

Investigation of The Effect of Temperature on The Structural and Magnetic Properties of MgB₂ Superconductor Produced Using Boron Doped with Carbon by CVD Method

Naki KAYA^{1,*} , Şükrü ÇAVDAR² , Haluk KORALAY²

¹ Opticianry Program, Vocational School, T.C. İstanbul Arel University, 34295, Küçükçekmece/İSTANBUL.

² Superconductivity and Thermal Analysis Laboratory (STAL), Department of Physics, Faculty of Science, Gazi University, 06531, Yenimalle/ ANKARA

Article Info:

Research article

Received:26/02/2021

Revision:01/04/2021

Accepted:19/04/2021

Highlights

- Nano Materials
- Superconductivity
- Magnezyum Diborür

Keywords

Chemical Vapor
Deposition
MgB₂
Magnetization

Graphical/Tabular Abstract

In this study, two basic experimental processes, chemical vapor deposition and classical solid state reaction step, were used. Ankara University Chemical Engineering Nanotechnology Laboratory for the chemical vapor deposition step, Gazi University Physics Department Superconductivity and Thermal Analysis Laboratory for the preparation of chemical materials, and Ankara University Physics Department Solid State Laboratory for the baking of the prepared samples were used. Figure A shows the experimental process.

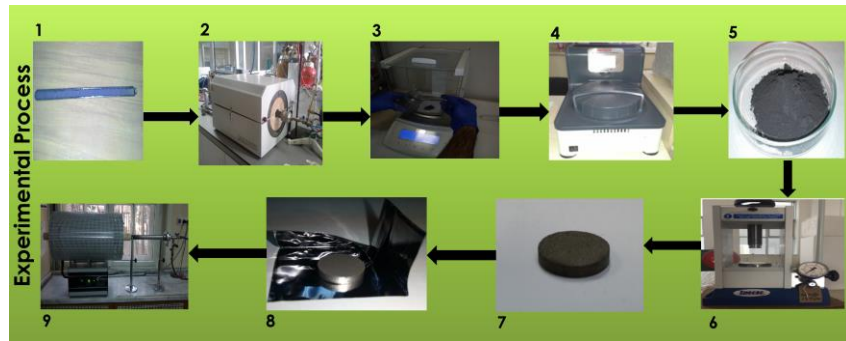


Figure A. Experimental Process

Purpose: The main purpose of this study is to examine how the reaction temperature affects the electrical and magnetic properties the MgB₂ superconductor, which is obtained by adding carbon through chemical vapor deposition method.

Theory and Methods: Many researchers carry out many different studies to improve the existing physical properties of existing superconductors. Doping studies are quite common for the MgB₂ superconductor. Based on the literature information, it can be said that carbon additives are the best results among the existing additives. In this study, the carbon structure, which plays a curative role on the physical properties of MgB₂, has been added to MgB₂ by chemical vapor deposition method. SEM analyses, elemental analysis, X-ray diffraction method (XRD), vibrating sample magnetometer (VSM) method and Bean Method were used in the analyses.

Results: As a result of the examinations, when compared between the 4 different sintering temperature values used, it was found that the sintering temperature of 900 °C was the temperature at which the best physical results were obtained in MgB₂.

Conclusion: It was observed that the MgB₂ superconductor structure was formed in all samples, deterioration was observed in the current lattice parameters of MgB₂ with carbon doping, the magnetization value was higher at high temperatures compared to low temperatures, and the sample with the highest critical current density value was the sample obtained by sintering at 900 °C. It was seen that all the results obtained were consistent with each other and with literature.



Investigation of The Effect of Temperature on The Structural and Magnetic Properties of MgB₂ Superconductor Produced Using Boron Doped with Carbon by CVD Method

Naki KAYA^{1,*}, Şükrü ÇAVDAR², Haluk KORALAY²

¹ Optisyenlik Programı, Meslek Yüksekokulu, T.C. İstanbul Arel Üniversitesi, 34295, Küçükçekmece/ İSTANBUL

² Süperiletkenlik ve Termal Analiz Laboratuvarı (STAL), Fizik Bölümü, Fen Fakültesi, Gazi Üniversitesi, 06531 Yenimahalle/ANKARA

Abstract

Carbon, which is known to play a improvement role on the superconductivity properties of MgB₂, was doped into MgB₂ by CVD (chemical vapor deposition) method, and the change of structural and magnetic properties observed in MgB₂ in relation to the change of reaction temperature was investigated. In this context, in the sample preparation step, amorphous nano boron powders with carbon added by chemical vapor deposition method were mixed with magnesium powders at certain mass ratios and sintered at four different temperatures (700-800-900-1000 °C) with the classical solid state reaction method and converted into carbon-added MgB₂ samples. SEM photographs of amorphous nano-boron powders with carbon added were taken and subjected to elemental analysis. The structural and magnetic properties of the samples obtained were examined. X-ray diffraction graph, magnetization values and Magnetic Field-Magnetic Moment (M-H) graphs of the samples obtained by XRD method and the critical current density values with Bean Method were found and Magnetic Field-Critical Current Density (J_c-H) graph was created. It was determined that, in all the samples obtained, the MgB₂ superconductor structure was formed and the carbon structures included in the structure caused changes in the lattice parameters due to the ion radius difference, that fracture occurred in the magnetization curve of the sample prepared by sintered at 1000 °C due to the intense impurities caused by the phase transitions due to the high temperature, in samples prepared at low temperatures, and that magnetization curves that could not expand sufficiently were observed, flux jumping occurs in the magnetization curve and this also affected the critical current density. In addition, the change in the critical current density value from 7.0x10³ A/cm² to 2.8x10⁴ A/cm² showed that the reaction temperature was an effective parameter on the experimental results. As a result of the examinations, when compared between the 4 different sintering temperature values used, it was found that the sintering temperature of 900 °C was the temperature at which the best physical results were obtained in MgB₂.

