştir.



Şekil 2.10 Josephson kavşağının akım-voltaj ilişkisi

Josephson etkisi üç farklı şekilde gerçekleşir;

- a) DC-Josephson etkisi: Bu tip etki dış manyetik alanın yokluğunda doğru akımın yalıtkan tabakayı tünelleyerek geçmesiyle gerçekleşir.
- b) AC-Josephson etkisi: Sabit voltajın uygulanması ile fazın lineer olarak değişmesi ve akımın AC akımına dönüşmesi ile gerçekleşir. Bu şekilde Josephson kavşağı mükemmel bir voltaj-frekans dönüştürücüsü gibi davranır.

c) Ters AC Josephson etkisi: Kavşağın sadece bazı özel DC voltaj değerleri için DC akımını taşıması şeklinde ortaya çıkar. Kavşak bu durumda mükemmel bir frekans-voltaj dönüştürücüsü gibi davranır.

Josephson kavşağında, voltaj farkı tipik bir yarı iletkenden 10 kat daha hızlı iletilir. Bu, kısa açık-kapalı elektrik sinyallerine bağlı olan bilgisayar teknolojisinde oldukça önemli bir avantaj doğurur. Bilgisayarın hızı sinyal iletimi için geçen süreye bağlı olduğu için süper hızlı ve küçük boyutta bilgisayarların üretiminde Josephson kavşağı önemli bir işlev görebilir. Ayrıca bu düzenek yüksek duyarlıkta mikrodalga detektörlerin, magnetometrelerin ve SQUID' lerin üretiminde yoğun olarak kullanılmaktadır.

#### 2.3. Süperiletken Sistemler

Mevcut süperiletken sistemlerin, kristal yapıları, geçiş sıcaklıkları, iletim mekanizmaları ve yapıtaşları göz önünde bulundurularak iki ana gruba ayrılabileceği önceki bölümlerde tanımlanmıştı. Bunlardan birincisi hemen hemen tamamı Tip-1 davranış sergileyen, basit kristal yapılı düşük geçiş sıcaklıklı ve çoğu süperiletkenliğin ilk dönemlerinde keşfedilen saf metal, yarımetal, ametal ve bunların oluşturduğu saf alaşımlardır. Diğer grup ise 1986 yılından keşfedilen Tip-2 olarak bilinen, metal oksitlerin bir karışımı olan ve aynı zamanda seramiklerin fiziksel ve mekaniksel özelliklerini gösteren kompleks kristal yapılı yüksek sıcaklık süperiletkenleridir.

# 2.3.1. Metal, ametal, yarımetal ve alaşımlarından oluşan süperiletkenler, Tip-1 karakterliler

1911 yılında süperiletkenliğin Civa ile keşfedilmesinden sonra araştırmalar diğer metal ve alaşımlarla devam etmiştir. 1913' te Kurşunun 7.2 K' de, 1930' da Niyobyumun 9.2 K' de, 1941' de Niyobyum-Nitrat bileşiminin, 16 K' de, 1953' de Vanadyum-Silikon bileşiminin 17.5 K' de süperiletken özellik gösterdikleri bulunmuştur. Keşifler daha sonra Nb<sub>3</sub>Sn alaşımının 18 K, Nb<sub>3</sub>Al alaşımının 18.7 K geçiş sıcaklığı gösterdiklerinin bulunması ile devam etmiş ve 1972 yılında ise 23 K' le o zamana kadar bulunan en yüksek geçiş sıcaklığına sahip alaşım Nb<sub>3</sub>Ge keşfedilmiştir [40]. 1986' da Bednorz ve Müller CuO tabakalı süperiletken sistemi keşfetmeden önce yirmiden fazla elementin ve çok sayıda alaşımın süperiletken oldukları bulunmuş idi. Bu alanda yaşanan en çarpıcı gelişme 2001 yılında 40 K geçiş sıcaklığıyla MgB<sub>2</sub> alaşımının bulunması olmuştur. Şu ana kadar yapılan çalışmalarda oksit bazlı süperiletkenler dışında bu sıcaklığı geçen bir element veya alaşım olmamıştır [41].

Yapılan çalışmalarda ilgi odağı, metal ve metal alaşımları olmasına rağmen farklı ametal ve yarımetal elementlerin de süperiletkenlikleri incelenmiştir. Yarı metallerin genellikle sadece yüksek basınç altında süperiletkenlik özelliği gösterdikleri bulunmuştur. Aynı zamanda basınç artışıyla birlikte yapılarını da değiştirdikleri ve farklı fazlarda farklı  $T_c$  gösterdikleri bulunmuştur. Şekil 2.11' de gösterildiği gibi Si, As Te gibi yarıiletkenlerde kritik sıcaklık basınçla birlikte artmakta ve belirli bir basınç değerinde doyuma ulaştıktan sonra düşüş göstermektedir.

Diğer bir yarımetal olan Bor ki, aynı zamanda yarımetaller içerisinde en hafif olanıdır, MgB<sub>2</sub>' nin popülerlik kazanmasıyla birlikte bütün yönleriyle incelenmeye başlanmış ve 250 GPa basınç altında 11.2 K geçiş sıcaklığı gösterdiği bulunmuştur [42]. MgB<sub>2</sub>' nin keşfiyle birlikte sadece Bor elementi değil içinde Bor olan bir çok bileşim araştırılmış ama şu ana kadar 23 K' le YPd<sub>2</sub>B<sub>2</sub>C bileşimini geçen bir yapı olmamıştır [41].

Ametaller arasında Fosfor, Selenyum ve Kükürt elementlerinin basınç altında süperiletken oldukları 1970' li yıllarda bulunmuş, son zamanda yapılan çalışmalarda da Karbon, Oksijen, Brom ve İyotun yine basınç altında süperiletken oldukları bulunmuştur. Nitrojen ise basınç altında süperiletkenlik özelliği göstermeksizin bir yarı iletkene dönüşmektedir [42]. Bazı ametallerin basınçla birlikte kritik sıcaklıklarındaki değişim Şekil 2.11' de verilmiştir.

Elementler tek olarak ele alındığında bir çoğunun ancak mutlak sıfır yakınlarında geçiş sıcaklığına sahip olduğu görülür. Oysa, aynı elementlerin oluşturdukları alaşımlar daha yüksek geçiş sıcaklıklarına sahip olabilmektedir. Bu kısımda bahsedilen elementel veya alaşım süperiletkenlerin tamamına yakını Tip-1 özellik gösterirler, basit kristal yapıya sahiptirler, çoğu normal fazda da elektriği iletirler ve süperiletken faza geçiş için yüksek saflığa ihtiyaç duyarlar.


**Şekil 2.11.** Bazı (a) metal [43-46], (b) yarımetal [47-50] ve (c) ametal [51-54] elementlerin kritik sıcaklıklarına basıncın etkisi

### 2.3.2. HT<sub>c</sub> süperiletken sistemler, Tip-2 karakterliler

Yüksek sıcaklık süperiletkenliğine ilk adım, Bednorz ve Müller' in 1986' da La<sub>2-x</sub>Ba<sub>x</sub>CuO<sub>4</sub> seramiğinin 30 K geçiş sıcaklığına sahip olduğunu bulmaları ile atılmıştır. Daha önceki yıllarda da toplam sayıları 400' ü bulan çok sayıda oksitli bileşiğin süperiletkenlik özellikleri incelenmiş fakat geçiş sıcaklıkları 5-20 K arasında bulunmuştur [55]. Fakat bu oksitli yapıların hiçbirisinin CuO tabakaları içermediği görülmektedir. Bednorz ve Müller'in çalışmasının ardından "Bakır-Oksit Seramikleri" veya "Yüksek Kritik Sıcaklık Süperiletkenleri" adı verilen bu grupta önce Ba yerine Sr ve Ca katkılayarak La<sub>2-x</sub>Sr<sub>x</sub>CaCuO<sub>4</sub> sistemi ile 60 K geçiş sıcaklığına ulaşılmıştır. Daha sonraki çalışmalarda YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub> (YBCO) ile 92 K, Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>Ca<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>10</sub> (BSCCO) ile 110 K, Tl<sub>2</sub>Ba<sub>2</sub>Ca<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>10</sub> (TBCCO) ile 125 K, HgBa<sub>2</sub>Ca<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>8+x</sub> ile 136 K geçiş sıcaklığına ulaşılmıştır [56]. Bu malzemelerin kristal yapıları, CuO<sub>2</sub> düzlemli ve eksik Oksijene sahip perovskit (kübik, tetragonal veya ortorombik) yapılar olarak tanımlanabilir. Yüksek anizotropiye yani süperiletkenlik özelliklerinde yön duyarlılığına sahiptirler. Süper akımlar Josephson çiftlenimi ile birbirine bağlanmış CuO<sub>2</sub> düzlemleri boyunca akar.

 $HT_c$  süperiletkenlerinin  $10^{21}$ /cm<sup>3</sup>, lük taşıyıcı yoğunluğu elementel düşük sıcaklık süperiletkenlerinin yaklaşık iki katı kadardır. Uyum uzunluğu ise düşük sıcaklık süperiletkenlerine göre daha küçüktür ve düzlemlere göre farklılık gösterir. Yaklaşık değeri ise CuO<sub>2</sub> düzlemine dik doğrultuda yaklaşık 3 Å, düzlem boyunca 10 Å' dur. Bu değerden, kritik akım yoğunluklarının, akımın CuO<sub>2</sub> düzlemi boyunca olduğu durumda, dik olduğu duruma göre daha yüksek olduğu sonucu çıkarılabilir. Bu malzemelerde iletim genellikle p-tipi olarak tespit edilmiştir. Hepsi Tip-2 özellik gösterir.

Yüksek sıcaklık süperiletkenlik araştırmalarının ilk basamağını teşkil eden La<sub>2-x</sub>Ba<sub>x</sub>CuO<sub>4</sub> sisteminin kristal yapısı düzlemsel olup tetragonal simetriye sahiptir. Tek kristal yapıda kolaylıkla elde edilebilir ve oksit bazlı diğer süperiletkenlere göre mekanik olarak en sert olanıdır.

Lantanlı sistemden bir yıl sonra yapıda La yerine Y katkılayarak YBCO sistemi elde edilmiş ve süperiletkenlik tarihinde ilk defa geçiş sıcaklığı 92.4 K ile sıvı Azot (77 K) sıcaklığının üzerine çıkarılmıştır. YBCO sistemi YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub> kimyasal formülü ile tanımlanmaktadır. Sistem genel olarak tabakalı bir yapıya sahip olmakla beraber Oksijen stokiyometrisinin değerine göre kristal yapısı ve iletkenlik özellikleri farklılık göstermektedir. Şöyle ki,  $0 \le x \le 0.2$  ise sistemin geçiş sıcaklığı 90 K civarında,  $0.3 \le x \le 0.55$  değerinde geçiş sıcaklığı 60 K civarında,  $0.55 \le x \le 1$  olması durumunda ise sistem ortorombik fazdan tetragonal faza geçerek süperiletkenlik özelliğini kaybetmekte ve antiferromanyetik bir yarı iletkene dönüşmektedir [40]. Bu nedenle ısıl işlem esnasında yetersiz oksijen verilmesi durumunda istenilen süperiletken faz elde edilemeyebilir. YBCO *HT<sub>c</sub>* süperiletken yapılar içerisinde en düşük anizotropiye sahip olanıdır. Aynı zamanda diğer sistemlere oranla daha güçlü manyetik alanlarda daha yüksek akım yoğunluğu taşıyabilmesi gibi bazı avantajlı yönleri vardır.

YBCO sisteminin keşfini takip eden yıl içerisinde Talyum bazlı ve sonradan TlSr<sub>2</sub>Ca<sub>n-1</sub>Cu<sub>n</sub>O<sub>2n+3</sub> ve Tl<sub>m</sub>Ba<sub>2</sub>Ca<sub>n-1</sub>Cu<sub>n</sub>O<sub>2n+y+2</sub> şeklinde iki farklı temel formunun olduğu anlaşılan yapı bulunmuştur. Bu temel yapılardan ilkinde n=1,2,3 değerleri için üç farklı yapı ve ikincisinde m=1 için n=1,2,3,4,5 ve m=2 için n=1,2,3,4 olmak üzere dokuz farklı yapı elde edilebilir. Bu yapılar içerisinde en yüksek geçiş sıcaklıkları m=1 ve n=3 yapısında 133 K ile gerçekleşir. Diğer fazlar için ise geçiş

sıcaklığı 50-127 K arasında farklılık gösterir. Toksik özelliği nedeniyle diğer sistemlere göre hazırlanması zor ve risklidir [57].

Aynı yıl içerisinde keşfedilen bir başka sistem ise Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>Ca<sub>n-1</sub>Cu<sub>n</sub>O<sub>2n+4+y</sub> genel formülü ile belirtilen ve n=1,2,3 değerleri için üç farklı fazı olan BSCCO sistemidir. Geçiş sıcaklıkları n=1,2 ve 3 değerleri için sırasıyla yaklaşık 20, 85 ve 110 K olmaktadır. Bu fazlarda kristal yapıların benzer olmakla birlikte farkın CuO<sub>2</sub>-Ca-CuO<sub>2</sub> dilimlerinin sayısından veya CuO düzlemlerinin sayısından kaynaklandığı bulunmuştur. Temel geometri oldukça basit fakat yapı, oksijen stokiyometrisinden, katyon düzensizliğinden, tabaka yığılma hatalarından ve periyodik olmayan davranıştan dolayı komplekstir. XRD, HTEM ve Nötron saçılım analizleri gibi detaylı kristal yapı çözümlemelerinde sistemin kristal yapısının ortorombik yada tetragonal olduğu bulunmuştur.

 $HT_c$  süperiletken ailesine son olarak katılan üye Civa bazlı ve Hg<sub>m</sub>Ba<sub>2</sub>Ca<sub>n</sub>. <sub>1</sub>Cu<sub>n</sub>O<sub>2n+2+x</sub> genel formüllü HBCCO sistemidir. M=1 için 6 ve m=2 için 3 farklı faza sahiptir. M=1 fazı için n=1-6 değerlerini alabilmekte ve geçiş sıcaklıkları 97-135 K arasında gerçekleşmektedir. M=2 için n=2-4 arası değerler almakta ve geçiş sıcaklıkları 44-114 K arasında farklılık göstermektedir. Yüksek basınç altında  $T_c$ , 160 K' e kadar çıkarılabilmiştir. Kristal yapısı BSCCO' ya benzerlik gösterir ve tetragonal simetriye sahiptir. Civanın çabuk buharlaşması ve toksik özellikte oluşu bu malzemenin üretimini zorlaştıran etkenler arasındadır.

# 3. MgB<sub>2</sub> SÜPERİLETKEN ALAŞIMI

Süperiletkenlik araştırmalarında yeni bir dönemin habercisi olan La-Ba-Cu-O sisteminden sonra sırasıyla Y-Ba-Cu-O sistemi, Bi-Sr-Ca-Cu-O sistemi, Tl-Ba-Ca-Cu-O süperiletken sistemleri keşfedilmiştir. Bu yapıların geçiş sıcaklığı 1986 öncesi keşfedilen süperiletkenlerle karşılaştırılamayacak kadar yüksek olduğundan son yirmi yıla bu ve benzer sistemler üzerine araştırmalar damgasını vurmuştur. Bu süreçte yaşanan tek istisna 2001 yılında keşfedilen, 40 K geçiş sıcaklığı, basit kimyasal yapısı, yüksek akım yoğunluğu, düşük maliyeti, BCS teorisine uyum göstermesi ve daha bir dizi avantajı ile rekoru 23 K geçiş sıcaklığı ile elinde bulunduran Nb<sub>3</sub>Ge alaşımından devralan ve tamamen oksit bazlı sistemlere yönelmiş olan ilgiyi tekrar basit bileşik ve alaşımlara yönlendiren MgB<sub>2</sub> metal alaşımıdır.

# 3.1. MgB<sub>2</sub> Süperiletken Sisteminin Genel Özellikleri

MgB<sub>2</sub>, 1950' li yıllardan beri elektriksel özellikleri dışında birçok yönüyle bilinen ve laboratuarlarda değişik amaçlarla kullanılan bir alaşımdır. Fakat süperiletken özellik gösterdiği ancak 2001 yılında bulunmuştur. MgB<sub>2</sub>' nin 40 K geçiş sıcaklığının diğer alaşımlarla karşılaştırıldığında yüksek,  $HT_c$  süperiletkenleri ile karşılaştırıldığında oldukça düşük olduğu görülür. Buna rağmen MgB<sub>2</sub> alaşımına olan yoğun ilginin sebebini aşağıda sıralanan özelliklerine bağlamak mümkündür;

- Manyetik alanın varlığında bile gösterdiği yüksek kritik akım yoğunluğu,
- Akımın kolaylıkla akmasını sağlayan tanecikler arası güçlü bağlantı,
- *HT<sub>c</sub>* süperiletkenlerin aksine düşük anizotropi değeri,
- *HT<sub>c</sub>* süperiletkenlere göre daha büyük uyum uzunluğuna sahip olması,
- Niyobyum tabanlı geliştirilen mevcut elektronik sistemlere, daha yüksek çalışma sıcaklığı ve daha hızlı işlem yapabilme kabiliyeti sunması,
- Basit kristal yapısı.

 $MgB_2$  alaşımı BCS teorisine uyum göstermesi ve bazı özellikleriyle geleneksel düşük sıcaklık süperiletkenlerine bazı özellikleri ile de  $HT_c$  süperiletkenlerine benzemektedir.