Makale Bilgisi

Araştırma makalesi
Başvuru: 26/02/2021
Düzeltilme: 01/04/2021
Kabul: 19/04/2021

Keywords

Chemical Vapor
Deposition
MgB₂
Magnetization

Anahtar Kelimeler

Kimyasal Buhar
Biriktirme
MgB₂
Manyetizasyon

CVD Yöntemi ile Karbon Katkılanmış Bor Kullanılarak Üretilen MgB₂ Süperiletkeninin Yapısal ve Manyetik Özelliklerine Sıcaklık Etkisinin İncelenmesi

Öz

Bu çalışmada, MgB₂'nin süperiletkenlik özellikleri üzerinde iyileştirici bir rol oynadığı bilinen karbon, CVD (kimyasal buhar biriktirme) yöntemi ile MgB₂'ye katkılanarak sinterleme sıcaklığının değişimine bağlı olarak MgB₂'de gözlenen yapısal ve manyetik özelliklerin değişimi incelendi. Bu kapsamda, numune hazırlama basamağında kimyasal buhar biriktirme yöntemi ile karbon katkılanmış amorf nano bor tozları, belirli kütle oranlarında magnezyum tozları ile karıştırılıp klasik katıhal reaksiyon yöntemi ile de dört farklı sıcaklıkta (700-800-900-1000 °C) sinterlenerek karbon katkılanmış MgB₂ numunelerine dönüştürüldü. Karbon katkılanan amorf nano bor tozlarının SEM fotoğrafları alınarak elementel analize tabi tutuldu. Elde edilen numunelerin XRD yöntemi ile x-ışını kırınımı grafiği, manyetizasyon değerleri ile Manyetik Alan-Manyetik Moment (M-H) grafiği ve Bean Yöntemi ile de kritik akım yoğunluğu değerleri bulunarak Manyetik Alan-Kritik Akım Yoğunluğu (J_c-H) grafiği oluşturuldu. Elde edilen tüm numunelerde MgB₂ süperiletken yapısının oluşturulduğu, yapı içerisine dahil olan karbon

yapılarının, iyon yarıçap farkından kaynaklı örgü parametrelerinde değişimler meydana getirdiği, yüksek sıcaklığa bağlı olarak faz geçişleri neticesinde oluşan yoğun safsızlıklardan ötürü 1000 °C'de sinterlenerek hazırlanan numunenin manyetizasyon eğrisinde akı zıplamasının meydana geldiği, düşük sıcaklıklarda hazırlanan numunelerde ise yeterince genişleyemeyen manyetizasyon eğrilerinin görüldüğü ve bunun kritik akım yoğunluğuna da etki ettiği saptandı. Ayrıca kritik akım yoğunluğu değerinin 7.0×10^3 A/cm² değerinden 2.8×10^4 A/cm² değerine kadar bir değişim göstermesi sinterleme sıcaklığının deneysel sonuçlar üzerinde etkili bir parametre olduğunu kanıtladı. Yapılan incelemeler sonucunda kullanılan dört farklı sinterleme sıcaklığı arasında kıyaslandığında 900 °C sinterleme sıcaklığının MgB₂'de en iyi fiziksel sonuçların alındığı sıcaklık olduğu görülmüştür.

1. GİRİŞ (INTRODUCTION)

2001 yılında süperiletkenlik özelliği keşfedilen MgB₂ [1] bileşiği; günümüzde tel, şerit, yığın gibi farklı formlarda ve çok çeşitli teknolojik sistemlerde kullanılmaktadır. Kullanım alanının çokluğuna paralel olarak birçok araştırmacı yapmış oldukları farklı çalışmalarla MgB₂'nin kritik akım yoğunluğu, kritik geçiş sıcaklığı, manyetizasyon değeri gibi birtakım fiziksel özelliklerini geliştirmeye çalışmaktadır. Bu amaçla yapılan çalışmaların bir kısmında katkılama yöntemine başvurulmaktadır. Ti-C [2], Co [3], Fe₃O₄ [4], Al [5], Na₂CO₃ [6] gibi birçok farklı malzeme MgB₂'ye katkılanmıştır. Katkılama çalışmalarının bir kısmında MgB₂'nin fiziksel özellikleri üzerinde olumlu anlamda geliştirici sonuçlar alınmış olursa da karbon katkılarının diğer katkı malzemelerine kıyasla MgB₂ üzerinde kritik akım yoğunluğuna daha fazla olumlu etkiler oluşturduğu keşfedilmiştir [7]. Bu keşfin takibiyle birçok araştırmacı, MgB₂ süperiletkenine farklı yöntemlerle, farklı miktarlarda karbon yapılarının katkılanmasını yapmışlardır [8-11].

Karbonun hedef malzemeye katkılanması birçok farklı yöntemle yapılabilmektedir. Bu çalışmada ise, homojen yapı eldesinin kolaylığı, deney parametrelerinin ayarlanabilmesi, maliyetinin düşük olması gibi bir dizi avantajlardan dolayı CVD (kimyasal buhar biriktirme) yöntemi ile MgB₂'ye karbon katkısı gerçekleştirilmiştir.

Kimyasal buhar biriktirme yönteminin temel mantığında; belli sıcaklıktaki fırın içerisine yerleştirilen hedef numune üzerine kapalı fırın ortamında hidrokarbon kaynağı gönderilerek, hidrokarbon kaynağındaki karbon yapılarının hedef numune üzerine çöküp hedef numune üzerinde karbon birikimini sağlamak yatmaktadır. Kimyasal buhar biriktirme yönteminde hidrokarbon kaynağı olarak gaz fazında etilen, asetilen, metan gibi içeriğinde karbon bulunan yapılar kullanılmaktadır. Deney esnasında ortaya çıkabilecek oksijen moleküllerine tutunması için sistem içerisine hidrojen gazı gönderilir. Yapı içerisinde oluşmasının istenilmediği fazların süpürülüp atılması ve mevcut hidrojen gazının yüksek ısı ile temas edip olası olumsuz durumların oluşmaması için de sistem deney esnasında inert gaz akışı ile beslenmektedir.