# 3.1.1. Kristal yapısı

MgB<sub>2</sub> basit hekzagonal kristal yapısına sahiptir. Kristal yapısının tabakalı olması  $HT_c$  süperiletkenlerle benzerlik göstermektedir. Kristalde bal peteğine benzer şekilde hizalanmış altıgen B tabakaları Mg atomları ile birbirinden ayrılmıştır. Mg atomları altıgenin merkezine gelecek şekilde üstte ve altta yer alır ve bu haliyle 1940' da bulunan ve B alaşımlarının çoğunun uyum gösterdiği AlB<sub>2</sub> tipi kristal yapısına da uymaktadır, Şekil 3.1. Oda sıcaklığında örgü parametreleri a = b = 3.086 Å, c = 3.521 Å olup P6/mmm uzay grubuna girmektedir.



**Şekil 3.1** *MgB*<sup>2</sup> *inn kristal yapısı* 

Kristal ve elektronik yapı olarak MgB<sub>2</sub>, grafite benzerlik göstermektedir. MgB<sub>2</sub>' deki B tabakalarına benzer olarak grafit yapıda da C tabakaları mevcuttur. Grafit yapıda olduğu gibi MgB<sub>2</sub>' deki B tabakaları da sp<sup>2</sup> hibrit orbitalleri oluşturur ve bu orbitaller vasıtasıyla B atomları kendi aralarında  $\sigma$  bağı oluşturur.

 $\Sigma$ -bağı, elektron paylaşımı veya örtüşümü sonucu oluşan kimyasal kovalent bağın en kuvvetli formudur. B ve Mg düzlemleri arasındaki bağ da, B' un boş olan p<sub>z</sub> orbitali ile Mg' un dış yörüngesinde bulunan s orbital elektronları aracılığı ile oluşan metalik yapıdaki π bağıdır. Π-bağı, σ-bağına göre daha zayıf yapıdadır. Σ-bağı düzlem içinde oluştuğu için iki boyutlu, π-bağı düzlemler arası oluştuğu için üç boyutludur.

#### 3.1.2. Geçiş sıcaklığı

BCS teorisi çerçevesinde, düşük kütleli elementler yüksek fonon frekansı üretirler ve bu olay da geçiş sıcaklığının artması sonucunu doğurur. Bu nedenle elementler arasında en yüksek geçiş sıcaklıklarının hafif elementlerde veya hafif element içeren yapılarda olacağı tahmin edilmiştir.

Nitekim, geçiş sıcaklıklarının Be elementi için 10 K, Li için 20 K, B için 11 K ve son olarak da, B düzlemlerinin süperiletkenlikte etkili olduğu düşünüldüğü için, MgB<sub>2</sub> alaşımında 40 K bulunması bu tahminleri doğrulamıştır [58, 59]. Aynı zamanda BCS teorisine göre termal salınımların artmasından dolayı 30-40 K sıcaklık aralığı, kritik sıcaklığın ulaşabileceği en üst sınırdır.

Aslında B' lu yapılarda süperiletkenlik araştırmalarının geçmişi 1949' lu yıllara dayanmaktadır. Bu yılda Kiessling, TaB için geçiş sıcaklığını 4 K bulmuştur [60]. 1970' de Cooper ve arkadaşları, 1979' da Leyarovski ve Leyarovska farklı B bileşimlerini incelemişlerdir. Fakat bulunan bazı sonuçlar birbiri ile farklılık arzetmektedir. Şöyle ki, örneğin TaB<sub>2</sub> bileşiği üzerine 1979' da yapılan çalışmalarda süperiletkenlik özelliği bulunmamış ama 2001' de 9.5 K geçiş sıcaklığı bulunmuştur [61, 62]. Aynı şekilde, Kaczorowski grubu ZrB<sub>2</sub>' de süperiletkenlik özelliği bulamazken [62], aynı yıl (2001) Gasparov grubu 5.5 K geçiş sıcaklığı bulmuştur [63]. Benzer durum BeB<sub>2</sub> alaşımında da yaşanmış, Felner tarafından süperiletkenliğe rastlanılmamış, fakat Young grubu alaşımın BeB<sub>2.75</sub> oranlı yapısında 0.7 K geçiş sıcaklığı bulmuştur [64, 65].

Yukarıdaki sonuçlar göstermektedir ki, B' lu bileşikler ailesi elementlerin molar birleşme oranlarına karşı çok hassastır. Bazen stokiyometrik yapıyı, yani element oranlarının tamsayı ile ifade edildiği kimyasal formasyonu terk edip, stokiyometrik olmayan, yani elementlerin kesirli oranlarda bir araya gelip bileşik oluşturduğu formasyonu tercih ederek daha yukarı seviyede geçiş sıcaklıkları elde edilebilir. Nitekim aynı durum MgB<sub>2</sub> alaşımı için de geçerli olabilir. Belki de MgB<sub>2</sub> stokiyometrik olmayan bir yapı da daha yüksek bir geçiş sıcaklığına sahip olabilir.

Stokiyometrik olmama ihtiyacıyla  $HT_c$  süperiletkenlerde de zaman zaman karşılaşılsa bile bu ihtiyaç düşük sıcaklık süperiletkenlerde daha sık ortaya çıkar. Aşağıdaki tabloda MgB<sub>2</sub> alaşımının geçiş sıcaklığı ile diğer bazı B' lu yapıların geçiş sıcaklıkları karşılaştırılmıştır.

Үарі	Geçiş Sıcaklığı (K)
MgB <sub>2</sub>	40
YPd <sub>2</sub> B <sub>2</sub> C	23
LuNi <sub>2</sub> B <sub>2</sub> C	16.1
ScNi <sub>2</sub> B <sub>2</sub> C	15.6
YNi <sub>2</sub> B <sub>2</sub> C	15.6
LuRh <sub>4</sub> B <sub>4</sub>	11.76
YRh <sub>4</sub> B <sub>4</sub>	11.34
$Mo_{0.85}Zr_{0.15}B_{2.5}$	11.2
ErNi <sub>2</sub> B <sub>2</sub> C	10.5
$LaPt_2B_2C$	10
YPt <sub>2</sub> B <sub>2</sub> C	10
LuRuB <sub>2</sub>	9.99
$TmRh_4B_4$	9.86
YRu <sub>2</sub> B <sub>2</sub> C	9.7
$Y(Rh_{0.85}Ru_{0.5})_4B_4$	9.56
$Lu(Rh_{0.85}Ru_{0.15})_4B_4$	9.16
NbB	8.25
MoB <sub>2</sub>	
MoB <sub>2.5</sub>	8.1

**Tablo 3.1.** Günümüzde mevcut olan bazı B' lu alaşımların  $T_c$  değerleri [41]

# 3.1.3 İki bantlı yapı ve süperiletkenliğin oluşumu

MgB<sub>2</sub> dışında günümüze kadar elde edilen bütün süperiletken materyallerde tek enerji aralığı mevcuttur. MgB<sub>2</sub>'nin keşfinden sonra bir B bileşiği için yüksek olan 40 K geçiş sıcaklığının nasıl ortaya çıktığına dair birçok teorik çalışma yürütülmüş ve MgB<sub>2</sub>' de iki farklı enerji aralığı olabileceği sonucuna ulaşılmıştır. Bu tahminler daha sonra gerçekleştirilen spektroskopik ölçümler (tünelleme [66], far-infrared optik [67], fotoemisyon [68], nokta-kontak [69]) ve düşük sıcaklıkta fiziksel özelliklerin incelenmeleri (öz ısı [70], mikrodalga yüzey ölçümü [71], sızma derinliği [72]) sonucunda doğrulanmıştır. Şu anda Fermi seviyesini kesen ve farklı iki karakter gösteren iki bandın varlığı üzerine fikir birliği sağlanmıştır.

Kristal yapı bölümünde bahsedilen ve kristali bir arada tutan bağlar süperiletken cift olusumunu farklı seviyelerde olmakla birlikte desteklemekte ve farklı birer iletim bandı gibi davranmaktadır.  $\Sigma$ -bandı iki B atomunun sp<sup>2</sup>-hibrid orbitalleri arasında olusur. Π-bandı ise B' un p<sub>2</sub>-orbitalleri ile Mg' un s-orbitallerinin üst üste örtüsmesi ile oluşur. Mg, dış yörüngesindeki iki adet elektronunu her bir  $\pi$ -bandına diğer bir deyişle komşu B atomlarının boş olan p<sub>z</sub>-orbitallerine dağıtır ve Mg tamamen iyonize olur.  $Mg^{+2}$  iyonlarının çekici potansiyeli p<sub>z</sub>-orbitallerinde,  $\sigma$ -bandındaki elektronlara oranla çok daha fazla hissedilir. Bu olay  $\pi$ -bandının enerjisini düşürür ve elektronların  $\sigma$ bandından  $\pi$ -bandına akmasına neden olur. Bu yolla  $\sigma$ -bandında boşluklar (hole) oluşur. Yapılan Hall ölçümlerinin sonucunda  $HT_c$  süperiletkenlere benzer olarak boşluk katsayısı, R<sub>H</sub>' nin pozitif değerde olduğu bulunmuş ve yükün bu boşluklar vasıtasıyla taşındığı öngörülmüştür. Bu öngörü, normal fazda yapılan Hall ölçümlerinden de R<sub>H</sub>' nin pozitif bulunması, yapıya elektron ve hole katkılaması gibi deneylerle desteklenmiştir. Aynı zamanda yapının basınca verdiği tepki ve izotop etkisi gibi özellikler etkileşimin BCS teorisi tarafından öngörüldüğü şekilde fononlarla gerçekleştiğine dair ipuçlarıdır [73].

MgB<sub>2</sub> sisteminde Mg atomları elektron, B atomları hole kaynağı gibidir. Bu yönüyle B tabakaları  $HT_c$ ' deki Cu-O düzlemlerine benzemektedir. 300 K' de MgB<sub>2</sub>' de hole yoğunluğu  $1.7 - 2.8 \times 10^{23}$  hole/cm<sup>3</sup> olarak bulunmuştur [74]. Bu değer Nb<sub>3</sub>Sn ve YBCO gibi yapıların yük taşıyıcı yoğunluklarının iki katına yakındır. Ayrıca, MgB<sub>2</sub> düzlemlerine elektron veya boşluk eklenmesinin (genellikle alkali metal veya halojen grubu elementlerinin katkılanması yolu ile) ortaya çıkardığı etkiler  $HT_c$  bileşiklerinin davranışları ile benzerlik göstermektedir. 2006 yılında Chavarria ve grubu tarafından yapılan çalışmada sisteme Al ve C katkılanarak her bir atoma ekstra bir elektron verilmiştir [75]. Sonuçta  $T_c$ ' nin düşüşü, elektronların  $\sigma$ -bandını doldurarak,  $\sigma$ taşıyıcılarının sayısını düşürmesine bağlanmıştır.

MgB<sub>2</sub>' nin keşfinden sonra enerji aralığının yapısını anlamaya yönelik yapılan ilk deneylerde enerji aralığının ( $\Delta$ ) 2 ila 8 meV değerleri arasında olduğu bulunmuş ve bu büyük farkın nereden kaynaklandığını anlamak için ilk paragrafta bahsedilen tekniklerle gerçekleştirilen daha detaylı çalışmalarla birden fazla bandın varlığı ortaya çıkarılmıştır. Çiftlerin bağlanma enerjisi olarak da tanımlanabilecek ve sıcaklıkla doğrudan ilişkili olan enerji aralığı büyüklüğü,  $\sigma$ -bandı için, 4K sıcaklıkta, 6.4-7.2 meV büyüklüğündedir. Yapılan çalışmaların ortalama değerlerinin alınması ile Şekil 3.2. elde edilmiştir.

Sadece B tabakaları ve Fermi yüzeyinin bir kısmı ile sınırlı olan bölgede oluşan bu güçlü çiftlenim asıl olarak süperiletkenlikten sorumlu yapıdır. Bununla birlikte Fermi yüzeyinin geri kalan bölümlerini oluşturan ve 4 K sıcaklıkta 1.2-3.7 meV büyüklüğünde olan  $\pi$ -bandı ise daha zayıf çiftlenmelerin olduğu bölgedir. Enerji aralığı s-dalga simetrisine (daima aynı işarette ve yüzey boyunca sıfırdan farklı) sahiptir. MgB<sub>2</sub>' de Fermi enerji yüzeyinde, iki tabakası B' un p<sub>x,y</sub>-orbitallerinin  $\sigma$ -bağlarından, diğer ikisi ise p<sub>z</sub>-orbitallerinin  $\pi$ -bağlarından gelen dört tabaka mevcuttur.

Fermi yüzeyinde süperiletken enerji aralığının değişimi Choi ve grubu tarafından açılı yüksek çözünürlüklü fotoelektron mikroskobisi ile incelenmiş ve şekil 3.3' deki enerji dağılımı elde edilmiştir. Aynı zamanda ilk defa MgB<sub>2</sub> için, aralık değerinin dağılımı bölgesel olarak şekil 3.3.c' deki gibi elde edilmiştir.  $\Sigma$ -bağlarından kaynaklanan iki tabaka silindir şeklinde sekiz parçaya bölünmüş olarak  $\Gamma$ - $\Gamma$  köşe çizgileri çevresinde oluşmuştur.

Π-bağlarından kaynaklanan diğer iki tabaka ise K-M ve H-L çizgilerine paralel tünel şeklinde oluşmuştur. Fermi enerjisindeki durumların yoğunluğunun %44' ü σ-tabakalarından, %56' sı  $\pi$ -tabakalarından kaynaklanmaktadır.



Şekil 3.2. MgB<sub>2</sub>'deki iki farklı enerji aralığının sıcaklığa bağımlılığı [76]



**Şekil 3.3.** *a*, *b*) 4 K'de Fermi yüzeyinde  $MgB_2$ ' nin süperiletken enerji aralığı, renk skalası ile gösterilmiştir. c) Bor tabakasında ve bu tabakanın 0.05 nm, 0.1 nm, 0.15 nm, 0.18 nm üzerinde süperiletken enerji aralığının dağılımı [76]

## 3.1.4 MgB<sub>2</sub>' de anizotropi

Süperiletkenlikte anizotropi, kristal yapıda kritik manyetik alan ve iletkenlik değerleri gibi karakteristik özelliklerin kristal eksenlerine göre farklılık göstermesidir. Anizotropi, MgB<sub>2</sub>' nin anlaşılmasında ve pratik uygulamalarında temel öneme sahiptir, pinning ve kritik akım değerlerini önemli ölçüde etkilemektedir.

MgB<sub>2</sub>' nin anizotropi değeri  $HT_c$  süperiletkenleri ile karşılaştırıldığında daha düşük değerdedir ve MgB<sub>2</sub>' nin tek kristal formatında mevcut olduğu gibi, film ve bant şeklindeki farklı formatlarında da mevcuttur. Fakat, anizotropi değeri yapının formatına, saflığına, sıcaklığına ve elde ediliş koşullarına göre farklılık göstermektedir. Bu nedenle farklı gruplar tarafından farklı değerler elde edilebilmektedir. Fakat, genellikle anizotropi ölçümlerinde en güvenilir neticeyi tek kristal yapılar vermektedir. Ayrıca detaylı inceleme yapıldığında  $\sigma$  ve  $\pi$ -bandlarının da anizotropi değerlerinin çok farklı olduğu görülür. Genelde  $\sigma$ -bandı  $\pi$ -bandına göre daha fazla anizotropi gösterir. MgB<sub>2</sub>' nin üst kritik manyetik alan değeri için yapılan ölçümlerde elde edilen sonuçlarda, kısmi kristalize olmuş yapılarda anizotropi oranı,  $\gamma = H_{c2}^{IIab} / H_{c2}^{IIc}$ , 1.1-1.7 arasında bulunmuştur. Tek kristal yapılarda bu değer 1.7-2.7 arasında iken, tozlarda 5-9 değerlerine yükselmektedir [41]. Yönlenmiş kristal yapıda gerçekleştirilen kritik akım yoğunluğu ölçümlerinde ise anizotropi sıcaklıktan hemen hemen bağımsız olmak üzere  $J_c^{ab} / J_c^c \approx 1.5$  civarındadır [77].

#### 3.1.5. Uyum (Coherence) uzunluğu

MgB<sub>2</sub>' nin en avantajlı yönlerinden biri geniş uyum uzunluğuna sahip olmasıdır. Uyum uzunluğunun büyüklüğü, kristal eksenlerine ve malzemenin formuna göre farklılık göstermektedir. Yani, uyum uzunluğu için de anizotropi söz konusudur.

Farklı gruplar tarafından yapılan ölçümlerde tek kristal yapı için uyum uzunluğu  $\xi_{ab}(0) = 61-65$  Å,  $\xi_c = 25-37$  Å değerlerindedir.  $\xi_{ab}$  değeri ince filmler için 37 Å değerine kadar düşebilmekte ve toz formu için de 114 Å değerine varabilmektedir.  $\xi_c$  değeri ise  $\xi_{ab}$  değeri kadar olmasa bile malzemenin formuna göre farklılık göstermekte ve 17-41 Å arasında farklı değerler alabilmektedir [78]. Bu değerler BSCCO' nun n=2 fazı için  $\xi_{ab} \approx 4$  Å,  $\xi_c \approx 0.2$  Å, YBCO için  $\xi_{ab} \approx 30$  Å,  $\xi_c \approx 4$  Å olarak bulunmuştur ki bu da MgB<sub>2</sub>' nin uyum uzunluğunun diğer süperiletkenlerin uyum uzunluğundan daha büyük olduğunu ortaya koymaktadır.