Süperiletken malzemeler için kritik akım yoğunluğu değerinin yüksek, kritik geçiş sıcaklığının ise mümkün oldukça oda sıcaklığına yaklaşması oldukça önemlidir. Örneğin iletim hatlarında kullanılan bir süperiletken malzemenin cm² başına taşıdığı akım miktarının artışı tek seferde yüksek miktarlarda enerji transferlerini mümkün kılarken, genel olarak tüm süperiletkenlerde kritik geçiş sıcaklığının yükselmesi de ihtiyaç duyulan soğutucu maliyetlerini azaltacak ve bu sayede de süperiletkenlerin kullanım yelpazesi genişleyecektir.

Bu çalışmanın ek olarak, karbon katkısı sayesinde yapı içerisinde karbon atomları ile bor atomlarının yer değişimi sonucu, akı tuzaklaması oluşturarak MgB₂'de kritik akım yoğunluğunu arttırmak gibi bir amacı da söz konusudur. Karbonun yeterince çözünüp yapı içerisinde homojen dağılımı, bu amacın gerçekleşmesinin koşullarından birisidir. Bu düşünce ile yola çıkıldığında homojen yapı elde edilebilirliği yüksek olan kimyasal buhar biriktirme yönteminin bu çalışmada kullanılmasının uygun olduğu anlaşılmaktadır.

Kimyasal buhar biriktirme yöntemi ile karbon katkılanan borun SEM fotoğrafları çekilip elementel analize tabi tutulmuştur. Bu sayede bor üzerinde karbon birikiminin sağlanıp sağlanmadığı ve hangi oranda karbon birikimi gerçekleştiği tespit edilmiştir. Karbon katkılanan bor kullanılarak elde edilen

MgB₂ numunelerinin yapısal özellikleri XRD yöntemi ile, manyetik özellikleri VSM yöntemi ile kritik akım yoğunluğu değerleri ise Bean yöntemi [12] ile bulunmuştur.

XRD Yöntemi; Bragg Yasası'nı temel almakla birlikte, malzemelerin kristalografik özelliklerinin belirlenmesinde oldukça yaygın olarak kullanılmaktadır. Bu yöntem uygulama kolaylığı, sonuçları verme doğruluğu, çabuk analiz yapabilme özelliği gibi olumlu yanlarından ötürü, birçok farklı disiplince kullanılan bir yöntemdir. Kristalografik analiz basamağında tanecik büyüklüğü hesabı Denklem 1 ile gösterilen Scherrer Denklemi [13] ile yapılmıştır.

$$D = \frac{K\lambda}{\beta \cos \theta} \quad 1$$

Burada D; tanecik büyüklüğü, K; Scherrer sabiti (0,90), λ ; x-ışını kaynağından gönderilen ışının dalga boyu, β ; en şiddetli pikin maksimum yarı genişliği (FWHM) ve θ ; Bragg kırınım açısı olarak tanımlanmaktadır.

Bu çalışma sonucu elde edilen numunelerin hegzagonal yapıda olduğu bilindiğinden ötürü numunelere ait örgü parametreleri hegzagonal yapılarda örgü parametresini bulmaya olanak sağlayan Denklem 2 ile hesaplanmıştır.

$$\frac{1}{d^2} = \frac{4}{3} \left[\frac{h^2+hk+k^2}{a^2} \right] + \frac{l^2}{c^2} \quad 2$$

Bu denklemde d; düzlemler arası mesafe, h, k, l; Miller indisleri, a ve c; örgü parametreleridir. Hegzagonal yapıda a=b olduğundan bulunan a değeri aynı zamanda b değeri olarak; yükseklik parametresi ise c olarak tanımlanır. Yine kristalografik analiz basamağında düzlem kaymalarının oluşup oluşmadığı da bilgisayar programı yardımı ile tespit edilmiştir.

VSM Yöntemi; temelde Faraday'ın akı değişimi ile bobinlerde oluşturulabilecek elektromanyetizma varlığına dayanır. VSM sistemi içerisinde düzgün manyetik alan altında, ölçümü yapılacak numune titreşim hareketi yapar. Numunenin mıknatıslanması sağlanır ve bu sayede de bobinlerde bir voltaj oluşturulur. Numune periyodik olarak bobinler arasında hareket ettirilir. Ölçüm düzeneği çok küçük manyetik momentlere dahi duyarlı olduğundan bu periyodik hareketlerde var olan manyetik moment değişimleri tespit edilip ölçümlendirme gerçekleştirilir.

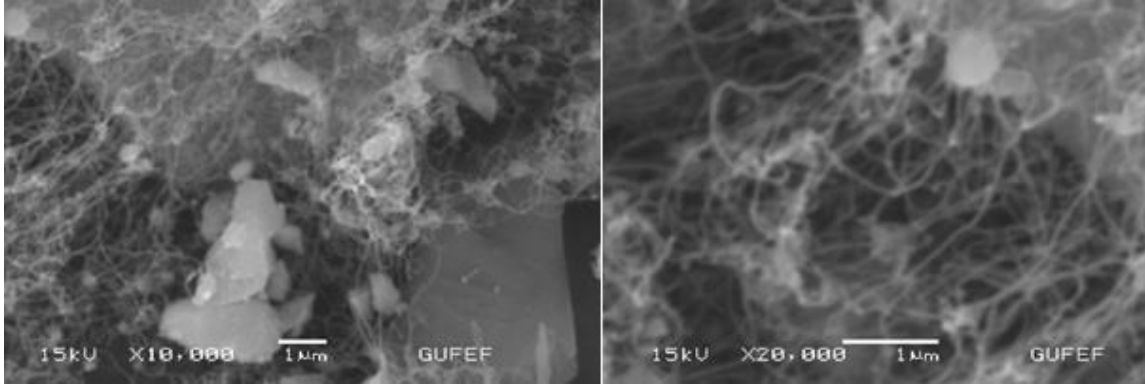
Bean Yöntemi; yarı deneysel bir yöntem olarak karşımıza çıkmaktadır. Bu yöntem süperiletkenlerde kritik akım yoğunluğu değerinin hesaplanması için oldukça sık kullanılmaktadır. Denklem 3 Bean yönteminin matematiksel formülünü göstermektedir.