MgB<sub>2</sub>' nin uyum uzunluğu, tanecik boyutları ile mukayese edilecek olursa daha büyük olduğu, yani tanecik sınırlarını aştığı görülür. Bunun anlamı şudur; tanecik sınırları akımın ilerlemesine herhangi bir sınırlama getirmez veya tanecik yöneliminden tamamen bağımsız olarak yüksek kritik akım değerleri elde edilebilir.  $HT_c$ süperiletkenlerde kritik akım değeri tanecikler arası zayıf bağ etkileri tarafından sınırlanır, MgB<sub>2</sub>' de ise bu değere pinning özellikleri karar verir. Bu nedenle örneğin PIT metodu ile elde edilmiş yuvarlak tel gibi sıradan çok kristalli MgB<sub>2</sub> yapılar bile yüksek kritik akım yoğunluğu değerlerine sahip olabilmektedirler.

# 3.1.6. İzotop etkisi

İzotop etkisinin varlığı MgB<sub>2</sub>' de süperiletken çift oluşumunun fonon etkisi ile olduğunun önemli bir göstergesidir. MgB<sub>2</sub> alaşımında süperiletkenliğin yüksek sıcaklıkta oluşumunda asıl katkıyı sağlayan <sup>11</sup>*B* elementi daha hafif izotopu, <sup>10</sup>*B* ile yer değiştirdiğinde geçiş sıcaklığının 1 K arttığı gözlenmiştir [79].

Bu gözlem, hafif izotopun daha yüksek fonon frekansı üretmesine bağlanmış ve çiftlenimde BCS teorisi tarafından öngörülen fonon etkisinin varlığını desteklemiştir.

BCS teorisi izotop katsayısı,  $\alpha$ ' yı aşağıdaki eşitlikle tanımlar.

$$T_c M^{\alpha} = C \qquad \qquad 3.1$$

Burada M, atomik kütleyi, C ise sabit değeri temsil eder. Süperiletkenliğin elektronfonon çiftlenimiyle gerçekleştiği geleneksel süperiletkenlerde, BCS teorisi izotop katsayısını 0.5 olarak kabul etmektedir. Nitekim Hg, Pb, Sn ve Zn gibi basit metaller için izotop katsayısı 1/2 değerindedir. Yukarıda bahsedilen ve  $\Delta T'$  nin 1 K bulunduğu B izotop çalışması ilk olarak Bud'ko ve grubu tarafından yapılmış ve bu çalışmada B izotop katsayısı,  $\alpha_B \approx 0.26$  bulunmuştur.

Benzer şekilde Hinks ve grubu da Mg ve B için izotop etkisi çalışması yapmış ve yapı  ${}^{24}Mg$ ,  ${}^{26}Mg$ ,  ${}^{11}B$ ,  ${}^{10}B$  izotoplarının bütün kombinasyonları ile elde edilmiştir [80]. Yapıda  $\alpha_{Mg} = 0.02$  ve  $\alpha_B \approx 0.3$  olarak bulunmuş ve Mg izotoplarının T<sub>c</sub>' ye etkisi B elementinden 10 kat daha düşük olarak sadece 0.1 K bulunmuştur.

Bu değerler aynı zamanda süperiletkenlik oluşumunda B elementinin katkısının daha fazla olduğunu da göstermektedir. Şekil 3.4' te MgB<sub>2</sub>' de izotop etkisi verilmiştir. Doğal Mg' lu yapının geçiş sıcaklığının izotoplarına göre biraz daha yüksek görülmesinin sebebi Mg izotoplarının yeterince saf olmamasına bağlanmıştır.



Şekil 3.4  $MgB_2$  sisteminde izotopların  $T_c$  üzerindeki etkisi [80]

MgB<sub>2</sub> için toplam izotop katsayısı  $\alpha_{toplam} = \alpha_B + \alpha_{Mg} \approx 0.3 + 0.02 = 0.32$  olarak elde edilmiştir. Bu değer tipik bir BCS süperiletkeninde olması beklenen 0.5 seviyesinden oldukça düşüktür. Bunun sebebini Hinks ve grubu materyalin kompleks özelliklerine ve elektron-fonon çiftlenim sabiti ile elektron-elektron itici etkileşiminin basit metallerdeki değerine göre daha büyük olmasına bağlamışlardır.

 $MgB_2$  alaşımı her iki elementinin farklı kütlelerdeki izotoplarının katkılanması ile  $T_c$ ' de benzer bir değişimin oluştuğu tek yapıdır. Aynı zamanda şu ana kadar toplam izotop katsayısının tam olarak hesaplandığı birkaç yapıdan biridir.

## 3.1.7. Basınç ve sıcaklığa bağlı özellikler

MgB<sub>2</sub>' nin kristal yapısının basınca verdiği tepki, süperiletkenlik mekanizmasına dair teorik modellerin testi için önemlidir. Örneğin basınç, Al gibi BCS tipi basit metallerde,  $T_c$ ' de düşüş meydana getirir. Şu ana kadar çalışılan en yüksek basınç değerine kadar MgB<sub>2</sub> alaşımı basınca olumsuz tepki vermiş ve geçiş sıcaklığı düşmüştür. Geçiş sıcaklığının basınca bağlılığı 9 GPa' a kadar Şekil 3.5' teki grafikte gösterilmiştir. Hekzagonal yapısı herhangi bir dönüşüm geçirmemiştir. Ama çalışmalarda açık bir anizotropinin varlığı görülmektedir. C-ekseni boyunca örgü parametreleri a-eksenine göre daha hızlı değişim göstermektedir. Bu durum, düzlemler arası Mg-B bağlarının düzlem içi B-B bağlarından daha zayıf olduğunu göstermektedir.



Şekil 3.5  $MgB_2$ ' de  $T_c$ ' nin basınca bağlı değişimi [81, 82]



**Şekil 3.6** Basınçla örgü parametrelerinde (a ve c) meydana gelen değişim, ve bağıl değişim (c/a) [81, 82]

Basınçla birlikte  $T_c$ ' nin düşüşü, B elementinden kaynaklanan yüksek fonon frekanslı BCS tipi çiftlenimin olduğu tahminiyle uyuşur. Bu durum, B-B ve B-Mg bağlarının kısalmasından kaynaklanan Fermi enerjisindeki durum yoğunluğunun azalması olayının,  $T_c$ ' de artışa sebep olabilecek fonon frekansındaki artışa karşı daha baskın olduğunu gösterir. İletimin hole'lerle sağlandığını kabul eden teorik yaklaşım artan basınçla birlikte düzlem içi B-B bağlarının mesafesinin kısalarak, hole yoğunluğunun artacağını ve bu yolla  $T_c$ ' nin artacağını öngörür. Fakat deneysel sonuçlar bu tahmin ile uyuşmamaktadır.



**Şekil 3.7**  $MgB_2$ ' de örgünün a ve c eksenleri boyunca termal genleşme oranları [41]

Termal yayılım da, basınç altında büzülmeye benzer şekilde anizotropi gösterir. Isıya c-ekseni, a-eksenine göre çok daha fazla tepki verir. Aynı sıcaklıkta c-ekseni boyunca örgü parametreleri a-eksenine göre Şekil 3.7' de gösterildiği gibi iki kat daha fazla artar. Bu durum düzlemler arası Mg-B bağlarının düzlem içi B-B bağlarından daha zayıf olduğunun bir başka göstergesidir. B' lu yapılarda genellikle anizotropinin varlığı söz konusudur ama bu kadar yüksek olması sık rastlanılmayan bir durumdur.

## 3.2. MgB<sub>2</sub> Numune Hazırlama Teknikleri

MgB<sub>2</sub> alaşımı 1950' li yıllardan beri sentezlendiği için kimyasal üreticilerinden rahatlıkla hazır olarak temin edilebilmektedir. Hazırlanma koşullarına bağlı olmakla birlikte laboratuar şartlarında Mg ve B tozlarının stokiyometrik karışımından elde edilen MgB<sub>2</sub> alaşımının, çoğu zaman ticari olarak temin edilen MgB<sub>2</sub> bileşimine göre daha yüksek kritik sıcaklık gösterdiği ve faz geçişinin daha kısa bir aralıkta gerçekleştiği görülebilmektedir. MgB<sub>2</sub> alaşımını teknoloji ve araştırma amaçlı kullanmak için değişik formatlarda elde etmek gerekmektedir. Bu formatların başlıcaları hacimsel (bulk), tel, şerit, kalın ve ince filmlerdir. Tümleşik devrelerin içerisinde süperiletken ince filmlerin bulunması hem hız ve hem de enerji tüketimi açısından devrim yaratacak niteliktedir. Hibrid devrelerde ve baskı devrelerde elektronik elemanlar arasındaki akım taşıyıcı süperiletken yollar da aynı öneme sahiptir. Halen uygulamaya yönelik aygıt yapımı açısından en ümit verici alan süperiletkenleri elektronik sahaya dahil etmektir. Bu da ancak çok gelişmiş ince ve kalın film teknikleri kullanan, elektronik sanayi için kolay üretilebilen, üretimi tekrarlanabilen, yüksek kritik sıcaklık ve yüksek kritik akım yoğunluğuna sahip formların hazırlanması ile mümkün olabilecektir.

MgB<sub>2</sub>' nin farklı formatlarda elde edilmesinde iki temel problem ile karşılaşılır. Bunlardan birincisi Mg' un O<sub>2</sub>' e karşı aşırı duyarlı olması diğeri ise faz stabilitesinin sağlanması için Mg' un yüksek buhar basıncına ihtiyaç duymasıdır. İlk problemin üstesinden MgB<sub>2</sub>' nin yüksek vakum ortamında hazırlanması ile kolaylıkla gelinebilir. Fakat ikinci problem çok daha ciddidir ve iki farklı yöntemle çözümlenebilir. Birinci yol, kapalı bir ortamda yüksek Mg buhar basıncının sağlanması, ikinci yol ise numunelerin düşük ısıda elde edilmesidir.

MgB<sub>2</sub> alaşımının hacimsel, tel, şerit ve film şeklinde üretimi amacıyla tozlarının elde edilişi başlıca iki farklı metod kullanılarak gerçekleştirilir. Bunlar, sıklıkla tercih edilen katıhal reaksiyon tekniği ve daha nadir uygulanan katıhal difüzyon yöntemleridir.

Katıhal reaksiyon tekniğinde, saf olarak elde edilen elementler istenilen kompozisyonda hazırlanarak, homojen dağılımın sağlanması için yeterli süre boyunca karıştırılır. Karıştırılan numune kimyasal reaksiyonun gerçekleşmesi için malzeme yapısına bağlı olmakla birlikte 10-20 saat aralığında Ar atmosferinde ısıl işleme tabii tutulur. Arzu edilen homojenliğin sağlanması için bu işlemler birkaç defa tekrar edilir. Daha sonra elde edilen tozlar preslenerek tablet haline getirilebileceği gibi farklı formların üretiminde de kullanılabilir.

MgB<sub>2</sub> toz üretiminde kullanılan diğer yöntem katıhal difüzyon tekniğinde ise son derece saf olan Mg tozlar erime sıcaklığı yüksek olan Mo, Ta vb. tüpler içerisine saf B elementinden üretilmiş B telleri ile birlikte yerleştirilir. Ar atmosferinde ve yüksek sıcaklıklarda gerçekleştirilen ısıl işlem sonucunda B' lu telde MgB<sub>2</sub> fazı elde edilir. Isıl işlemin ardından tüp içerisindeki tel çıkarılarak öğütülür ve tozlar istenilen formda üretime hazır hale getirilmiş olur.

## 3.2.1. Kalın ve ince film üretim teknikleri

Yaklaşık kalınlığı 1 µm ve üzerinden başlayıp 100-500 µm gibi kalınlıklara ulaşabilen kalın filmler, fiziksel ve kimyasal buhar biriktirme yöntemleri gibi ileri teknoloji gerektiren ince film hazırlama sistemlerine göre daha ucuz ve kolay tekniklerle hazırlanabilmektedir. Kalın film adlandırması film kalınlığından çok hazırlama yönteminden dolayı verilmektedir. Kalın film hazırlama yöntemleri arasında dip-coating, sol-gel, elektroforez, termoforez, spray pyrolysis, screen printing, slip casting, doctor blade metodları sayılabilir.

Kalın film üretim teknikleri ile ince filmlerdeki gibi üretim parametrelerini ve yapıyı kontrol imkanı çok fazla olmasa bile pek çok uygulama amaçlı çalışma için hemen her laboratuarda süperiletken fazın gözlenebildiği bileşiklerin sentezini yapmak mümkün olduğundan büyük yatırım imkanı olmayan araştırıcılar tarafından tercih edilmektedir.

İnce film hazırlama yöntemleri ise temel olarak fiziksel veya kimyasal yolla elde edilmiş buharın altlık üzerine yoğunlaştırılması esasına dayanır. Bu metodlar, fiziksel buhar biriktirme (PVD) ve kimyasal buhar biriktirme (CVD) olarak adlandırılırlar. Buharın herhangi bir etkileşmeye girmesini engellemek amacıyla işlem, genellikle vakum ortamında veya kontrollü atmosferde yapılır.

Fiziksel buhar biriktirme yöntemlerinde, katı maddenin, yüksek sıcaklıklara çıkılarak veya hızlandırılmış iyonlarla bombardımanı yoluyla buharlaşması sağlanır. Kimyasal buhar biriktirme yöntemlerinde ise katı veya sıvıdan elde edilen buhar, ortamdaki gaz ile reaksiyona girerek farklı bir yapı oluşturur ve bu yapının altlık üzerine yoğunlaşması sağlanır. İki yöntem arasındaki en önemli fark, PVD' de altlık üzerinde elde edilecek ince filmin işlem öncesi katı halde mevcut olması, CVD' de ise ince filmin yapıtaşlarının işlem öncesinde mevcut olmayıp işlem esnasında tepkimeyle oluşmasıdır.

## 3.3. MgB<sub>2</sub>' de Kalın Film Üretimine Yönelik Yapılan Çalışmalar

2001 yılında MgB<sub>2</sub>' nin keşfinden günümüze kadar kalın film üretimine yönelik olarak farklı tekniklerin uygulandığı çalışmalar yapılmıştır. Bu çalışmalarda genel olarak farklı teknik, altlık ve ısıl işlem prosedürlerinin  $T_c$  ve  $J_c$  gibi süperiletkenlik özellikleri üzerine etkileri incelenmiştir. A.H. Li. vd. [83] tarafından MgB<sub>2</sub> kalın filmler, aseton buharlaşması sonucu dipte parlatılmış çelik altlık üzerine çökeltilmiş ve iki farklı ısıl işlem prosedüründen geçirilerek üretilmişlerdir. Elde edilen filmlerin X-ışınları kırınımı analizleri (XRD), taramalı elektron mikroskobu (SEM) incelemeleri ve manyetik ölçümleri gerçekleştirilmiştir. Hızlı bir şekilde 660 <sup>o</sup>C sıcaklığa çıkılıp bekletilmeden oda sıcaklığına soğutulan kalın filmde, % 90' ın üzerinde MgB<sub>2</sub> fazı ve % 10' un altında MgO fazı oluşurken, 800 <sup>o</sup>C' de 4 saat boyunca bekletilen film üzerinde ise MgB<sub>4</sub> fazına da rastlanmıştır. Filmlerde tanecikler arası bağlar oldukça sıkı olup yüksek  $J_c$ değeri elde edilmiştir.

Y.B. Zhu vd. [84] elektroforez tekniğiyle Ag/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> altlık üzerinde B filmlerini üretmişler daha sonra bu filmleri 920  $^{0}$ C' de Mg buharına tabii tutarak 40 µm kalınlığında MgB<sub>2</sub> film elde etmişlerdir. Elde edilen filmlerin SEM, XRD analizleri ve direnç ölçümleri yapılmıştır. Bu ölçümler neticesinde filmlerin 39 K geçiş sıcaklığına ve 0.6 K geçiş aralığına sahip, c-ekseni yönelimli ve oldukça homojen yapıda oldukları bulunmuştur.

C. Chen vd. [85] kaynak olarak B<sub>2</sub>H<sub>6</sub> gazı ve Mg külçesinin kullanıldığı hibritfiziksel-kimyasal-buhar-biriktirme (HPCVD) yöntemi ile Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> altlık üzerinde yaklaşık 40 µm kalınlığında film üretmişlerdir. Üretilen filmlerin SEM-EDX, XRD, MR-T analizleri yapılmıştır. Sonuç olarak filmlerin (101)-yönelimli sıkı paketli kristallerden oluştuğu, 38.4 K geçiş sıcaklığı ve 0.8 K geçiş aralığıyla oldukça saf bir yapıya sahip olduğu bulunmuştur. Bu çalışma HPCVD tekniğinin, sadece epitaksiyel MgB<sub>2</sub> ince film üretiminde değil aynı zamanda kalın film üretiminde de oldukça etkili bir metod olduğunu göstermiştir.