$$J_c = 20 \times \frac{\Delta M}{a \left(1 - \frac{a}{3b}\right)} \quad 3$$

Bu denklemde ΔM ; Manyetik Alan-Manyetik Moment (M-H) eğrisinden elde edilen, numuneye uygulanan dış manyetik alana karşı numunenin vermiş olduğu manyetik tepkinin pozitif ve negatif bölge bandındaki farkıdır [$\Delta M=(M^+)-(M^-)$], a ve b; numune boyutlarıdır.

2. MATERYAL VE METOT (MATERIAL AND METHOD)

Bu çalışmada, amorf nano bor tozlarına, 90 dakika 700 °C sıcaklıkta karbon ile kaplama yapıldı. Kullanılan deneysel parametreler ise; % 95-97 saflıkta amorf bor tozları (parçacık boyutu <1µm), hidrokarbon kaynağı olarak etilen gazı (20 ml/dk), taşıyıcı gaz olarak helyum (100 ml/dk) ve hidrojen gazı (100 ml/dk) olarak belirlendi. Kimyasal buhar biriktirme basamağının hemen ardından bor yapılarına karbon yapılarının birikiminin sağlanıp sağlanmadığını görmek açısından Elde edilen karbon katkılanmış amorf nano bor tozlarının, yüzdelik olarak ne kadar karbon içerdiğinin tespit edilebilmesi açısından ODTÜ Merkez Laboratuvarı'na bağlı Polimer Analiz Laboratuvarı (PAL)'nda elemental analiz yapılmıştır. Analiz sonucunda yapı içerisinde % 14,70 oranında karbon yapısının bulunduğu görülmüştür.



Şekil 1. Karbon katkılanmış bor numunesinin 10000 ve 20.000 büyütme altında alınmış SEM fotoğrafları

X10.000 ve X20.000 büyütmede alınan SEM fotoğraflarında çok duvarlı karbon nanotüpler (MWCNT-ÇDKNT) karbon yapıları ipliksi halde belirgin bir biçimde Şekil 1’de görülmektedir [14]. Her ne kadar SEM fotoğraflarında karbon yapıları oldukça fazla bir yüzdeliğe sahipmişçesine yoğun olarak görülebilir de karbon yüzdeliği % 14,70 olarak saptanmıştır. SEM fotoğrafları karbon yapılarının net görülebilmesi açısından oldukça büyük bir büyütme altında, karbon yapılarına odaklanılarak çekilmiştir. Dolayısı ile SEM fotoğraflarından, karbon fazının baskın faz gibi algılanması bu açıdan oldukça doğaldır. Karbon birikiminin başarılı bir biçimde gerçekleştiğinin tespitinin ardından deneysel sürecin bir diğer adımı olan katıhal reaksiyon basamağına geçilmiştir.

MgB₂ oluşumu için gerekli sitokiyometrik oran hesabı yapılarak toplamda 10 g olacak şekilde 5,29 g Mg ve 4,70 g karbon katkılanmış amorf nano bor tozları otomatik karıştırıcı ile 750 rpm dönme hızında, 60 dakika karıştırıldı. Bu basamağın temel amacı karıştırma sayesinde homojeniteyi arttırmaktır.

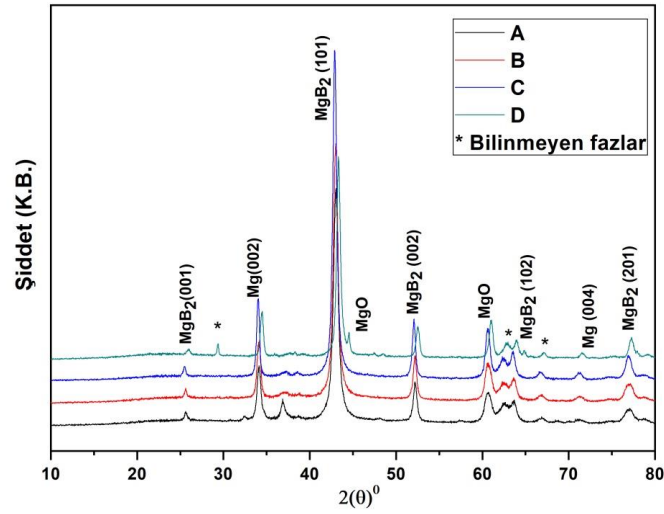
Karışım basamağının ardından elde edilen toplamda 10 g magnezyum ve karbon katkılanmış amorf nano bor tozlarından oluşan karışım 2,5 gramlar halinde tartılıp 4 farklı toz karışım elde edildi. Elde edilen tozlar, hidrolik presleme aleti ile 980 Mpa basınç altında sıkıştırılıp 10 dakika boyunca bu basınç altında sıkıştırılmış halde bekletildikten sonra 4 adet tablet haline dönüştürüldü. Preslenme basamağındaki temel amaç sıkıştırılma sayesinde tanecikleri birbirlerine daha yakın tutarak tanecikler arası bağlantının artmasını sağlamaktır.

Elde edilen tabletler herhangi bir süblimleşme ve kontaminasyona uğrama olasılığına karşı tantalum folyolara sarılarak argon gazı altında kapalı fırın ortamında dört farklı sıcaklıkta (700, 800, 900 ve 1000 °C) 1 saat boyunca ısıtılma tabii tutuldu. MgB₂ fazının tam oluşabilmesi için magnezyumun eriyik hale dönüşmesi gerektiğinden ve 700 °C’nin altındaki sıcaklıklarda yapı oluşu açısından olumsuzluk doğabileceğinden, aynı zamanda yüksek sıcaklıklarda MgB₂ fazının zarar görmemesi açısından deneysel süreçte bu dört sıcaklık değerleri kullanılarak numuneler elde edilmiştir. 700, 800, 900 ve 1000 °C’de sinterlenerek hazırlanan numuneler sırası ile A, B, C ve D olarak isimlendirildi. Bu isimler çalışma boyunca grafiklerde ve diğer tüm yorumlarda kullanıldı.

3. BULGULAR VE TARTIŞMA (RESULTS AND DISCUSION)

3.1. XRD Analizi Sonuçları (XRD Analysis Results)

Numuneler, Rigaku Mini Flex 2 marka cihaz ile CuK_α (λ=1,5418 Å) ışını kullanılarak dakikada 0,02 derecelik bir tarama hızı ile 10° ≤ 2θ ≤ 80° aralığında XRD analizine tabii tutuldu. Analiz sonucu elde edilen Şekil 2’de gösterilmektedir.



Şekil 2. Elde Edilen Numunelerinin XRD Grafiği

Yapılan XRD analizi sonucunda MgB_2 'ye ait (0 0 1), (1 0 1), (0 0 2), (1 0 2) ve (2 0 1) karakteristik düzlem pikleri tüm numunelerde görülmektedir. Şekil 1'de (1 0 1) düzlemine ait pik diğer düzlemlere ait piklere nazaran daha şiddetli olduğu görülmektedir. Bu durum MgB_2 'nin anizotropik özelliği göz önünde bulundurulduğunda; MgB_2 'ye ait kristalografik ve manyetik özellikleri gibi birtakım fiziksel özelliklerin incelenmesi halinde değerlendirilecek güçlü düzlem pikinin (1 0 1) karakteristik piki olarak incelenmesi gerektiği sonucunu doğurmuştur. Anizotropiğin doğurduğu bu sonuçtan ötürü çalışma boyunca yapılan hesaplamalarda (1 0 1) düzlem piki kullanılmıştır.

C numunesine ait piklerin şiddeti diğer numunelere ait piklere nazaran daha şiddetlidir. X-ışını kırınım desenlerinde pik şiddetlerinin artması kristalografik geçişin daha düzgün olduğuna yani kristalitenin daha iyi olduğuna işaret eder [15]. Aynı zamanda bu durum safsızlık atomlarının oranının düşük olduğu ve tanecikler arası bağın arttığına da işaret etmektedir. Dolayısı ile C numunesinin kristalitesi diğer numunelere kıyasla daha düzgün, MgB_2 yapısı oluşumu daha hızlı, safsızlık atomları oranı diğer numunelere nazaran daha az olduğu ve tanecikler arası bağın diğer numunelere kıyasla daha güçlü olduğu sonucuna varılmaktadır. Elde edilen numunelerin tanecik boyutu Denklem 1 ve örgü parametreleri Denklem 2 yardımı ile ICDD (65-3383) verileri kullanılarak gerekli hesaplamalar yapılarak bulunup Tablo 1 oluşturuldu.

Tablo 1. Elde Edilen Numunelerin Örgü Parametreleri ve Tanecik Boyutları

Numune	a=b (nm) ±0,0001	c (nm) ±0,0001	Tanecik Boyutu (nm)
A	0,2805	0,4208	13
B	0,2804	0,4206	14
C	0,2810	0,4216	16
D	0,2784	0,4176	17

Tablo 1'den anlaşıldığı gibi, sinterleme sıcaklığının artması yapı genişlemelerine bağlı olarak tanecik boyutunu arttırmıştır. Tablo 1 incelendiğinde tüm numunelerin örgü parametrelerinde ise A ve B numunelerinde dikkate değer bir değişim olmamakla birlikte C ve D numunelerinde belirgin bir değişim görülmektedir. Bu durum yapıya dâhil olan karbon atomlarının, magnezyum ile bor atomları arasına girmesi ile olmaktadır. Bu durumda magnezyum ve bor atomları arasındaki bağın bir miktar

strese maruz kaldığını dolayısı ile örgü parametrelerinde bozukluk ve kristal yapının zarar gördüğünü işaret etmektedir. Sıcaklık değişimi ile örgü parametreleri arasında orantılı bir artış ya da azalış ilişkisi kurulamamaktadır. Fakat sıcaklığa bağlı olarak tüm numunelerin örgü parametrelerinin birbirinden farklılığı göze çarpmaktadır. Bu durum her bir düzleme karşılık gelen piklerin açısal olarak bir miktar kayabileceğini düşündürmektedir. Öyle ki bu düşünceyi kanıtlar nitelikte, her bir numuneye ait düzlem piklerinin karşılık geldiği açı değerleri ile oluşturulan Tablo 2 incelendiğinde, örgü parametrelerindeki bozukluklara bağlı olarak düzlem piklerinde kayma net bir şekilde görülmektedir.