S.F. Wang vd. [86] elektroforez tekniğiyle Ta, Mo, W, Fe, parlatılmış çelik, ve Cu gibi farklı metal altlıklar üzerine çift taraflı B filmlerini üretmişler daha sonra bu filmleri 900  $^{0}$ C' de 1 saat boyunca Mg buharına tabii tutarak yaklaşık 60 µm kalınlığında MgB<sub>2</sub> film elde etmişlerdir. Daha sonra filmlerin SEM, XRD analizleri ve direnç ölçümleri yapılmıştır. Sonuçta MgB<sub>2</sub> taneciklerin 1µm' den daha küçük boyutlarda ve homojen yapıda oldukları, belirli bir yönelime sahip olmadıkları,  $T_c$ değerlerinin 32-38 K arasında ve kritik akım yoğunluklarının 10<sup>5</sup> A/cm<sup>2</sup>, nin üzerinde oldukları bulunmuştur. Her iki tarafta oluşan filmler benzer özellik göstermişlerdir. Kullanılan altlıklar içerisinde kimyasal uyum ve düşük maliyet açısından en uygun altlığın Fe altlık olduğu da çalışmanın bir başka sonucu olmuştur. Q.W. Yao vd. [87] saf ve katkılı MgB<sub>2</sub> kalın filmleri, asetonun buharlaşması sonucu çökelme yöntemini uygulayarak Ni altlık üzerinde üretmişlerdir. Isıl işlem süresini çok kısa tutarak (900 ve 840  $^{0}$ C' de 3-4 dakika ve ani soğutma) düşük tanecik boyutları ile birlikte tanecikler arası daha fazla bağlantı olmasını sağlamış ve bu yolla yüksek  $J_c$  hedefine ulaşmışlardır ( $J_c = 1.4 \times 10^6 \text{ A/cm}^2$ , 20 K ). Ayrıca ağırlıkça %5 Cu ve %10 nano-SiC tozlarını da MgB<sub>2</sub>' ye ayrı ayrı ekleyerek elde edilen filmlerin iletkenlik ve manyetik özelliklerini incelemişlerdir. Yapıya Cu katkılanması,  $T_c$  ve  $J_c$ ' de çok küçükte olsa bir düşüşe neden olmuştur. Fakat bu katkılanması ise  $J_c$ ' nin manyetik alan duyarlılığını düşürmüştür. Katkılamalar, hacimli MgB<sub>2</sub> yapıların aksine yabancı fazların oluşumuna neden olmanıştır.

F. Li vd. [88] %75 B<sub>2</sub>H<sub>6</sub> içeren H<sub>2</sub> karışımının ve Mg külçesinin kaynak olarak kullanıldığı HPCVD tekniği ile 4H-SiC altlık üzerine T<sub>0</sub> = 39.5 K geçiş sıcaklıklı 2.5 µm kalınlığında film üretmişlerdir. Filmlerin SEM, XRD, R-T, M-H analiz ve ölçümleri gerçekleştirilmiştir. Filmlerin c-ekseni yönelimli ve Mg, MgO gibi safsızlıklara sahip olduğu belirlenmiştir. M-H eğrilerinden, Bean modeli kullanılarak 10 K' de  $J_c = 6 \times 10^6$ A/cm<sup>2</sup> gibi yüksek bir değer bulunmuştur.

R. Sakaguchi vd. [89] screen printing (ekran baskı) yöntemini kullanarak MgO, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, YSZ, SrTiO<sub>3</sub> gibi dört farklı seramik altlık üzerine 50-60 µm kalınlığında katkısız MgB<sub>2</sub> filmler ve ayrıca MgO altlık üzerine In katkılı MgB<sub>2</sub> film hazırlamışlardır.  $T_0$  değerleri altlığın cinsine göre 34.0-37.7 K aralığında oluşmuştur. 830 <sup>o</sup>C' de 3 saat süren ısıl işlem süresince XRD deseninde fark edilebilecek herhangi yabancı bir faz oluşmamıştır. MgO altlık üzerinde üretilen filmde  $J_c$  değeri diğerlerinden daha yüksek olarak  $1.3 \times 10^4$  A/cm<sup>2</sup> bulunmuştur. In katkılanması ise  $T_c$ ' de bir değişim meydana getirmemekle birlikte  $J_c$ ' de azda olsa bir iyileşmeye neden olmuş ve aynı zamanda filmin altlığa daha sıkı tutunmasını sağlamıştır.

Q.W. Yao vd. [90] saf ve bakır katkılı MgB<sub>2</sub> kalın filmleri asetonun buharlaşması sonucu çökelme yöntemini kullanarak Cu, Ni ve parlatılmış çelik altlıklar üzerinde elde etmişler ve çok kısa süreli (700  $^{0}$ C' nin üzerinde 3 dakika) ısıl işleme tabii tutmuşlardır. Filmlerin SEM, XRD, M-H, M-T ölçümleri yapılmıştır. Katkısız MgB<sub>2</sub> filmlerin Ni ve çelik altlıklara oldukça zayıf bağlı oldukları görülmüştür. Yapıya Cu' ın katkılanması ise  $T_{c}$ ' de bir düşüş meydana getirmeksizin filmlerin altlıklara daha iyi tutunmasını sağlamıştır. Isıl işlem sıcaklığının 745  $^{0}$ C' den 900  $^{0}$ C' ye çıkarılması ile birlikte  $J_c$  değerinde (katkılı ve katkısız filmlerde  $1-9 \times 10^5$  A/cm<sup>2</sup>) ve M-H döngülerinden elde edilen tersinmezlik alanında artış olmuştur. Ayrıca SEM fotoğraflarında yüksek ısıl işlemli filmlerin daha sıkı bağlı taneciklere sahip olduğu görülmüştür.

K. Zhang vd. [91] HPCVD tekniğini uygulayarak (001) kristal yüzeyli safir altlık üzerine 1.3 µm kalınlığında oldukça yoğun ve sıkı bağlı kalın film elde etmişlerdir.  $T_c = 40.2$  K ve 0.15 K' lik geçiş aralığı ile yapılan diğer çalışmalardan elde edilen 39 K' lik geçiş sıcaklığını 1 K yükseltmişlerdir. Ayrıca kalıcı direnç oranının (RRR) 11 bulunması, Bean modelinden  $J_c$ ' nin 5×10<sup>10</sup> A/m<sup>2</sup>, 5 K olarak hesaplanması ve 40 K' de elektron ortalama serbest yolunun 10 nm olarak bulunması HPCVD tekniğinin homojen film üretimi konusunda oldukça etkili bir yöntem olduğunu göstermiştir.

# 4. DENEYSEL TEKNİKLER, ÖRNEKLERİN ÜRETİMİ VE KARAKTERİZASYONU

Tez kapsamında, üniversitemizde süperiletkenlik araştırma laboratuarlarında püskürtme tekniği ile üç farklı altlık üzerine MgB<sub>2</sub> kalın filmleri hazırlanmıştır. Kullanılan altlıklar Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, MgO ve SrTiO<sub>3</sub> gibi tek kristal seramik malzemelerdir. Çalışmalarda %99.9 saflıkta MgB<sub>2</sub> kimyasal toz (Alfa-Aesar) malzeme kullanılmıştır.

Püskürtme işlemi Argon tüpünden elde edilen 5 bar' lık gaz basıncı kullanılarak püskürtme tabancasının haznesine konulan aseton ve MgB<sub>2</sub> toz karışımının (1/10, MgB<sub>2</sub>/Aseton) belirli mesafeden (45cm) altlıklar (5mm×5mm) üzerine basınçla püskürtülmesine dayanır. Püskürtülecek karışımın tabancadan ne oranda dağılarak çıkacağı tabancadan ayarlanabilmektedir. Bu şekilde üretilen filmlerin kalınlıkları SEM kullanılarak tespit edilmiştir. Üretim safhasında 30-60 sn arası püskürtme süresinin 40-100 µm kalınlıkta filmlerin oluşmasında yeterli olduğu görülmüştür.

Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, MgO ve SrTiO<sub>3</sub> gibi üç farklı tek kristal altlık üzerinde üretilen filmlere iki farklı ısıl işlem prosedürü uygulanmıştır. Düşük sıcaklıklı ısıl işlem prosedüründe 3 farklı altlık üzerine elde edilen filmler üstü kapatılmış alümina botlar içerisine yerleştirilerek 610 <sup>o</sup>C' ye 5 <sup>o</sup>C/dak. oranında çıkılmış, kristal yapının oluşması için 24 saat bekletildikten sonra yine aynı oranda soğutulmuştur. Bu işlem, Mg elementinin O<sub>2</sub>' e karşı aşırı duyarlılığından dolayı vakumlanmış tüp fırınlarda Ar gazı ortamında gerçekleştirilmiştir.

Ayrıca işlem esnasında Mg' un düşük erime sıcaklığından dolayı yapıdan uzaklaşması ihtimali göz önünde bulundurularak Mg buhar basıncının yüksek tutulması amacıyla kapalı alümina bot içerisine fazladan MgB<sub>2</sub> tozları yerleştirilmiştir. Daha yüksek sıcaklığı içeren ikinci ısıl işlem prosedüründe ise filmler 925 <sup>0</sup>C sıcaklığına 10 <sup>0</sup>C/dak hızında yükseltilmiş 10 dakika bekletildikten sonra fırın içerisinde soğumaya bırakılmıştır. Buradaki üst sıcaklık limitinin Mg' un erime sıcaklığının çok üzerinde olmasından dolayı kapalı alümina botlar yerine Mo tüpler kullanılmıştır. Burada da yine yüksek sıcaklıkta Mg kaybına sebebiyet vermemek için örnekler kapalı tüp içerisine MgB<sub>2</sub> tozları ile birlikte yerleştirilmişlerdir.

Tüm ısıl işlemler için 3 bölgeden ısıtmalı 6 cm çap ve 110 cm uzunluğa sahip dijital kontrollü vakumlanabilir tüp fırınlar kullanılmıştır. Fırınlar ısıl işleme başlarken önce mekanik pompa yardımı ile vakumlanmış ve daha sonra içeri % 99.999 saflık oranına sahip Ar gazı verilmiştir. Bu işlem fırın tüpünün içerisinde O<sub>2</sub> kalmaması için birkaç defa tekrar edilmiştir. Yukarıdaki yöntemlerle elde edilen filmlerin daha sonra SEM, XRD, R-T, MR-T ve I-V analizleri yapılmıştır.

## 4.1. X-Işınları Kırınım (XRD) Analizleri

Üniversitemiz Merkezi Araştırma Laboratuarı' nda bulunan Rigaku RadB-DMAX-II bilgisayar kontrollü x-ışını difraktometresi kullanılarak filmlerin XRD desenleri elde edilmiş ve elde edilen grafiklerdeki pik değerleri Jade 6.0+ Crystal Refinement programının kütüphanesinde yer alan yapılarla karşılaştırılarak mikroyapısal çözümlemeleri gerçekleştirilmiştir.

Filmler yapılarına zarar verebilecek herhangi bir işleme tabii tutulmadan, altlıkların tutucuya yapıştırılması suretiyle sisteme yerleştirilmiştir. Ölçümler  $2\theta = 3-80^{\circ}$  aralığında,  $3^{\circ}$ /dk. tarama hızında ve CuK<sub>a</sub> ( $\lambda = 1.5405$  Å) radyasyonu kullanılarak gerçekleştirilmiştir.

# 4.2. Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM) İncelemeleri

Üretilen kalın filmlerin yüzey yapılarının belirlenmesi, taneciklerin dağılımı ve tanecikler arası bağlantıların niteliği ve mikron seviyesinde oluşabilecek yabancı fazların tespiti için SEM (Scanning Electron Microscope) incelemeleri gerçekleştirilmiştir.

İncelemeler üniversitemiz Merkezi Araştırma Laboratuarı' nda bulunan LEO marka ve EVO 40 XVP (Extended Variable Pressure, 400-750-3000 Pascal) model, 30 kV hızlandırma voltajında SE (Secondary Electron) dedektörle 3 nm ayırma gücüne sahip, BSD (Back Scattering Detector) ve XVP modunda ise 4.5 nm ayırma gücü, 0.2-30 kV hızlandırma voltaj aralığı ve 7 ila 1.000.000 defa büyütme kapasitesine sahip mikroskopla gerçekleştirilmiştir.

Bu çalışmada üretilen örneklerin SEM resimleri 20 kV hızlandırma voltajında ve 5.000-20.000 aralığındaki büyütmelerle elde edilmiştir. Ancak mikroskopta bulunan Röntec marka X-Flash dedektör B elementini algılayabilecek hassasiyette olmadığı için EDX (Energy Dispersive X-Ray Analysis) ölçümleri yapılamamış, bu konuda XRD analizlerinden faydalanılmıştır.

# 4.3. Elektriksel ve Manyetik Ölçümler (R-T, MR-T, I-V)

Üretilen örneklerin sıcaklığa karşı elektriksel direnç (R-T) değişimleri üniversitemizin fizik bölümünde bulunan Cryogenic Q-3398 Vibrating Sample Magnetometresi (VSM) ve "Tsukuba Üniversitesi (Japonya) Material Science" Laboratuarları'nda bulunan Quantum Design PPMS-5T sistemi kullanılarak gerçekleştirilmiştir. Elektriksel ölçümlerimiz 4 nokta kontak yöntemi ve gümüş boya kullanılarak gerçekleştirilmiştir. Genel olarak 610 <sup>o</sup>C' de ısıl işlem yapılan örneklerin elektriksel özellikleri zayıf olduğundan ve bu filmler manyetik alandan yüksek oranda etkilendiğinden sadece 0 T altında R-T ölçümleri yapılmıştır. 925 <sup>o</sup>C' de ısıl işlem yapılan örnekler için ise 0-5 T arasında alan altında (MR-T) ölçümleri gerçekleştirilmiştir.

I-V ölçümleri ise yine 925  ${}^{0}$ C' de ısıl işlem gören örneklerde 4.2 K' de ve 1  $\mu$ V potansiyel kriterine göre gerçekleştirilmiş ve filmlerin taşıyabileceği maksimum akım değeri hesaplanmıştır.

## 5. DENEYSEL SONUÇLAR VE DEĞERLENDİRMELER

Bu tez kapsamında üretilen filmlerin öncelikle XRD ve SEM analizleri göz önüne alınarak mikroyapısal özellikleri tartışılmış ve sonra da elektriksel özellikleri değerlendirilmiştir.

#### 5.1. X-Işınları Kırınımı (XRD) Sonuçları

#### 5.1.1. Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> altlıklı filmlerin XRD sonuçları

 $Al_2O_3$  altlık üzerinde üretilen filmlere iki farklı ısıl işlem prosedürü uygulanmıştır. Birinci grupta 610 °C' de ısıl işlem gören örneklerin XRD analizleri şekil 5.1.a' da verilmiştir. Şekil 5.1.a' da görüldüğü gibi elde edilen piklerin, kullanılan altlığa ve MgB<sub>2</sub> film malzemesine ait olduğu görülmüş ve başka faza rastlanmamıştır. Ayrıca MgB<sub>2</sub> gibi  $O_2$ ' e karşı oldukça hassas olan bir malzemenin bütün işlemler sonunda MgO gibi dış ortamdan  $O_2$  alarak oluşturduğu safsızlık fazlarının oluşumuna sebebiyet vermemesi, ısıl işlemlerin gerçekleştirildiği fırın ortamının ve kullanılan üstü kapalı alümina botların bu işlem için yeterince hassas olduğunu göstermektedir.

XRD grafiğinde MgB<sub>2</sub> pikleri dışında görülen ve şiddet olarak hemen hemen MgB<sub>2</sub> piklerinin seviyesine ulaşan diğer pikler ise altlıktan kaynaklanan Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> pikleridir. Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> piklerinin bu derece yoğun olarak ortaya çıkmasının nedeni, filmin mikron seviyesindeki kalınlığı ve kaplama ve ısıl işlemler esnasında oluşabilen boşluklarla ilgilidir. Uygulanan X-ışınının  $\approx$ 1.5 Å dalga boyuna sahip olması ışının tanecikler arası boşluklardan rahatlıkla geçerek altlığa ulaşıp geri dönebileceğini ortaya koymaktadır ki bu durum kalın filmlerde genellikle ortaya çıkan bir problemdir.

925 <sup>0</sup>C' de ısıl işlem gören ikinci grup filmler ise şekil 5.1.b' de verilmiştir. XRD grafiğinde görüldüğü gibi düşük ısıl işlemli filmlere benzer olarak sadece altlıktan ve kaplama film tabakasından kaynaklanan pikler dışında herhangi bir safsızlık fazına rastlanmamaktadır. Ayrıca Şekil 5.1.b' de, Şekil 5.1.a' ya göre altlıktan kaynaklanan piklerin şiddetlerinde az da olsa bir düşüş olduğu görülmektedir. Bu da yüksek sıcaklıkta tanecikler arası sık bağlanmanın bir göstergesidir ve bu sıcaklıkta gerçekleştirilen ısıl işlemlerin daha faydalı olacağını ortaya koymaktadır.