Tablo 2. Elde Edilen Numunelere ait h - k - l Düzlemleri ve Bunlara Karşılık Gelen 2θ Açıları

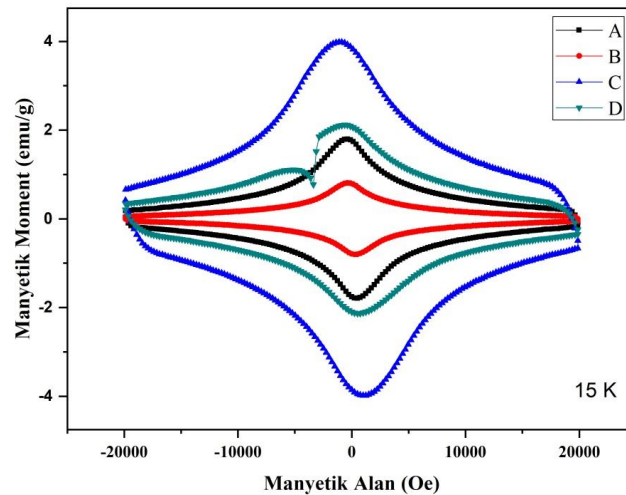
Numune (h k l)	A	B	C	D
(0 0 1)	25,70 (2 θ)	25,46 (2 θ)	25,45 (2 θ)	26,15 (2 θ)
(1 0 1)	42,97 (2 θ)	42,99 (2 θ)	42,88 (2 θ)	43,33 (2 θ)
(0 0 2)	52,29 (2 θ)	52,15 (2 θ)	52,02 (2 θ)	52,42 (2 θ)
(1 0 2)	63,80 (2 θ)	63,66 (2 θ)	63,40 (2 θ)	63,90 (2 θ)
(2 0 1)	77,06 (2 θ)	76,94 (2 θ)	76,94 (2 θ)	77,33 (2 θ)

Tablo 2’de gözlenen düzlem piklerine karşılık gelen açılardaki değişim, karbon ve bor atomlarının iyon yarıçaplarının farklı olmasından dolayı olmaktadır ki bu durum örgü parametresinin değişmesine de neden olmaktadır.

Şekil 2. incelendiğinde MgO ve Mg yapılarının da var olduğu görülmektedir. MgO’nun deneyin herhangi bir basamağında meydana gelen Mg yapılarının kontamine olması ile oluştuğu düşünülürken Mg yapılarının da reaksiyona dahil olmayan magnezyumların varlığının bir sonucu olduğu düşünülmektedir.

3.2. Manyetik Alana Karşı Manyetik Moment Tepkisinin Analiz Sonucu (Analysis Result of Magnetic Moment Response to Magnetic Field)

Elde edilen numuneler, Lakeshore VSM cihazı ile 15 K sıcaklıkta -20000 Oe ile 20000 Oe aralığında bir manyetik alan altında, manyetik alan değişimine karşı oluşan manyetik moment değişimi ölçümüne tabi tutuldu ve Şekil 3’de gösterilen Manyetik Alan-Manyetik Moment (M-H) grafiği elde edildi.



Şekil 3. Elde Edilen Numuneleri Manyetik Alan-Manyetik Moment Grafiği

Numunelere ait Manyetik Alan-Manyetik Moment eğrileri incelendiğinde tüm numunelerde diyamanyetik karaktere has bir histeristik görülmektedir. Bu durum süperiletken malzemelerin karakteristik manyetik özelliğinin grafiksel anlamda temsilidir. Şekil 3’de numunelere ait eğrilerin iç alan genişliklerinin birbirlerinden farklı olduğu görülmektedir. Bu durum sinterleme sıcaklığının MgB₂’nin manyetizasyon değeri üzerinde değiştirici bir unsur olduğunu göstermektedir.

D numunesinde eğride ani bir kırılma şeklinde görülen ve manyetik alan süpürme hızı, numune boyutu gibi bir dizi faktörlere bağlı olduğu düşünülen [16] manyetik kararsızlıkların sonucunda [17] akı zıplaması görülmektedir. Akı zıplamasının süperiletken sistemler için olumsuz etkiler meydana getirdiği bilinmektedir [18]. Bu durum, yapı içerisinde var olup süperiletken yapıya dahil olmayan safsızlık fazlarının etkili olduğunu ve bu yapıların perçinleme merkezi olarak görev yapmadığı [19] düşünülmektedir.

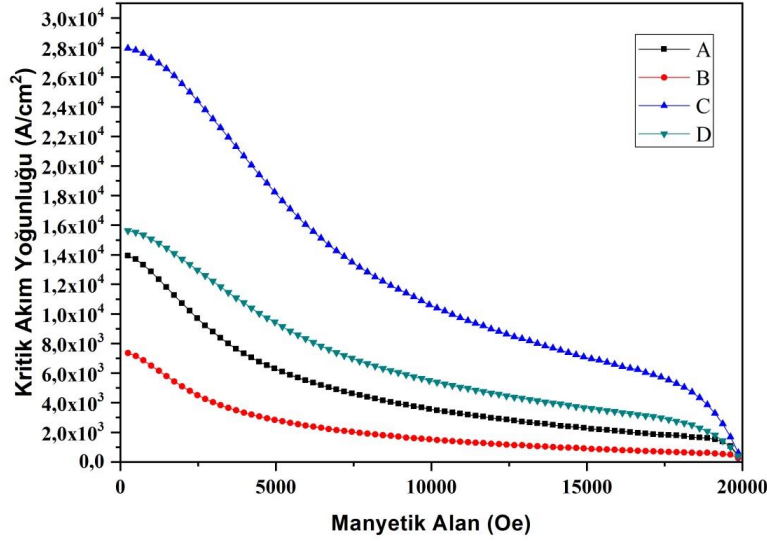
Diyamanyetik histeresiz eğrilerinin iç alan genişliklerinin azalması, yapı içerisindeki tanecikler arası bağlantının azalmasının bir sonucudur. Dolayısı ile 900 0C’de sinterlenerek elde edilen C numunesine ait eğrinin iç alan genişliğinin diğer numunelerin eğrilerinin iç alan genişliğinden fazla olması C numunesinin tanecikler arası bağlantısının diğer numunelerin tanecikler arası bağlantılarına kıyasla daha fazla olduğu sonucu çıkarılmaktadır. Bu sonuç XRD analizi sonucu ile de uyumludur. Öyle ki XRD analizinde C numunesine ait pikler diğer numunelere ait piklerden daha keskin olarak görüldü ve bu durum yapının daha hızlı ve daha düzgün oluştuğunun aynı zamanda da tanecikler arası bağlantının diğer numunelere kıyasla daha güçlü olduğunun çıkarımı yapıldı.

Manyetik Alan-Manyetik Moment eğrileri içerisinde kalan alanın artmasının akı çivileme merkezlerinin sayısının artmasına sebep olduğu dolayısı ile de bu durumun kritik akım yoğunluğunu da arttırdığı düşünülmektedir [20]. Bu bağlamda C numunesinin kritik akım yoğunluğu değeri diğer numunelerin kritik akım yoğunluğu değerinden daha fazla çıkması beklenmektedir.

3.3. Kritik Akım Yoğunluğu Analizi Sonucu (Critical Current Density Analysis Result)

Elde edilen Manyetik Alan-Manyetik Moment eğrisinin verilerinden yararlanılarak Denklem 3 ile her bir numunenin kritik akım yoğunluğu değeri hesaplanarak Şekil 4 elde edilmiştir. Süperiletken bir malzemenin teknolojik sahada etki alanını arttırmanın temel yolu, kritik akım yoğunluğu değerini arttırmaktan geçmektedir. Şekil 4 incelendiğinde, manyetik alanın artması ile birlikte tüm numunelerde kritik akım yoğunluğu değerinin azaldığı görülmektedir.

Manyetik alanın sıfıra yakın olduğu bir noktada 7.0×10^3 A/cm² akım yoğunluğuna sahip B numunesi en düşük kritik akım yoğunluğuna sahip olduğu görülmektedir. Kritik akım yoğunluğu değeri 2.8×10^4 A/cm² değeri ile en fazla C numunesine aittir. A ve D numuneleri ise sırası ile 1.4×10^4 A/cm² ve 1.6×10^4 A/cm² değerinde kritik akım yoğunluğu değerine sahiplerdir. Bu çalışmada tıpkı Manyetik Alan-Manyetik Moment sonucunda olduğu gibi kritik akım yoğunluğu ile MgB₂ oluşumu için belirlenen sinterleme sıcaklığı arasında doğru orantılı bir değişim ilişkisi gözlenmemektedir.



Şekil 4. Elde Edilen Numuneleri Manyetik Alan-Kritik Akım Yoğunluğu Grafiği

Elde edilen kritik akım yoğunluğu değerleri ile Şekil 3’de verilen Manyetik Alan-Manyetik Moment grafiğinin eğri iç alan büyüklükleri ve XRD analiz sonuçları ile oldukça uyumludur. Nitekim Bean yönteminde iç alan büyüklüğünün artışı ile kritik akım yoğunluklarında da artan sonuçlar vereceği Denklem 3’te açıkça görülmektedir. Ayrıca XRD analiz sonucunda görülen en keskin pikin C numunesine ait olduğunun tanecikler arası bağın güçlü olduğuna işaret ettiği düşünüldüğünde kritik akım yoğunluğu değerinin de C numunesinde en yüksek değerde olması, karbon yapılarının diğer numunelere kıyas ile taneciklerin arası bağın azalmasına C numunesinde daha az bir etki oluşturduğu düşünülmektedir.

4. SONUÇ (CONCLUSION)

Dört farklı sinterleme sıcaklığı ile elde edilen karbon katkılanmış MgB₂ süperiletkenin XRD analizinde MgB₂’ye ait tüm karakteristik düzlem pikleri görülmüştür. C numunesinin pik şiddeti diğer numunelerin pik şiddetlerine nazaran daha keskin, daha şiddetli olduğu yani C numunesinin diğer numunelere kıyasla MgB₂ fazına daha hızlı geçtiği, tanecikler arası bağların diğer numunelerden daha güçlü olduğu ve diğer numunelere göre daha az safsızlık atomları içerdiği saptanmıştır. Sinterleme sıcaklığının artışına bağlı olarak numunelerde tanecik boyutunda artış görülmüştür. Tüm numunelerde magnezyum ve bor atomları arasında dâhil olan karbon atomları örgüde bir stres oluşturarak örgü bozukluklarına yol açtığı görülmüştür. Numunelerin tamamının diyamanyetik karakterde olduğu saptanmıştır. D numunesinin Manyetik Alan-Manyetik Moment eğrisinde akı zıplamasına karşılık gelen bir kırılma şekli tespit edilmiştir. Bu durum bir faz geçişini göstermektedir ve akı süpürme hızına bağlı olarak oluştuğu düşünülmüştür. C numunesine ait Manyetik Alan-Manyetik Moment eğrisinin iç alanı diğer numunelerden daha fazla çıkmıştır. Bu durum C numunesinde kritik akım yoğunluğunun da en yüksek değere sahip olmasını sağlamıştır.

Yapılan tüm analizlerde C numunesine ait sonuçlar diğer numunelerin sonuçlarından daha olumlu çıkmış olup tüm sonuçlar birbirini destekler durumdadır. Bu çalışma için sıcaklığın artışı ya da azalışına bağlı olarak kritik akım yoğunluğu değerinde ve manyetizasyon değerinde doğrudan bir ritmik artış ya da azalış görülmemektedir. Bu çalışma için belirlenen sinterleme sıcaklıkları arasından en ideal sinterleme sıcaklığının 900 °C olduğu bulunmuştur.

TEŞEKKÜR (ACKNOWLEDGMENTS)

Bu çalışma, Türkiye Bilimsel ve Teknolojik Araştırma Kurumu (TÜBİTAK) 115F237 numaralı proje tarafından desteklenmiştir.