**Şekil 5.1.**  $Al_2O_3$  altlık üzerinde üretilen filmlerin XRD grafikleri **a**) 610  ${}^{0}C$  de ısıl işlem görmüş film, **b**) 925  ${}^{0}C$  de ısıl işlem görmüş film

# 5.1.2. MgO altlıklı filmlerin XRD sonuçları

MgO tek kristal altlık üzerinde üretilen ve 610  $^{0}$ C ve 925  $^{0}$ C' lik iki farklı ısıl işlem döngüsünden geçirilen filmlerin XRD grafiklerinde sadece altlıktan kaynaklanan pik ve MgB<sub>2</sub> materyaline ait pikler gözlenmiştir, Şekil 5.2.a-b. Kullanılan MgO altlık ile MgB<sub>2</sub> materyali arasındaki reaksiyonun, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> altlıktaki kadar sağlam olmasa da yeterli düzeyde olduğu görülmüştür. Ancak altlıktan gelen 2 $\theta$  = 42.8<sup>0</sup> ve 62.4<sup>0</sup> civarındaki piklerin MgO' nun karakteristik pikleri olduğu bilinmekte olup, MgB<sub>2</sub> materyalinin



**Şekil 5.2.** MgO altlık üzerinde üretilen filmlerin XRD grafikleri **a**) 610  ${}^{0}C$  de ısıl işlem görmüş film, **b**) 925  ${}^{0}C$  de ısıl işlem görmüş film

pikleri ile üst üste binmiştir. Bunlardan farklı olarak yabancı fazların oluşmaması en olumlu bulgu olmuştur. Benzer bulguların 925  $^{0}$ C' de ısıl işlem gören örnek için de geçerli olduğu saptanmış ancak MgB<sub>2</sub>' ye ait piklerin şiddetlerinde belirgin bir artışın olduğu da bulunmuştur. Her iki ısıl işlem için film tabakasından elde edilen piklerin MgB<sub>2</sub>' nin hekzagonal kristal yapısına tam olarak uyduğu ve kristalografik parametrelerin a = b = 3.086 Å ve c = 3.521 Å oldukları bulunmuştur.

## 5.1.3. SrTiO<sub>3</sub> altlıklı filmlerin XRD sonuçları

SrTiO<sub>3</sub> tek kristal altlık üzerinde üretilen 610 <sup>o</sup>C ve 925 <sup>o</sup>C' de ısıl işlem gören kalın film örneklerin XRD grafikleri Şekil 5.3.a-b' de verilmiştir. Her iki örnek için XRD grafiklerinde sadece MgB<sub>2</sub> film tabakasından ve altlıktan kaynaklanan piklere rastlanmış olup, herhangi bir safsızlık fazına rastlanmamıştır. Ancak oldukça dikkat çekici olarak SrTiO<sub>3</sub> altlıktan kaynaklanan piklerin şiddetlerinin diğer altlıklar ile karşılaştırıldığında çok düşük olduğu bulunmuştur. Film kalınlığında çok büyük bir fark olmamasına rağmen ( $\approx$  50-100 µm kalınlıkta) altlıktan gelen pikin zayıf olması, altlık ile film tabakası arasında düzenli bir reaksiyonun gerçekleşmesine bağlanmaktadır. Ayrıca filmlerde tanecikler arasında boşlukların çok fazla olmadığı ve taneciklerin birbirlerine sıkı bir şekilde kenetlendiği düşünülmektedir. Bu durum her iki ısıl işlem döngüsü için de geçerli olmaktadır.



**Şekil 5.3.** SrTiO<sub>3</sub> altlık üzerinde üretilen filmlerin XRD grafikleri **a**) 610  $^{0}$ C de ısıl işlem görmüş film, **b**) 925  $^{0}$ C de ısıl işlem görmüş film

#### 5.2. Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM) Sonuçları

XRD analizleri gerçekleştirilen Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, MgO ve SrTiO<sub>3</sub> altlıklı ve iki farklı ısıl işlem döngülü filmlerin SEM incelemeleri yapılmıştır. Fakat yapılan diğer analizlerden farklı olarak SEM incelemeleri için ekstra olarak ayrı bir grup film hazırlanmıştır. Hazırlanan bu ekstra grup tez kapsamında gerçekleştirilen asıl çalışmaya bir ön hazırlık aşaması olarak düşünülmüştür.

Bu gruptaki filmler de yine aynı altlıklar üzerine, 610 <sup>0</sup>C ısıl işlemli fakat çok kısa süreli püskürtme yapılarak üretilmişlerdir. Bu çalışmadaki amaç, püskürtme tabancasının, tozları, altlık üzerine ne oranda homojen dağıttığını gözlemleyerek püskürtme tabancasına uygulanan basıncın şiddetine karar verilmesi ve püskürtme süresi ile film kalınlığı arasındaki ilişkinin kurulmasını sağlamak olmuştur.

Bu kapsamda hazırlanan filmlerin SEM resimleri Şekil 5.4' te verilmiştir. SEM resimlerinden toz öbeklerinin altlıkların yüzeyinde hemen hemen eşit yoğunlukta dağıldığı, dolayısıyla tabancanın en azından altlıkların bulunduğu bölüm boyunca eşit dağılımda malzeme püskürttüğü anlaşılmıştır. Bununla birlikte kısa püskürtme süresi beklenildiği üzere yetersiz film kalınlığı oluşturmuş ve yer yer altlığın açıkta kalmasına neden olmuştur.

Bu nedenle arzu edilen kalınlığa ulaşılması için püskürtme süresinin uzatılması gerektiği sonucuna ulaşılmıştır. Diğer yandan bazı taneciklerin boyutlarının 20-50 nm gibi çok küçük olmasına rağmen ki, zaten daha küçük olsalar bile kullanılan SEM sisteminin bunları ayırt edecek kapasitesi yoktur, zaman zaman bir araya gelerek çapları birkaç mikron seviyesine varan daha büyük taneler oluşturdukları gözlemlenmiştir. Ama genel olarak tanelerin birbirine yakın büyüklükte oldukları görülmüştür. Gerekli ayar ve düzeltmeler yapıldıktan sonra tez çalışmasında kullanılacak filmlerin üretimine geçilmiştir.



**(a)** 







(d)



**Şekil 5.4.** Kısa süreli püskürtme işlemi uygulanan filmlerin SEM resimleri, oklar altlık malzemelerini göstermektedir a,b)  $Al_2O_3$  altlıklı filmler c,d) MgO altlıklı filmler e,f) SrTiO<sub>3</sub> altlıklı filmler

## 5.2.1. Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> altlıklı filmlerin SEM sonuçları

MgB<sub>2</sub> sisteminin genel olarak tanecikli (granular) bir yapı gösterdiği ilk keşfedildiği 1950' li yıllardan beri bilinmektedir. Zaten bu tür bir yapılaşma metal alaşımlar içerisinde oldukça yaygındır.

Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> altlık üzerinde üretilen filmlerden 610 <sup>o</sup>C ısıl işleme tabii tutulan ilk bölümü Şekil 5.5' te görüldüğü gibi genel olarak tanecikli, öbekli ve çok sık olmasa da bazı yerlerde yüzeysel çatlakların yer aldığı bir yapıya sahiptir. Ancak bu çatlakların yüzeyde kaldığı ve filmin derinliklerinde durduğu gözlenmiştir. Genel olarak yapılaşmanın tanecikler arası kuvvetli bağlar ve kaynaşmalarla gerçekleştiği görülmüştür. Bu kaynaşmaların bazı noktalarda Mg' un kısmen erimesi ile sağlandığı tahmin edilmektedir. Mg' un elemental bazda erime sıcaklığının 650 <sup>o</sup>C olmasına karşı, ısıl işlem süresinin 24 saatten fazla sürmesi ve bileşik halinde olması kısmi erimesine neden olmuştur.

Tanecik büyüklüklerinin SEM' in ayırt edebildiği yaklaşık en üst sınır olan 40 nm' den başlayıp 5 µm' ye kadar değiştiği gözlenmiştir. Bu taneciklerin bir araya gelmesi ile oluşan küçük tepecikler şeklindeki öbekler ise 100 µm çapına varabilmektedir. Hemen hemen üç farklı altlık ve farklı ısıl işlemlerde ortaya çıkan öbeksi yapının tabanca memesinde zamanla biriken ve belirli aralıklarla püskürtülen kalıntılardan kaynaklandığı düşünülmektedir. Ancak kısmi erime olan yüzeylerde de gözlenen gözenekli yapının temel kaynağının yüksek sıcaklıklarda yapının derinliklerinden buharlaşmaya çalışan Mg' dan ve sprey sıvısından kaynaklandığı tahmin edilmektedir.

Araştırma merkezinde bulunan EDX sisteminde B miktarını belirleme imkanı olmadığından dolayı EDX analizleri yapılamamıştır fakat en azından farklı yapıların cinsini temsil etmesi açısından SEM resimlerindeki renk tonları, kümeleşmeler ve aradaki bağlar referans alındığında yapıda farklı renk tonlarının ve kümeleşmelerin olmadığı görülmektedir. Örneğin, eğer üretim ve ölçümler esnasında yapı Oksijenli ortamla uzun süre temas etseydi, gri renginin tonlarından oluşan SEM fotoğraflarında bu durum, beyaza yakın tonda renk veren MgO bileşiminin görülmesine sebebiyet verecek idi.

Bu bağlamda, XRD grafiklerinde altlıktan kaynaklanan pikler haricinde baskın olarak MgB<sub>2</sub> piklerinin gözlemlenmesi ile SEM fotoğraflarının uyuştuğu söylenebilir.



**Şekil 5.5.**  $Al_2O_3$  altlık üzerinde üretilen 610  ${}^{0}C'$  de ısıl işlem görmüş filmler **a**) Oklar öbek ve çatlakları göstermektedir **b,c** ve **d**) Tozların homojen dağılımı ve tanecikler arasındaki güçlü bağlantıların ve kısmi erimenin görüntüleri

LEO

Signal A = SE1 EHT = 20.00 kV

(c)

Signal A = SE1 EHT = 20.00 kV

(d)

LEO

Mag = 15.00 k WD = 19 mm

Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> altlık üzerinde üretilen ve 925 <sup>0</sup>C ısıl işlem döngüsü uygulanan filmler ise Şekil 5.6.a-f' de verilmiştir. Fotoğraflarda görüldüğü gibi film, öbekli, tanecikli ve yer yer çatlak ve gözenekli olması açısından düşük ısıl işlem yönteminin uygulandığı filme benzemektedir. Fakat bu filmde özellikle gözenekli bölgelerin önemli ölçüde azaldığı ve tanecik ve öbek boyutlarında belirgin bir küçülme olduğu gözlenmiştir. Bu durum tanecikler arası bağlantıların daha güçlü olduğu kanaatini doğurmuştur.



**(a)** 

(b)



(c)





**Şekil 5.6.**  $Al_2O_3$  altlık üzerinde üretilen 925  ${}^{0}C$  ısıl işlemli filmler **a**) Oklar öbek ve çatlakları göstermektedir **b,c,d,e** ve **f**)  $MgB_2$  taneciklerinin homojen dağılımı ve tanecikler arasındaki güçlü bağlantıları göstermektedir

### 5.2.2. MgO altlıklı filmlerin SEM sonuçları

MgO tek kristal altlık üzerinde üretilen 610  $^{0}$ C ve 925  $^{0}$ C' de ısıl işlem görmüş filmlerin yüzey şekilleri Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> altlıklı filmlere benzer şekilde tanecikli, öbekli bir yapılaşma göstermekte ve yer yer delik ve yüzeyde çatlaklardan oluşmaktadır, Şekil 5.7, 5.8.

Yüzeyde tanecikler arası bağların Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> altlıklı filmlerde olduğu gibi sıkı olduğu gözlenmektedir. Diğer yandan her iki ısıl işlemli filmde de çatlakların sıklık ve genişliklerinin Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> altlıklı filmlere göre bir miktar arttığı gözlenmiştir. Bununla birlikte MgO altlık için düşük ve yüksek ısıl işlemler arasında yüzey morfolojisi açısından önemli bir fark tespit edilmemiştir.

Bu şekilde çatlakların artmasının sebebi MgO altlıklar ile MgB<sub>2</sub> film tabakasının birbirinden çok farklı termal genleşme değerlerine sahip olmasına bağlanmıştır. Çünkü altlık olarak kullanılan tek kristal MgO altlığın termal genleşme katsayısının 13.8x10<sup>-6</sup> /K, MgB<sub>2</sub> materyalinin ise 5.4x10<sup>-6</sup> /K olduğu bilinmektedir.



**Şekil 5.7.** MgO altlık üzerinde üretilen 610  ${}^{0}C'$  de ısıl işlem görmüş film **a**) Oklar öbek ve çatlakları göstermektedir **b**) Tanecik dağılımı ve aralarındaki sıkı kaynaşmaların görünümü



**(a)** 







(d)



**Şekil 5.8.** *a,b)* MgO altlık üzerinde 610  ${}^{0}C$  ısıl işlem görmüş filmin yüzeyindeki oluşumlar **c,d,e,f)** MgO altlık üzerinde 925  ${}^{0}C$  ısıl işlemli filmin yüzey yapıları

### 5.2.3. SrTiO<sub>3</sub> altlıklı filmlerin SEM sonuçları

SrTiO<sub>3</sub> altlık üzerinde üretilen 610  $^{\circ}$ C ve 925  $^{\circ}$ C' de ısıl işlemleri gerçekleştirilen filmlerin yüzey morfolojileri diğer iki altlık üzerinde üretilen filmler ile büyük ölçüde benzerlik göstermektedir. Öyle ki, her iki ısıl işlem sıcaklığında da tanecikler arası kısmi erime sonucu oluşan sıkı bağlanmanın aynı zamanda altlık yüzeyi ile film tabakası arasında da kimyasal bir yolla oluştuğu gözlenmiştir. Ancak bu filmlerde de, ortalama olarak 20 µm yüksekliğine sahip, püskürtme sisteminden kaynaklanan ve küçük tepeciklerden oluşan öbekler yer almakta, fakat, bu öbeklerin film yüzeyine sıkı bir şekilde bağlandığı görülmektedir.

Şekil 5.9.a-f' den görülebileceği gibi diğer altlıklarda da karşılaşılan delik ve çatlakların SrTiO<sub>3</sub> altlıkta da benzer şekilde fakat daha sık ortaya çıktığı tespit edilmiştir. Bu durumun temel sebebi olarak film materyali MgB<sub>2</sub> ile kullanılan altlıklar arasındaki termal genleşme katsayılarının farklılıkları kabul edilmektedir (MgB<sub>2</sub>: 5.4x10<sup>-6</sup> /K, SrTiO<sub>3</sub>: 10.8x10<sup>-6</sup> /K). Ayrıca filmlerin kaplanması sırasında kullanılan asetonun da ısıl işlem sırasında filmden uzaklaşmaya çalışırken yüzeyde çatlaklar ve gözenekler bıraktığı düşünülmektedir.

Bilindiği gibi EDX analizleri bu tür yapıların analizinde önemli bir yer tutmaktadır. Ancak, mevcut imkanlar B' lu yapılarda EDX analizi gerçekleştirme olanağı vermediği için filmin ana matrisinde oluşan veya oluşabilecek yapıların ayrımı tam olarak yapılamamıştır. Dolayısı ile faz ayrımı için sadece XRD analizlerinden faydalanılmıştır.



**(a)** 







(d)



**Şekil 5.9.** a,b,c) SrTiO<sub>3</sub> altlıklı 610 <sup>0</sup>C ısıl işlemli filmin yapısı, oklar gözenekleri göstermektedir d,e,f) SrTiO<sub>3</sub> altlıklı 925 <sup>0</sup>C ısıl işlemli filmin yüzey yapısı

## 5.3. Elektriksel Ölçüm Sonuçları

#### 5.3.1. Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> altlıklı filmlerin R-T ve MR-T ölçüm sonuçları

Şekil 5.10' da Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> altlık üzerinde üretilen ve iki farklı ısıl işlem prosedüründen geçirilen filmlerin elektriksel dirençlerinin sıcaklıkla değişimlerini gösteren grafik verilmektedir. 610  $^{0}$ C ısıl işlemli filmde  $T_{c}$  ve  $T_{0}$  değerleri sırasıyla 18.7 K ve 8.02 K seviyesinde oluşurken, 925  $^{0}$ C ısıl işlemli filmde 36.1 K ve 30.9 K sıcaklıklarında oluşmaktadır.

Elde edilen  $T_c$  ve  $T_0$  değerlerinin literatürde yer alan (25-40 K) [83-91] değerlerden azda olsa düşük olduğu görülmektedir. Bu durumdan, SEM resimlerinde varlığı tespit edilen çatlakların, gözeneklerin ve öbeklenmelerin sorumlu olduğu düşünülmektedir. Özellikle yapıda rastgele ortaya çıkan çatlaklar, tanecik gruplarını birbirinden ayırarak elektrik akımı için bir direnç oluşturmaktadır. Böylelikle akımın akışı, çatlakların olmadığı diğer bölgelere yoğunlaşmaktadır ki, bu da sınırlı bir iletim mekanizmasını ortaya çıkarmaktadır.

Süperiletkenliğin bir diğer önemli parametresi ve süperiletkenlik kalitesinin de bir göstergesi olan  $\Delta T$  ( $= T_c - T_0$ ) değeri ise düşük ısıl işlemli filmde 10.7 K bulunurken, yüksek ısıl işlemli filmde 5.2 K bulunmuştur. Bu değerler, iyi kristalize olmuş, safsızlıkların minimum seviyede olduğu süperiletkenler için en fazla birkaç Kelvin mertebesinde olmaktadır. Bu gerçek göz önüne alındığında  $\Delta T$  değerinin bu derece büyük olmasında, tanelerin altlık boyunca düzenli kristal yapılar oluşturmasına engel olan, çatlak ve deliklerin etkili olduğu düşünülmektedir. Bununla birlikte film ile altlık arasında kalan kısımlarda çatlaklar ile birlikte süngerimsi bir yapılaşmanın olabileceği de düşünülmektedir. Ancak bu durum kullanılan altlıkların tek kristal olması ve ara kesitlerine SEM' de bakılamaması sebebiyle sadece kuvvetli bir varsayım olarak kalmıştır.