KAYNAKLAR (REFERENCES)

- [1] Nagamatsu, J., Nakagawa, N., Muranaka, T., Zenitani, Y., Akimitsu, J. (2001). *Nature*, 410, 63–64.
- [2] Wilke, R. H. T., Bud'ko, S. L., Canfield, P. C., Kramer, M. J., Wu, Y. Q., Finnemore, D. K., Suplinskas, R. J., Marzik, J. V., Hannahs, S. T. (2005). Superconductivity in MgB₂ doped with Ti and C. *Physica C: Superconductivity*, Volume 418, Issues 3–4, (160-167). <https://doi.org/10.1016/j.physc.2004.11.022>.
- [3] Aksan, M. A., Yakıncı, M. E., Güldeste, A. (2006). Co-addition into MgB₂: The structural and electronic properties of (MgB₂)_{2-x}Co_x. *Journal of Alloys and Compounds*. Volume 424, Issues 1–2, 9 November, Pages 33-40, <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2005.12.066>.
- [4] Qu, B., Sun, X. D., Li, J-G., Xiu, Z. M., Liu, S. H., Xue, C. P. (2008). Significant improvement of critical current density in MgB₂ doped with ferromagnetic Fe₃O₄ nanoparticles. *Superconductor Science and Technology*, Volume 22, Number 1, DOI: 10.1088/0953-2048/22/1/015027.
- [5] Berenov, A., Serquis, A., Liao, X. Z., Zhu, Y. T., Peterson, D. E., Bugoslavsky, Y., Yates, K. A., Blamire, M. G., Cohen, L. F., MacManus-Driscoll J. L. (2004). Enhancement of critical current density in low level Al-doped MgB₂. *Superconductor Science and Technology*, Volume 17, Number 10, DOI: 10.1088/0953-2048/17/10/001.
- [6] Ueda, S., Yamamoto, A., Shimoyama, J., Horii, S. (2004). Enhanced critical current properties observed in Na₂CO₃-doped MgB₂. *Superconductor Science and Technology*, 17(7):926, DOI: 10.1088/0953-2048/17/7/017.
- [7] Kim, J. H., Choi, S. (2015). Carbon doping induced imperfections on MgB₂ superconducting wire. *Journal of Analytical Science and Technology*, 6(11), DOI: 10.1186/s40543-015-0048-3.
- [8] Yeoh, W. K., Horvat, J., Dou, S. X., Munroe P. (2005). Effect of carbon nanotube size on superconductivity properties of MgB₂. *Ieee Transactions on Applied Superconductivity*, Volume 15, Number 2, DOI: 10.1109/TASC.2005.848853.
- [9] Cheng, H., Zhang, H., Zhao, Y., Feng, Y., Rui, X. F., Munroe, P., Zeng, H. M., Koshizuka, N., Murakami, M. (2003). Doping effect of nano-diamond on superconductivity and flux pinning in MgB₂. *Superconductor Science and Technology*, Volume 16, Number 10, <https://doi.org/10.1088/0953-2048/16/10/310>.
- [10] Soltanian, S., Horvat, J., Wang, X. L., Munroe, P., Dou, S. X. (2003). Effect of nano-carbon particle doping on the flux pinning properties of MgB₂ superconductor. *Physica C: Superconductivity*, Volume 390, Issue 3, Pages 185-190, DOI: 10.1016/S0921-4534(03)00960-2.
- [11] Ye, S. J., Matsumoto, A., Zhang, Y. C., Kumakura, H. (2014). Strong enhancement of high-field critical current properties and irreversibility field of MgB₂ superconducting wires by coronene active carbon source addition via the new B powder carbon-coating method. *Superconductor Science and Technology*, 27. 085012 (10pp), <https://doi.org/10.1088/0953-2048/27/8/085012>.
- [12] Bean, C. P. (1962) *Physical Review Letters*, 8, 250.
- [13] Suryanarayana, C., Norton, M. G. (1998). *X-Ray diffraction a practical approach*. (1. Press). New York: Plenum Publishing Corporation, 212.

- [14] Basurto, R-H., Lorente, A-I-L, Valcárcel, M. (2015). Scanning electron microscopy of carbon nanotubes dispersed in ionic liquid: Solvent influence study. *Microchemical Journal*, (122), 137-143, <https://doi.org/10.1016/j.microc.2015.04.012>.
- [15] Shafi, P. M., Bose, A. C. (2015). Impact of crystalline defects and size on X-ray line broadening: A phenomenological approach for tetragonal SnO₂ nanocrystals. *AIP Advances* 5, 057137, <https://doi.org/10.1063/1.4921452>.
- [16] Yanmaz E, Savaşkan B, Başoğlu M, Taylan Koparan E, Dilley N R, Grovenor C R M, (2009). Complete flux jumping in nano-structured MgB₂ superconductors prepared by mechanical alloying, *Journal of Alloys and Compounds*, 480(2):203-207, DOI: 10.1016/j.jallcom.2009.02.031.
- [17] Gencer, A. (2012). Çok damarlı MgB₂ süperiletken üretimi, nano-boyutta katkılama yöntemi ile özelliklerinin iyileştirilmesi ve fiziksel karakterizasyonu, Ankara Üniversitesi Bilimsel Araştırma Projeleri Kesin Raporu. Syf:55.
- [18] Y. Kimishima, S. Takami, T. Okuda, M. Uehara, T. Kuramoto, Y. Sugiyama (2007). Complete flux jump in bulk MgB₂ sintered under high pressure, *Physica C: Superconductivity and its Applications* 463–465 (2007) 281–285.
- [19] Gencer, A. (2012). Çok damarlı MgB₂ süperiletken üretimi, nano-boyutta katkılama yöntemi ile özelliklerinin iyileştirilmesi ve fiziksel karakterizasyonu, Ankara Üniversitesi Bilimsel Araştırma Projeleri Kesin Raporu. Syf:53.
- [20] Durán, A., Verdin, E., Galván, D., H., Romero-Salazar, C., Morales, F., Adem, E., Rickards, J., Maple, M., B., Escudero, R., (2008). Magnetic instability in irradiated MgB₂ dense samples. *Journal of Applied Physics*, 104: 093917(6).