Şekil 5.11' de sadece yüksek derecede ısıl işlem görmüş filmin sıcaklık-direnç eğrisinin manyetik alanla değişimi verilmektedir. 610 <sup>o</sup>C' de ısıl işlem gören örneğin 1 T alan altında bile süperiletken forma girmediği görülmüştür. Bunun sonucunda alandirenç-sıcaklık ölçümleri her bir altlık için en iyi elektriksel iletkenlik değerlerine sahip olan ısıl işlem grubundan seçilmiştir ki, her üç altlık için de bu grup 925 <sup>o</sup>C ısıl işlemli filmlerden oluşmaktadır.


**Şekil 5.10.** *a) Al*<sub>2</sub>*O*<sub>3</sub> *altlık üzerinde üretilen farklı ısıl işlemli filmlerin 0-50 K arasında sıcaklık-direnç eğrileri b) Aynı eğrilerin 0-150 K arasındaki görünümü* 

Alan-direnç-sıcaklık ölçümleri, manyetik alanın malzemedeki yapı kusur ve safsızlıklarına ne oranda tesir ettiğinin bir göstergesidir. Şekil 5.11' den, üretilen filmlerin manyetik alana karşı oldukça duyarlı olduğu sonucuna ulaşılmaktadır. Zira, hem  $T_c$  hem de  $T_0$  değerlerinin, uygulanan manyetik alanın artmasıyla birlikte önemli ölçüde değiştiği görülmektedir, Şekil 5.11 ve Tablo 5.1. Ayrıca, manyetik alandaki artışın, eğrilerin  $T_0$  değerine yakın noktalarda daha uzun kuyruk oluşturmalarına neden olduğu görülmektedir.



**Şekil 5.11.** *a)*  $Al_2O_3$  altlık üzerinde üretilen 925 <sup>0</sup>C ısıl işlem görmüş filmde manyetik alanın sıcaklık direnç eğrisi üzerindeki etkisi b) Aynı eğrilerin 0-230 K arasındaki görünümü

Manyetik alana karşı hassasiyet, malzemenin tanecikli yapısı ile ilgili olabileceği gibi, süperiletken bölgeler arasındaki bağlanmanın zayıf olmasına sebep olabilecek çatlaklardan ve altlığın kristal yapısı ile malzemenin kristal yapısı arasındaki uyumsuzluktan da kaynaklanabilmektedir. Çünkü manyetik alanın, daha çok, güçlü örgüler oluşturamamış ve yer yer boşluk ve safsızlıklar içeren malzemelere nüfus ettiği ve bu noktalarda yuvalanarak yüzey akımlarına neden olduğu böylelikle kritik akım değerini ve dolayısıyla kritik sıcaklık değerini aşağı çektiği bilinmektedir. Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> altlık üzerinde üretilen filmlerin düşük kritik sıcaklık ve yüksek manyetik hassasiyet gibi özelliklerinin ortaya çıkışında da bu sebeplerin etkili olduğu düşünülmektedir.

Manyetik Alan (T)	<i>T</i> <sub>c</sub> (K)	$T_{ heta}\left(\mathrm{K} ight)$	Δ <i>T</i> (K)
0	36.1	30.9	5.2
1	34	28.4	5.6
2	33.4	24.5	8.9
3	31.2	17	14.2
4	27.8	14.5	13.3
5	24.7	-	-

#### 5.3.2. MgO altlıklı filmlerin R-T ve MR-T ölçüm sonuçları

MgO altlık üzerinde üretilen filmlerden düşük ısıl işlem görmüş olanlarda T<sub>c</sub> ve T<sub>0</sub> değerleri Şekil 5.12' de görüldüğü gibi 22.6 K ve 13.4 K' dir. Yüksek ısıl işlem görmüş filmlerde ise bu değerler sırasıyla 36 K ve 22.5 K seviyesinde bulunmuştur.  $T_c$ ve  $T_0$  değerleri arasındaki farktan hesaplanan süperiletken-normal faz geçiş aralığının büyüklüğü ise düşük ısıl işlemli filmde  $\Delta T = 9.2$  K iken, yüksek ısıl işlemli filmde  $\Delta T =$ 13.5 K' dir. Elde edilen bu değerlerin literatürde yer alan ve diğer yöntemler ile hazırlanan kalın filmlerde ortaya çıkan kritik sıcaklık değerlerinden düşük, diğer yandan  $\Delta T$  değerlerinin de ideal değerlerden çok yüksek olduğu görülmektedir. Bu durumun ana sebebinin, bir önceki kesimde Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> altlıklı filmlerde açıklanan etkilerin ortaya çıkmasına sebep olan ve SEM resimlerinde varlığı açıkça görülen çatlak ve gözeneklerle birlikte, tozların altlık üzerinde genel olarak homojen bir dağılım göstermediğini ortaya koyan öbeksi yapılar olduğu düşünülmektedir.

Tez kapsamında üretilen Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> altlıklı ve MgO altlıklı filmler mevcut analizler dahilinde kendi içerisinde karşılaştırılacak olursa görülür ki, MgO altlıklı yüksek ısıl işlemli filmdeki 13.5 K' lik  $\Delta T$  değeri, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> altlıklı filmden büyük bir farklılık göstermektedir. Benzer durum  $T_0$  değerleri için de geçerlidir. Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> altlığın yüksek ısıl işlemli filminde 5.2 K olan  $\Delta T$  değeri burada 8.3 K'lik bir artış göstererek 13.5 K değerine ulaşmıştır.  $\Delta T$  değerindeki bu keskin artışın ve  $T_0$  değerindeki 8.4 K' lik düşüşün öncelikle altlık ile film tabakasının kristal parametrelerindeki büyük farktan



**Şekil 5.12.** *a) MgO* altlık üzerinde üretilen farklı ısıl işlemli filmlerin 0-50 K arasında sıcaklık-direnç eğrileri *b)* Aynı eğrilerin 0-200 K arasındaki görünümü

kaynaklandığı düşünülmektedir. Ayrıca tanecikli yapıya sahip olan MgB<sub>2</sub>' de taneciklerin değme noktalarında, düşük miktarlarda, mikro veya nano boyutta ara fazların oluşması tanecikler arasında ince bir tabaka oluşturarak, süperiletkenliğin oluşmasını sağlayan iletim yollarını ve elektronik koordinasyonu bozabilmektedir. Bu şekildeki oluşum kendini asıl olarak yüksek  $\Delta T$  değeriyle belli etmesine karşı, süperakımın yer yer bloklanmasına veya kısmi olarak engellenmesine neden olarak  $T_c$ ve  $T_0$  değerlerini de düşürebilmektedir.

Şekil 5.13' de MgO altlıklı yüksek ısıl işlemli filmin MR-T eğrileri verilmiştir. Şekilde manyetik alanın, MgO altlıklı filmi yüksek derecede etkilediği ve henüz 2 T değerinde süperiletkenlere has sıfır direnç özelliğini tamamen ortadan kaldırdığı görülmektedir. Aynı durum 3 T ve 4 T değerleri için de geçerli olmuş, 5 T' lık manyetik alanda ise faz geçişi başlayamamıştır. MgO altlığın manyetik alana karşı bu hassasiyetinin altında yatan neden temel olarak manyetik alanın, yapıda kristal bütünlüğü olmayan çatlaksı bölgelere, boşluklara ve tanecikler arasında oluşması muhtemel, SEM ile tespit edilmesi mümkün olmayan, ara fazlara kolaylıkla nüfus edebilmesidir. Manyetik alan, bu tür oluşumlara rahatlıkla nüfus ederek kritik akım değerinin büyük bölümünün, süperiletken yapılarda diyamanyetizmanın kaynağı olan yüzey akımlarına ayrılmasına ve dolayısı ile Tc ve  $T_0$  değerleri üzerinde büyük bir baskı kurulmasına neden olmaktadır. Bunlardan ayrı olarak, MgO' nun kristal parametreleri (a = 4.216 Å, kübik) ile MgB<sub>2</sub>' nin kristal parametreleri (a = b = 3.086 Å, c = 3.521 Å, c = 3.521 Å)hekzagonal) arasındaki büyük fark, filmin kristal yapılanmasında bazı distorsiyonlara veya kristal kusurlarının artmasına neden olabilecek önemli bir nokta olarak düşünülmektedir.

Manyetik Alan (Tesla)	<i>Т<sub>с</sub> (К)</i>	$T_{\theta}$ (K)	ΔT (K)
0	36	22.5	13.5
1	33	8.2	24.8
2	30.0	-	-
3	24.4	-	-
4	18.6	-	-
5	-	-	-

**Tablo 5.2.** MgO altlık üzerinde üretilen 925  $^{0}C$  ısıl işlemli filmin MR-T sonuçları



**Şekil 5.13.** *a)* MgO altlık üzerinde üretilen 925  ${}^{0}C$  ısıl işlemli filmde manyetik alanın sıcaklık-direnç eğrisi üzerindeki etkisi *b)* Aynı eğrilerin 0-230 K arasındaki görünümü

## 5.3.3. SrTiO<sub>3</sub> altlıklı filmlerin *R-T* ve *MR-T* Ölçüm Sonuçları

SrTiO<sub>3</sub> üzerinde üretilen filmlerden düşük ısıl işlemli olanda süperiletkenlik gözlenmezken, yüksek ısıl işlemli olanda  $T_c = 35$  K ve  $T_0 = 10.8$  K olarak bulunmuştur, Şekil 5.14.  $\Delta T$  değerinin ise diğer iki altlıktan çok daha yüksek bir değerde, 24.2 K olduğu görülmüştür. SEM incelemeleri bölümünde SrTiO<sub>3</sub> altlıklar üzerindeki çatlak ve deliklerin, diğer iki altlığa göre daha sık ve fazla miktarda ve rastgele oluştuğu bulunmuştu. Bu kısımda açıklanan kritik sıcaklık değerlerinin diğer iki altlığa ve literatürde yapılan farklı bir çok çalışmaya göre düşük olması, hatta düşük ısıl işlemli



**Şekil 5.14.** *a)* SrTiO<sub>3</sub> altlık üzerinde üretilen farklı ısıl işlemli filmlerin sıcaklık-direnç eğrileri b) Aynı eğrilerin 0-200 K arasındaki görünümü

filmde süperiletkenliğin oluşmamasının sebepleri 3 temel noktada toplanabilir;

- Altlık ve film tabakasının kristal parametrelerindeki önemli fark sonucunda istenen kimyasal oluşumun sağlanamaması ve çok fazla sayıda kristal kusurlarının oluşması,
- Tanecikler arasında çok ince (nano boyutta) safsızlık tabakalarının oluşması ve bunların iletim mekanizmaları üzerinde etkili olması,



**Şekil 5.15.** *a)* SrTiO<sub>3</sub> altlık üzerinde üretilen 925  ${}^{0}C$  ısıl işlemli filmde manyetik alanın sıcaklık direnç eğrisi üzerindeki etkisi *b)* Aynı eğrilerin 0-230 K arasındaki görünümü

<b>Tablo 5.3.</b> SrTiO <sub>3</sub> altlık üzerinde üretilen 925	°C ısıl işlemli filmi	n MR-T sonuçları
---	-----------------------	------------------

Manyetik Alan (T)	T <sub>c</sub> (K)	T <sub>0</sub> (K)	ΔT (K)
0	35	10.8	24.2
1	33.1	-	-
2	23.8	-	-
3	-	-	-

 iii) (i) ve (ii) maddelerindeki olumsuzluklar sonucunda yapıdaki elektronik koordinasyonun bozulması sonucunda iletim yollarının bloklanması veya daralması.

Benzer şekilde faz geçişinin 24.2 K gibi çok yüksek bir aralıkta gerçekleşmesi de yine aynı şekilde açıklanabilecektir.

Şekil 5.15 ve Tablo 5.3' te verilen yüksek ısıl işlemli filmin MR-*T* ölçümlerinde, manyetik alan hassasiyetinin, farklı altlıklı diğer iki filmden daha yüksek olduğu görülmektedir. 1 T' lık manyetik alan şiddetinin malzemede süperiletkenliğin oluşumunu engellediği görülmektedir. 3 T seviyesinde ise faz geçiş aşamasına dahi varılamamaktadır. R-*T* ölçümlerinde çok düşük  $T_0$  değeri üreten ve malzemenin kristal yapısı ve faz karakteri ile ilişkilendirilen sebeplerin burada da yine, bu sonuçların oluşmasında asıl sebebi teşkil ettikleri düşünülmektedir.

Tablo 5.4' te daha kolay karşılaştırılabilir olması için üç farklı altlığa ait filmlerin,  $T_c$ ,  $T_0$  ve  $\Delta T$  değerleri bir arada verilmiştir. Üç farklı altlık genel olarak değerlendirildiğinde ve özellikle yüksek ısıl işlemli filmlerdeki  $T_0$ ,  $\Delta T$  değerleri ve MR-T ölçümleri göz önüne alındığında süperiletkenlik kalitesi açısından daha iyi değerlerin öncelikle Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> altlık olmak üzere sırasıyla MgO ve SrTiO<sub>3</sub> altlıklarda oluştukları sonucuna varılır. Altlıkların kristal yapıları ve bununla yakından ilgili bir parametre olan termal genleşme katsayıları göz önüne alındığında bu durumun sürpriz olmadığı görülür. Altlıklar içerisinde hekzagonal kristal yapısı, 3.980 Å' luk örgü sabiti ve  $6x10^{-6}$ /K değerindeki termal genleşme katsayısı ile MgB<sub>2</sub> alaşımının kristal yapısı ve parametrelerine en yakın olan altlığın Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> altlık olduğu görülmektedir, Tablo 5.5.

Althk	Isıl işlem prosedürü	$T_{\theta}(K)$	$T_c(K)$	∆ <i>T(K</i> )
A1.O.	Spray 925	30.9	36.1	5.2
$A1_2O_3$	Spray 610	8.02	18.7	10.68
MaO	Spray 925	22.5	36	13.5
MgO	Spray 610	13.4	22.6	9.2
SrTiO.	Spray 925	10.8	35	24.2
511103	Spray 610	-	-	-

**Tablo 5.4.** Üç farklı altlık ve iki farklı ısıl işlem prosedürüne ait filmlerin  $T_0$ ,  $T_c$  ve  $\Delta T$  değerleri

**Tablo 5.5.**  $Al_2O_3$ , MgO ve  $SrTiO_3$  altlıkların ve  $MgB_2$  nin oda sıcaklığında termal genleşme katsayıları, kristal yapıları ve örgü sabitleri [92]

Althk	Termal Gen. Kts. (α)	Kristal Yapı	Örgü Sabiti (a=Å)
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	$6 \times 10^{-6} / K$	Hekzagonal	3.980
MgO	$13.8 \times 10^{-6}$ /K	Kübik	4.203
SrTiO <sub>3</sub>	10.8x10 <sup>-6</sup> /K	Kübik	3.905
$MgB_2$	5.4x10 <sup>-6</sup> /K	Hekzagonal	3.084

Dolayısıyla yüksek sıcaklıklarda daha belirgin olmak üzere, MgB<sub>2</sub> alaşımı ile hemen hemen aynı oran ve yönlerde genleşme göstermesi beklenen ve böylece yapıda çatlak benzeri kusurların oluşumuna en düşük seviyede katkı veren altlığın Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> olması beklenen bir durumdur. Zira, altlıklar sıcaklıkla birlikte kristal eksenleri boyunca büyüme gösterirler. Eğer bu büyüme miktarı filmin büyüme miktarından fazla veya az ise ve yönü filmin büyüme yönünden farklı ise film üzerinde mikro büyüklükte çatlaklar ve distorsiyonlar oluşabilir. Bu çatlaklar çok küçük boyutlarından dolayı, çoğu zaman SEM incelemelerinde fark edilemeseler bile, varlıklarını kritik sıcaklık, kritik akım ve manyetik ölçüm sonuçlarında hissettirmektedirler.

Bu bağlamda MgO ve SrTiO<sub>3</sub> altlıkların kübik kristal yapıları ve kaplama malzemesinden farklı termal genleşme katsayılarıyla, film yapısında karşılaşılan çatlakların daha sık ve boyutlarının daha büyük oluşmasına neden oldukları söylenebilir. Zaten elde edilen SEM resimleri de bu görüşü desteklemektedir. Bunlarla birlikte, tanecik yüzeyleri arasında oluştuğu düşünülen safsızlık fazları ve bu fazların elektronik koordinasyonu bozması, düşük elektriksel iletim sonuçlarına neden olan diğer sebepler olarak düşünülmektedir.

## 5.4. I-V Ölçüm Sonuçları

#### 5.4.1. Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> altlıklı filmlerin I-V ölçüm sonuçları

Süperiletken malzemelerdeki maksimum akım taşıma kapasitesini temsil eden kritik akım yoğunluğu iki farklı şekilde hesaplanabilmektedir. Bunlardan birincisi, M-H ölçümleri sonucu bulunan manyetizasyon değerlerinin Bean' in matematiksel ifadeleri kullanılarak yarı teorik olarak hesaplanması, ikinci yöntem ise bu tez kapsamında da

uygulandığı gibi I-V ölçümlerinden deneysel olarak elde edilen kritik akım değerlerinin, filmin dik kesit alanına bölünmesi sonucunda ortaya çıkan ve transport veya taşıyıcı akım yoğunluğu olarak isimlendirilen yöntemdir.

Bu bölümde de bir önceki bölüme benzer olarak daha iyi süperiletkenlik özelliklerine sahip yüksek ısıl işlemli filmlerin I-V karakterleri incelenmiştir. 610  $^{0}$ C' de ısıl işlem gören örnekler genellikle çok düşük değerler gösterdikleri için değerlendirmeye alınmamıştır. Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> altlıklı filmde farklı manyetik alanlar altında elde edilen I-V eğrileri ve grafikteki değerlerin kullanılmasıyla hesaplanan farklı manyetik alanlardaki *J<sub>c</sub>* değerleri Şekil 5.16 ve Tablo 5.6' da verilmiştir.



**Şekil 5.16.**  $Al_2O_3$  altlık üzerinde üretilen 925  ${}^{0}C'$  de ısıl işlem görmüş filmin farklı manyetik alanlarda I-V grafikleri

**Tablo 5.6.**  $Al_2O_3$  altlık üzerinde üretilen 925  ${}^{0}C'$  de ısıl işlem görmüş filmin 4.2 K sıcaklıkta ve 0-5 Tesla manyetik alan değerlerinde kritik akım yoğunlukları ( $J_c$ )

Manyetik Alan (Tesla)	0	1	2	3	4	5
$J_c$ (A/cm <sup>2</sup> )	15.5	12.8	10.4	8.3	5.0	1.8

Manyetik alanın olmadığı ortamda ve 4.2 K sıcaklıkta  $J_c$  değeri 15.5 A/cm<sup>2</sup> olarak hesaplanmıştır. Elde edilen bu sonuç Bean formülleri kullanılarak hesaplanan değerler ile karşılaştırıldığında çok düşük kalmaktadır. Ancak taşıyıcı (transport) akım

yoğunluğu değerleri için ise ortalamaya yakın bir değer olarak kabul edilmektedir. Bunlarla birlikte manyetik alan şiddetindeki 1 T' lık artışın  $J_c$  değerlerini ilk dört kademede ortalama olarak %20 gibi yüksek bir oranda düşürdüğü görülmektedir.

Hacimsel olarak elde edilmiş çok kristalli MgB<sub>2</sub> yapılarda birkaç farklı grup tarafından yapılan çalışmalarda kritik akım değerleri 10<sup>4</sup> ve 10<sup>5</sup> A/cm<sup>2</sup> mertebesinde bulunmuş ve MgB<sub>2</sub> taneciklerinin yönelimlerden tamamen bağımsız olarak çok kuvvetli bağlanma gerçekleştirdikleri gözlenmiştir [93-99].

Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ve SrTiO<sub>3</sub> tek kristal altlıklar üzerinde üretilen epitaksiyel ince filmlerde ise 4.2 K sıcaklıkta daha yüksek bir değer olan 10<sup>6</sup> A/cm<sup>2</sup> seviyelerine ulaşılmıştır [100,101]. Gerçekleştirilen bazı kalın film çalışmalarında ise 10<sup>4</sup> - 10<sup>6</sup> A/cm<sup>2</sup> aralığında değerler bulunmuştur [86-89]. Bu sonuçların tamamı M-H eğrilerinden yararlanılarak yapılan hesaplamalar sonucunda bulunmuştur.

Tez kapsamında yapılan çalışmada bulunan  $J_c$  değerlerinin, literatürde ulaşılan değerlerden düşük olmasının nedeni aynı zamanda  $T_c$ ,  $T_0$  değerlerinin düşük ve manyetik alanın malzeme üzerindeki nüfusunun ise yüksek olmasının nedenleri ile aynıdır.

Malzemedeki çatlaklar nedeniyle akım, film alanının büyük bölümünü kullanamamakta ve çatlaklar arasındaki homojen bölgelere yoğunlaşarak bu bölgelerde boğazlar oluşturmaktadır. Diğer yandan kritik akım değeri hesaplanırken filmin kesit alanının tamamı, akımı eşit miktarda iletiyor gibi düşünülmektedir. Fakat gerçek durumda akım sadece bu boğazlar boyunca akmaktadır. Benzer durum, filmi oluşturan tanecikler arasındaki süperiletken olmayan safsızlıklar için de düşünülebilir. Zira, safsızlıklar da genel olarak filmde süperiletken yapının hacmini azaltmakta, böylelikle süperakımların hareket alanını kısıtlamaktadırlar. Ayrıca safsızlıkların çok küçük miktarlarda oluşarak süperiletken tanecikler arasına girmek suretiyle süperakımların ilerlemesine karşı bir bariyer gibi davrandıkları da göz ardı edilmemelidir.

## 5.4.2. MgO altlıklı filmlerin I-V Ölçüm Sonuçları

Tek kristal MgO altlıklı, yüksek ısıl işlem gören filmde manyetik alanın yokluğunda  $J_c$  değeri 4.6 A/cm<sup>2</sup> olarak bulunmuştur, Şekil 5.17 ve Tablo 5.7.

Manyetik alan değerindeki 1 T' lık artış  $J_c$  değerini yarıdan daha fazla oranda düşürmüştür. Hem grafikler hem de yapılaşma göstermektedir ki,  $T_0$  değerinin düşük,  $\Delta T$  değerinin de yüksek olmasının nedeni önceki kesimde de anlatıldığı gibi tamamen mikroyapıda meydana gelen olumsuzluklardır. Öyle ki, yapı kusurları yani kristal yapıdaki eğilme-burulma, çatlaklar, süngerimsi yapılaşma, tanecik ara yüzeylerindeki safsızlık fazlarının oluşumu ve bunların uygulanan manyetik alana karşı oldukça duyarlı davranmaları  $J_c$  değeri üzerinde de son derece önemli bir etki yapmıştır.



**Şekil 5.17.** MgO altlık üzerinde üretilen 925  ${}^{0}C'$  de ısıl işlem görmüş filmin farklı manyetik alanlarda I-V grafikleri

**Tablo 5.7.** MgO altlık üzerinde üretilen 925  ${}^{0}C'$  de ısıl işlem görmüş filmin 4.2 K sıcaklıkta ve 0-5 Tesla manyetik alan değerlerinde kritik akım yoğunlukları ( $J_{c}$ )

Manyetik Alan (Tesla)	0	1	2	3	4	5
$J_c$ (A/cm <sup>2</sup> )	4.6	2.1	0.7	0	0	0

### 5.4.3. SrTiO<sub>3</sub> altlıklı filmlerin I-V Ölçüm Sonuçları

Tek kristal SrTiO<sub>3</sub> altlık üzerinde üretilen yüksek ısıl işlem görmüş filmin  $J_c$  değeri manyetik alanın yokluğunda 1 A/cm<sup>2</sup> olarak hesaplanmıştır, Şekil 5.18 ve Tablo 5.8. 1 T değerindeki manyetik alanın ise bu değeri yarıya yakın oranda düşürdüğü görülmektedir.

Üretilen bir süperiletkende kritik sıcaklık, kritik akım ve kritik manyetik alan değerlerinin birbirleri olan fiziksel ilişkileri göz önüne alındığında  $J_c$  büyüklüklerinin de  $T_0$  ve manyetik alan hassasiyetleri doğrultusunda oluşması beklenen bir durumdur. Bu

sonucu doğuran temel etkenler diğer altlıklarda da oluşan yapı kusurları ve mikro/nano boyutta tanecik ara yüzeylerindeki safsızlıkların varlığı olmuştur. Ayrıca, altlıkların kristal yapısı ve termal genleşme katsayıları ile kaplama malzemesi arasındaki uyumun derecesi de bu sonucun oluşmasına önemli katkı yapmıştır.



**Şekil 5.18.** SrTiO<sub>3</sub> altlık üzerinde üretilen 925  ${}^{0}C'$  de ısıl işlem görmüş filmin farklı manyetik alanlarda I-V grafikleri

**Tablo 5.8.**  $SrTiO_3$  altlık üzerinde üretilen 925  ${}^{0}C'$  de ısıl işlem görmüş filmin 4.2 K sıcaklıkta ve 0-5 Tesla manyetik alan değerlerinde kritik akım yoğunlukları ( $J_c$ )

Manyetik Alan (Tesla)	0	1	2	3	4	5
$J_c$ (A/cm <sup>2</sup> )	1	0.6	0.3	0	0	0

### 6. SONUÇLARIN GENEL DEĞERLENDİRMESİ

Tez kapsamında yüksek saflıkta MgB<sub>2</sub> tozu kullanılarak Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, SrTiO<sub>3</sub> ve MgO gibi üç farklı tek kristal seramik altlık üzerinde püskürtme tekniği ve iki farklı ısıl işlem döngüsü kullanılarak kalın filmler üretilmiştir. Üretilen filmlerin mikroyapısal analizleri yapılmış, yüzey yapıları ve farklı alanlar altında elektriksel özellikleri incelenmiştir. Analiz sonuçlarından yola çıkarak kullanılan altlık ve uygulanan yöntemlerin MgB<sub>2</sub> kalın filmlerin süperiletkenlik kalitesi üzerine etkileri araştırılmıştır.

Çalışma sonucunda, hazırlanma koşullarından kaynaklanan bazı olumsuzlukların filmlerin süperiletkenlik kalitelerini önemli oranda etkilediği görülmüştür. Buna rağmen filmlerin hepsinde yüksek veya düşük derecede süperiletkenliğe rastlanmıştır. Üç farklı altlık arasından en iyi sonuçlar Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> altlıkta, daha sonra sırasıyla MgO ve SrTiO<sub>3</sub> altlıklarda ortaya çıkmıştır. Altlıkların kristal yapısı ve termal genleşme katsayıları göz önüne alındığında MgB<sub>2</sub>' nin kristal yapısına en yakın olan altlığın da Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> olduğu görülmektedir. Dolayısı ile bu açıdan bakıldığında sonuçların beklentilere uygun olduğu söylenebilir. Uygulanan iki farklı ısıl işlem prosedüründen, 925 <sup>0</sup>C' de yapılan ısıl işlemlerin, düşük ısıl işlemli yönteme göre daha başarılı olduğu bulunmuştur. Özellikle kısmi erimenin ortaya çıktığı durumlarda, Mg' un buharlaşarak yapıdan uzaklaşmasına izin verilmediği takdirde (ısıl işlem tüplerine fazladan konulan MgB<sub>2</sub> tozu yardımı ile bu durum sağlanabilmektedir) kısa süreli de olsa yüksek sıcaklığa çıkılması taneciklerin daha iyi kaynaşmasına ve bağlanmasına imkan vermektedir.

#### 6.1. XRD Sonuçları

Öncelikle belirtilmeli ki kullanılan tek kristal altlıklar ile film tabakası arasında aşırı bir kimyasal reaksiyon gerçekleşmemiş, bunun yerine istenen veya beklenen ölçülerde filmlerin altlıklara tutunabileceği derecede bir reaksiyon olmuştur. Özellikle 925 <sup>o</sup>C ısıl işlemli Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> altlıklı filmlerde yüksek oranda reaksiyon olması beklenirken, (Al<sup>+3</sup> iyonlarının bu tip yapılar içerisindeki aşırı aktifliği ve mobilitesinden dolayı) makul düzeyde kalması çok önemli bir bulgu olarak görülmektedir. Bu durumun sebepleri arasında kristal yapıların tam olarak çakışması ve kristal parametrelerinin uyum içerisinde olması en önemli faktörler olarak görülmektedir.

Kullanılan diğer altlıkların da Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>' a benzer şekilde davranması yine önemli bir bulgu olarak görülmektedir. Ancak SrTiO<sub>3</sub> ve MgO altlıkların hem termal genleşme katsayılarının hem de kristal yapı ve parametrelerinin MgB<sub>2</sub>' den çok farklı olmaları, ısıl işlemler sırasında film tabakası içerisinde 2 boyutta gerilmelere neden olmuş, bu durum da kendini çatlak ve kırıkların daha sık oluşumu şeklinde göstermiştir. Yapılan X-ışını analizleri göstermektedir ki 610 <sup>0</sup>C' den sonra buharlaşmaya ve yapıdan uzaklaşmaya başlayan Mg'un varlığına rağmen, filmlerde ısıl işlemler sonucunda önemli sayılabilecek oranda Mg kaybı olmamıştır. Çünkü yapılarda Mg eksikliğinin göstergesi olan MgB<sub>4</sub> veya MgB<sub>12</sub> türünde fazlara rastlanmamıştır. Bu durum ısıl işlemlerin kapalı kap, Mo tüpler ve Ar atmosferinde yapılmasından kaynaklanmaktadır. Ayrıca Ar gazı ile yapılan püskürtme işlemleri esnasında filmlerin dış atmosferden etkilenmediği de görülmüştür. Çünkü yapıda oksitli bir bileşiğe rastlanmamıştır.

#### 6.2. SEM Sonuçları

SEM resimlerinde, farklı altlıklar üzerinde üretilen filmlerde farklı oranlarda da olsa çatlak, gözenek ve öbekler gibi süperiletkenlik özelliklerini direkt olarak ciddi şekilde etkileyebilen yapılara rastlanmıştır. Çatlak ve gözeneklerin oluşumu, kaplama malzemesi ve altlıklar arasındaki kristal yapı farklılıklarına ve ısıl işlemler sırasında filmin derinliklerinden buharlaşmaya çalışan Mg' un varlığına bağlanmıştır. Öbeklenmeler ise püskürtme işlemleri sırasında tabancanın ağzında biriken tozların zaman zaman tabancadan koparak altlık üzerine yapışmasına bağlanmaktadır. Filmlerin püskürtme işlemlerini takiben yüzeylerine basınç uygulanması yoluyla bu tür yapılaşmanın bir dereceye kadar engellenebileceği düşünülmektedir.

Bununla birlikte çatlaklardan uzak olan iç bölgelerde taneciklerin oldukça sıkı bir şekilde birbirine kaynaştığı iyi kristalize olmuş bölgelerin bulunduğu görülmüştür. Özellikle yüksek ısıl işlemli prosedürde bu kaynaşma daha iyi fark edilmektedir. Bu açıdan bakıldığında 925 <sup>0</sup>C' de yapılacak ısıl işlemlerin istenen formda kristal yapının oluşumu için yeterli olduğu söylenebilir.

#### 6.3. (R-T) ve (MR-T) Ölçüm Sonuçları

R-T ve MR-T ölçümlerinden filmlerin geçiş sıcaklıklarına ve geçiş aralıklarına karar verilmiş ve manyetik alanın bu değerler üzerindeki etkisi incelenmiştir. Sonuçta XRD desenlerinde ve SEM resimlerinde ortaya çıkan olumsuzlukların filmlerin süperiletkenlik geçiş sıcaklıkları,  $T_c$  ve  $T_0$  değerlerini önemli ölçüde düşürdüğü

görülmüştür. Yine filmlerin morfolojik yapıları ile çok yakından ilgili bir parametre olan manyetik alana karşı hassasiyet göz önüne alındığında bu oranın son derece yüksek olduğu hatta bazı altlıklarda 1 T' lık manyetik alan değerinin bile süperiletkenliği tamamen ortadan kaldırdığı gözlenmiştir. Geçiş aralıkları,  $\Delta T'$  nin ise yine yüksek değerlerde olması örneğin SrTiO<sub>3</sub> altlıklı yüksek ısıl işlemli filmde 24.2 K mertebesine varması, tanecikler arasında oluştuğu varsayılan ve süperiletken olmayan fazların ve filmlerin iç kısımlarındaki çatlaklarla birlikte oluşan süngerimsi yapının, elektriksel özellikler üzerindeki çok açık bir etkisi olarak değerlendirilmektedir. Bu tip olumsuzluklardan kurtulabilmek için kurutma ve ısıl işlemlerin yüksek basınç altında yapılması gerektiği düşünülmektedir.

## 6.4. I-V Ölçüm Sonuçları

I-V ölçümlerinden süperiletken malzemelerin kritik akım değerleri hesaplanmış ve manyetik alanın bu değerler üzerindeki etkisi incelenmiştir. Elde edilen sonuçlar diğer ölçüm sonuçları doğrultusunda, literatürde MgB<sub>2</sub>' nin farklı yöntemlerle hazırlanan kalın filmleri için bulunan değerlerden biraz daha düşük çıkmıştır. Bunun sebebi ise doğrudan mikro yapıda gözlenen olumsuzluklara bağlanmıştır.

Fakat çalışmanın sonuçları kendi içerisinde karşılaştırılacak olursa  $T_0$ ,  $J_c$  ve  $\Delta T$  değerlerinin birbiriyle aynı sıralamada oluştuğu ve daha önce değinildiği gibi her iki ölçümde de Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> altlığın daha iyi sonuçlar ürettiği görülmektedir. Bu durum ise altlığın kristal yapısının, kaplama malzemesi ile uyumlu olmasının gerekliliğini en açık biçimde ortaya koymaktadır. Ayrıca bu üç kritik değerin altlıklarda aynı sıralamada oluşması süperiletkenlikte bağımsız parametreler gibi görülen değerlerin aslında birbiri ile yakın ilişki içinde olduğunun bir başka göstergesi olarak kabul edilmektedir.

### KAYNAKLAR

- [1] H.K. Onnes, Leiden Commun. 120b, 122b, 124c,(1911)
- [2] H.K. Onnes, Sur'les resistances electriques communications from the physical Labaratory of University of Leiden, **Supplement**, 29 (1911)1
- [3] H.K. Onnes, Leiden Commun., (1913) 140b, c 141b
- [4] W. Meissner, H. Franz, Supraleitfähigkeit von Niobium, Physikalisch-Technische Reichsanstalt, **Mitteilung**: (1930) 558-559
- [5] W. Meissner, R. Ochsenfeld, Naturwissenscaften 21,787(1933)
- [6] F. London, H. London, **Prog. Roy. Soc.** (London) A (1935) 149,71
- [7] J. Bardeen, L. Cooper, J.R. Schrieffer, Phys. Rev. (1957) 108, 1175
- [8] J.G. Bednorz, K.A. Müller. Possible high-T<sub>c</sub> superconductivity in the Ba-La-Cu-O system, Z. Phys. B. 64(1986)189
- [9] J.R. Gavaler, M.A. Janocko, C.J. Jones, Applied Physics Letters. Vol. 23, No. 8 (October 1973): 480-482.
- [10] M.K. Whu, J.R. Asheburn, C.J. Torng, P.H. Hor, R.L. Meng, L. Gao, J. Huangz, Y. Wang, C.W. Chu, Phys. Rev. Lett. 58, (1987) 908-1002
- [11] H. Maeda., Y. Tanaka, M. Fukutumi, T. Asono, Jpn. J. Appl. Phys. 27, (1988) L209
- [12] M.R. Hazen, L.W. Finger, R.J. Angel, T.C. Prewith, R.L. Ross, A.M. Hermann, Phys. Rev. Lett. (1988) 60,657
- [13] S. N. Putilin, E.V. Antipov, O. Chmaissen, M. Marezio, Superconductivity at 94 K in HgBa<sub>2</sub>CuO<sub>4+δ</sub> Nature 362(1993)226
- [14] C.W. Chu, L. Gao, F. Chen, Z.J. Huang, R.L. Meng, Y.Y. Xue, Superconductivity above 150 K in HgBa<sub>2</sub>Ca<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>8+δ</sub> at high pressures. Nature 365(1993)323
- [15] P. Dai, B.C. Chakoumakos, G.F. Sun, K.W. Wong, Y. Xin, and D.F. Lu University of Kansas, Lawrence, Physica C. Vol. 243, No. 3&4 (February 1995), p. 201-206.
- [16] J. Akimitsu, 2001 Symposium on Transition Metal Oxides (Sendai, Japan, 10 January 2001, Superconductivity of metallic boron in MgB<sub>2</sub> Phys. Rev. Lett. 86(2001)4656
- [17] R.J. Cava, B. Batlogg, J.J. Krajewski, R. Farrow, L. W. Rupp Jr, A. E. White, K. Short, W.F. Peck, T. Kometani, Nature 332, (April 1988) 814 816
- [18] K. Tanigaki, T.W. Ebbesen, S. Saito, J. Mizuki, J.S. Tsai, Y. Kubo, S. Kuroshima, Nature 352, (July 1991) 222 - 223
- [19] C.J. Gorter, H.G.B. Casimir, 1934a, Phys.Z. 35, 963
- [20] C.J. Gorter, H.G.B. Casimir, 1934a, Z. Tech. Phys. 15, 539
- [21] A.C. Rose-Innes, E.H. Rhoderic, Introduction to superconductivity, Pergamon, 31-39
- [22] A. Mourachkine, Room-temperature superconductivity, Cambridge international science publishing, 2004
- [23] http://en.wikipedia.org/wiki/Ginzburg-Landau\_theory
- [24] V.L. Ginzburg, L.D. Landau, Zh. Eksp. Teor. Fiz. 20, (1950) 1064
- [25] http://www.physnet.uni-hamburg.de/home/vms/reimer/htc/pt3.html
- [26] http://ffden-2.phys.uaf.edu/212\_fall2003.web.dir/T.J\_Barry/bcstheory.html
- [27] http://quench-analysis.web.cern.ch/quench-analysis/phd-fs-html/node30.html # critical\_temperature
- [28] P.W. Anderson, Absence of diffusion in certain random lattices. Phys.Rev.B. 109 (1958)1492

- [29] C.M. Varma, P.B. Littlewood, S. Schmitt-Rink, E. Abrahams, A.E. Ruckenstein, Phys. Rev. Lett. 63 (1989) 1996.
- [30] B. Fauque, Y. Sidis, V. Hinkov, S. Pailhès, C. T. Lin, X. Chaud, and P. Bourges, Phys. Rev. Lett. 18(2006) 96,
- [31] http://www.physorg.com/news66994182.html
- [32] H.A. Blackstead, J.D. Dow, Role of Ba-site Pr in quenching superconductivity of Y<sub>1-y</sub>Pr<sub>y</sub>Ba<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>x</sub> and related materials, **Phys.Rev.B**. 51 (1995)11830
- [33] S. Tewari, S. Chakravarty, Collective modes in the d-density-wave state of the cuprates, Phys. Rev. B, 054510 (2002) 66
- [34] R.B. Laughin, Gossamer Superconductivity, Cond-mat, 0209269(2002)
- [35] http://www.physnet.uni-hamburg.de/home/vms/reimer/htc/pt3.html
- [36] http://phys.kent.edu/pages/cep.htm
- [**37**] A.B. Pippard, Physica 19, 765 (1953)
- [38] http://musr.physics.ubc.ca/theses/Sonier/MSc/node9.html
- [39] B.D. Josephson. The discovery of tunnelling supercurrents. Rev. Mod. Phys. 1974; 46(2): 251-254
- [40] S. Okumuş, Preparation Conditions and characterization on YBCO based superconductors, M.Sc. Thesis, Dokuz Eylül Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, 2004
- [41] C. Buzea, T. Yamashita, Review of the superconducting properties of MgB<sub>2</sub>, Supercond. Sci. Technol. 14 (2001) R118
- [42] C. Buzea, K. Robbie, Assembling the puzzle of the superconducting elements: a review, **Supercond. Sci.Technol.** 18(2005) R1-R8.
- [43] D.U. Gubser, A.W. Webb, High-pressure effects on the superconducting transition temperature of aluminum Phys.Rev. Lett. 1975,35 104–7
- [44] L.D. Jennings, C.A. Swenson, Effects of pressure on the superconducting transition temperatures of Sn, In, Ta,Tl, and Hg, **Phys. Rev.** 112, (1958) 31–43
- [45] J. Wittig, Superconductivity of germanium and silicon at high pressure, Z. Phys. 195 (1966) 215–27
- [46] M.A. Il'ina, E.S. Itskevich, Superconductivity of barium at high pressures JETP Lett. 11 (1970) 15–7
- [47] M.I. Eremets, V.V. Struzhkin, H.K. Mao, R.J. Hemley, Superconductivity in boron, Science 293 (2001) 272–4
- [48] M.A. Il'ina, E.S. Itskevich, Superconductivity of high-pressure phases of silicon in the pressure range up to 14 GPa Sov. Phys.—Solid State 22(1980) 1833–5
- [49] A.L. Chen, Superconductivity in arsenic at high pressures Phys. Rev. B(1992) 46 5523–7
- [50] Y. Akahama, M. Kobayashi, H. Kawamura, Pressure induced superconductivity and phase transition in selenium and tellurium Solid State Commun. (1992) 84 803–6
- [51] I. Shirotani, Phase transitions and superconductivity of black phosphorus and phosphorus-arsenic alloys at low temperatures and high pressures Phys. Rev. B 50 (1994) 16274–8
- [52] K. Amaya K, Observation of pressure-induced superconductivity in the megabar region J. Phys.: Condens. Matter 10 (1998)111179–90
- [53] V.V. Struzhkin, R.J. Hemley, H.K. Mao, Y.A. Timofeev Superconductivity at 10–17 K in compressed sulphur Nature 390 (1997)382–4
- [54] K. Shimizu, The pressure induced superconductivity of iodine J. Supercond. 7 (1994)921–4

- [55] Z.D. Yakıncı, Metalik MgB<sub>2</sub> süperiletkenlerin tüp metodu ile hazırlanması, elektron ve hole katkılamalarının baz MgB<sub>2</sub> sistemde oluşturacağı etkilerin incelenmesi, Yüksek lisans tezi, İnönü Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, 2005
- [56] N. Doğan, YBCO (123) sistemin Co/Mo katkılı kalın film üretimi ve genel karakterizasyonu, Yüksek lisans tezi, İnönü Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, 2005
- [57] S. Altın, Cam-Seramik BSCCO süperiletken sistemde whiskerlerin eldesi, fiziksel, manyetik ve elektriksel özelliklerinin belirlenmesi, Yüksek lisans tezi, İnönü Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, 2005
- [58] K. Shimizu, 2002, Superconductivity in compressed lithium at 20 K, Nature 419 597-9
- [59] M.I. Eremets, V.V. Struzhkin, H.K. Mao, R.J. Hemley, 2001, Superconductivity in Boron, Science 293 272-4
- [60] R. Kiessling, Acta Chem. Scand. 1949, 3 603
- [61] L. Leyarovska, E. Leyarovski, J. Less-Common Met. 67 (1979) 249
- [62] D. Kaczorowski, A.J. Zaleski, O.J. Zogal, J. Klamut, Incipient superconductivity in TaB<sub>2</sub>, Cond-mat, 2001b, 0106394
- [63] V.A. Gasparov, N.S. Sidorov, I.I. Zver'kova, M.P. Kulakov, Electron transport in diborides: Observation of superconductivity in ZrB<sub>2</sub>, Cond-mat, 2001,104323
- [64] I. Fenler, Absence of superconductivity in BeB<sub>2</sub>, Physica C, 2001,353 11
- [65] D.P. Young, P.W. Adams, J. Chan, F.R. Fronczek, Cond-mat, 104063
- [66] F. Giubileo, Phys. Rev. Lett. 177008 (2001) 87
- [67] R.A. Kaindl, M.A. Camahan, J. Orenstein, D.S. Chemla, Far-infrared optical conductivity gap in superconducting MgB<sub>2</sub> Films, Phys. Rev. Lett., 027003 (2002) 88
- [68] S. Tsuda, T. Yokoya, T. Kiss, Y. Takano, K. Togano, H. Kito, H. Ihara, S. Shin, Phys.Rev.Lett. 177006 (2001) 87
- [69] P. Szabo, P. Samuel, J. Kacmarcik, T. Klein, J. Marcus, D. Fruchart, S. Miraglia, C. Marcenat, A.G. Jansen, Phys.Rev.Lett. 47001 (2001) 87
- [70] B.B. Jin, N. Klein, W.N. Kang, H.J. Kim, E.M. Choi, S.I. Lee, T. Dahm, K. Maki, Energy gap, penetration depth, and surface resistance of MgB<sub>2</sub> thin films determined by microwave resonator measurements, Phys. Rev. B. 104521 (2002) 66
- [71] F. Manzano, A. Carrington, N.E. Hussey, S. Lee, A. Yamamoto, S.Tajima, Phys.Rev.Lett. 47002 (2002) 88
- [72] F. Bouquet, Y. Wang, R.A. Fisher, D.G. Hinks, J.D. Jorgensen, A. Junod, N.E. Philips, Phenomenological two-gap model for the specific heat of MgB<sub>2</sub>, Europhys. Lett. 56, (2001) 856-862
- [73] J.E. Hirch, F. Marsiglio, Electron-Phonon or Hole Superconductivity in MgB<sub>2</sub>, Cond-mat (2001) 0102479
- [74] W.N. Kang, C.U. Jung, K.H.P. Kim, M.S. Park, S.Y. Lee, H.J. Kim, E.M. Choi, K.H. Kim, M.S. Kim, S.I. Lee, Hole carrier in MgB<sub>2</sub> characterized by Hall measuremments, Appl.Phys.Lett. 79(2001) 982
- [75] S.R. Chavarria, P. De La Mora, G. Tavizon, MgB<sub>2</sub>; Al and C doping, σ-band filling and anisotropy reduction, American Physical Society, (march-2006) A39.010
- [76] H.Y. Choi, D. Roundy, H. Sun, M.L. Cohen, S.G. Louie, The origin of anomalous superconducting properties of MgB<sub>2</sub>, Nature, 418 (2002) 759

- [77] O.F. de Lima, C.A. Cardoso, Anisotropy in MgB<sub>2</sub>, **Braz. J. Phys.** vol.33 Sao Paulo Dec. 2003 no.4
- **[78]** E. Bayazıt, Co ve Mo katkılı MgB<sub>2</sub> süperiletken sistemin PIT (Powder in Tube) metodu kullanılarak şerit formunda hazırlanması ve genel karakterizasyonu, Yüksek Lisans Tezi, **İnönü Üniversitesi**, Fen Bilimleri Enstitüsü, 2005
- [79] S.L. Bud'ko, G. Lapertot, C. Petrovic, C.E. Cunningham, N. Anderson, P.C. Canfield, Boron isotope effect in superconducting MgB<sub>2</sub>, Phys.Rev.Lett. 86(2001)1877
- [80] D.G. Hinks, H. Claus, J.D. Jorgensen, The Complex mature of superconductivity in MgB<sub>2</sub> as revealed by the reduced total isotope effect, **Nature**, 411(2001)457
- [81] T. Vogt, G. Schneider, J. A. Hriljac, G. Yang, J. S. Abell, Phys. Rev. B R220505 (2001) 63
- [82] P. Bordet, M. Mezouar, M. Nunez-Regueiro, M. Monteverde, M. D. Núnez-Regueiro, N. Rogado, K. A. Regan, M. A. Hayward, T. He, S. M. Loureiro, R. J. Cava, Phys. Rev. B 172502 (2001) 64
- [83] A.H. Li, X.L. Wang, M. Ionescu, S. Soltonian, J.Horvat, T. Silver, H.K. Liu, S.X. Dou, Physica C 361 (2001) 73-78
- [84] Y.-B. Zhu, J.-D. Xu, S.-F. Wang, Y.-L. Zhou, Z.-H. Chen, H.-B. Lu, Physica C 371 (2002) 7-9
- [85] C. Chen, X. Wang, Y. Lu, Z. Jia, J.-p. Guo, X.-n. Wang, M. Zhu, Physica C 416 (2004) 90-94
- [86] S.F. Wang, Y.L. Zhou, Y.B. Zhu, Q.Zhang, Z. Liu, Z.H. Chen, H.B. Lu, Physica C 390 (2003) 6-10
- [87] Q.W. Yao, X.L. Wang, J. Horvat, S.X. Dou, Physica C 402 (2004) 38-44
- [88] F. Li, T. Guo, K. Zhang, L.-P. Chen, C. Chen, Q.-R. Feng, Supercond. Sci. Technol. 19 (2006) 1073-1075
- [89] R. Sakaguchi, Y. Ikebe, E. Ban, Y. Matsuoka, Journal of Alloys and Compounds, (2006)
- [90] Q.W. Yao, X.L. Wang, S. Soltanian, A.H. Li, J. Horvat, S.X. Dou, Ceramics international, 30 (2004) 1603-1606
- [91] K. Zhang, L. Ding, C.-G. Zhuang, L.-P. Chen, C. Chen, Q.-R. Feng, Phys. Stat. Sol. (a)203, No:10, (2006) 2463-2467
- [92] N. Baştürk, Yüksek kritik sıcaklıklı seramik üstüniletken kalın film hazırlama teknikleri I. YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub> kalın filmlerin hazırlanması ve fiziksel özellikleri, Fen bilimleri dergisi
- [93] Y. Takano, H. Takeya, H. Fujii, H. Kumakura, T. Hatano, K. Togano, Condmat/0102167
- [94] D.C. Larbalestier, M.O. Rikel, L.D. Cooley, A.A. Polyanskii, J.Y. Jiang, S. Patnaik, X.Y. Cai, D.M. Feldamnn, Nature 410 (2001) 186.
- [95] Y. Bugoslavsky, G.K. Perkins, X. Qi, L.F. Cohen, A.D. Caplin, Condmat/0102353
- [96] M.-S. Kim, C.U. Jung, M.-S. Park, S.Y. Lee, H.P. Kim Kijoon, W.N. Kang, Cond-mat/0102338
- [97] H.H. Wen, S.L. Li, Z.W. Zhao, Y.M. Ni, Z.A.Ren, G.C. Che, H.P. Yang, Z.Y. Liu, Z.X. Zhao, Cond-mat/102436
- [98] K.-H. Muller, G. Fuchs, A. Handstein, K. Nenkov, V.N. Narozhnyi, D. Eckert, Cond-mat/0102517
- [99] H.P. Kim Kijoon, W.N. Kang, M.-S. Kim, C.U. Jung, H.-J. Kim, E.M. Choi, M.S. Park, S.I. Lee, Cond-mat/0103176
- [100] C.B. Eom, Nature 411 (2001) 558

[101] W.N. Kang, H.J. Kim, E.M. Choi, C.U. Hung, S.I. Lee, Cond-mat/0103179

# ÖZGEÇMİŞ

1979 yılında Malatya' nın Yeşilyurt ilçesinde doğdu. İlk ve ortaöğrenimini Malatya' da bulunan Feyzullah Taşkınsoy İlkokulu ve Gazi Lisesi' nde tamamladı. Yüksek öğrenimini 1996-2001 yılları arasında Boğaziçi Üniversitesi Fen Edebiyat Fakültesi Fizik Bölümünde gerçekleştirdi.

Mezuniyet sonrasında Malatya Anadolu Otelcilik ve Turizm Meslek Lisesi'nde bir yıl süreyle inglizce öğretmenliği yaptı. 2002-2005 yılları arasında İnönü Üniversitesi Turgut Özal Tıp Merkezi Radyasyon Onkolojisi Anabilim Dalı'nın kurulumunda görev aldı. Bu süre içerisinde bölümde bulunan sistemlerin kurulum ve kullanımına yönelik çok sayıda eğitim programına katıldı. 2005 yılından itibaren İnönü Üniversitesi Bilimsel ve Teknolojik Araştırma Merkezinde yer alan taramalı elektron mikroskobunun operatörlüğünü yürütmektedir. Aynı zamanda 2005 yılının güz döneminde İnönü Üniversitesi Fizik Bölümü'nde yüksek lisans eğitimine başlamıştır. Evli ve bir çocuk babasıdır.