

**T.C.
İNÖNÜ ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

**ULTRASONİK SPREY PİROLİZ (USP) YÖNTEMİ İLE
 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+\gamma}$ SÜPERİLETKEN FİLMLERİN HAZIRLANMASI VE
KARAKTERİZASYONU**

Sinem TÜRKOĞLU

**YÜKSEK LİSANS TEZİ
FİZİK ANABİLİM DALI**

MALATYA

2011

Tezin Başlığı : Ultrasonik Sprey Piroliz (USP) Yöntemi ile
 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+\gamma}$ Süperiletken Filmlerin Hazırlanması ve Karakterizasyonu

Tezi Hazırlayan : Sinem TÜRKOĞLU

Sınav Tarihi : 03/01/2012

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

Sınav Jürisi Üyeleri

Prof. Dr. M. Eyyuphan YAKINCI

İnönü Üniversitesi

.....

Doç. Dr. M. Ali AKSAN

İnönü Üniversitesi

.....

Doç. Dr. Yakup BALCI

İnönü Üniversitesi

.....

İnönü Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Onayı:

.....

Prof. Dr. Asım KÜNKÜL

Enstitü Müdürü

ONUR SÖZÜ

Yüksek Lisans Tezi olarak sunduğum “Ultrasonik Sprey Piroлиз (USP) Yöntemi ile $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+\gamma}$ Süperiletken Filmlerin Hazırlanması ve Karakterizasyonu” başlıklı bu çalışmanın bilimsel ahlak ve geleneklere aykırı düşecek bir yardıma başvurmaksızın tarafımdan yazıldığını ve yararlandığım bütün kaynakların, hem metin içinde hem de kaynakçada yöntemine uygun biçimde gösterilenlerden oluştuğunu belirtir, bunu onurumla doğrularım.

Sinem TÜRKOĞLU

ÖZET

Yüksek Lisans Tezi

ULTRASONİK SPREY PİROLİZ (USP) YÖNTEMİ İLE $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+\gamma}$ SÜPERİLETKEN FİMLERİN HAZIRLANMASI VE KARAKTERİZASYONU

Sinem TÜRKOĞLU

İnönü Üniversitesi
Fen Bilimleri Enstitüsü
Fizik Ana Bilim Dalı

89+ ix sayfa

2011

Danışman: Doç. Dr. M. Ali AKSAN

Bu tezde Ultrasonik Sprey Piroiliz (USP) yöntemi kullanılarak MgO (100) ve SrTiO_3 altlıklar üzerine BiSrCaCuO (BSCCO) filmler hazırlanmıştır. Elde edilen filmlerin yapısal/ mikroyapısal, elektriksel ve manyetik özellikleri araştırılmıştır.

Üretilen filmlerin XRD ve SEM-EDX analizleri, filmlerde Bi-2212 fazının oluştuğunu ortaya koymuştur. Isıl işlem süresinin arttırılmasıyla büyük kesit alanına sahip tabaka şeklinde kristaller elde edilmiştir. R-T ve M-T sonuçları filmlerin T_c değerlerinin ısı işlem süresine bağlı olarak 75-80 K arasında olduğunu ortaya koymuştur. Kritik akım yoğunluğu, J_c , Bean denklemi kullanılarak hesaplanmış ve filmlerin en büyük J_c değerleri 5K sıcaklığında ve 0T manyetik alanda $\sim 10^5 \text{ Acm}^{-2}$ olarak elde edilmiştir. Bu sonuçlar, USP yönteminin süperiletken film hazırlamada oldukça güzel bir yöntem olduğunu göstermektedir.

Anahtar Kelimeler: Süperiletkenlik, BSCCO sistemi, Süperiletken film, Ultrasonik Sprey Piroiliz (USP) yöntemi, Kritik akım yoğunluğu.

ABSTRACT

M. Sc. Thesis

PREPARATION AND CHARACTERIZATION OF $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+\delta}$ SUPERCONDUCTOR FILMS BY ULTRASONIC SPRAY PYROLYSIS (USP)

Sinem TÜRKOĞLU

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

89+ix pages

2011

Supervisor: Assoc. Prof. Dr. M. Ali AKSAN

In this thesis, BiSrCaCuO (BSCCO) films were prepared on MgO (100) and SrTiO_3 substrates using ultrasonic spray pyrolysis (USP) method. Structural/microstructural, electrical and magnetic properties of the films obtained were investigated.

XRD and SEM-EDX analysis showed that the Bi-2212 phase was formed in the films fabricated. Plate-like crystals with large cross-section and extended heat treatment duration were obtained. From R-T and M-T results, it was found that the films exhibited T_c values between 75 K and 80 K, depending on the heat treatment duration. Critical current density, J_c , was calculated by using Bean's equation and the highest J_c value was obtained to be $\sim 10^5 \text{ Acm}^{-2}$ at 5K and 0T. The results obviously indicated that the USP method is a suitable method for fabrication of the superconducting films.

Keywords: Superconductivity, BSCCO system, Superconducting film, Ultrasonic Spray Pyrolysis (USP), Critical current density.

TEŞEKKÜRLER

Bu Tez çalışması İnönü Üniversitesi Rektörlüğü Bilimsel Araştırma Projeleri Yönetimi Birimi 2010/100 nolu proje kapsamında gerçekleştirilmiş olup bu projenin maddi olanakları kullanılmıştır.

Yüksek Lisans ders aşamasından başlayarak tez çalışmasının bitimine kadar her aşamada bana rehberlik, yardım ve desteğini esirgemeyen danışmanım Sayın Doç. Dr. M. Ali AKSAN' a,

Bu noktaya ulaşmamda unutulmaz katkısı olan Sayın Prof. Dr. M. Eyyuphan YAKINCI' ya,

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

Numunelerimin XRD ölçümleri gerçekleştiren ve manevi desteğini esirgemeyen Sayın Emine ALTIN' a,

Deneysel aletlerin kullanımında, numunelerimin manyetizasyon ölçümlerinde ve manevi desteğini esirgemeyen Sayın Yrd. Doç. Dr. Serdar ALTIN' a,

Numunelerimin SEM-EDX ölçümlerini gerçekleştiren ve tecrübelerinden yararlandığım Sayın Murat ÖZABACI' ya,

Numunelerimin M-H ve M-T ölçümlerini gerçekleştiren ve her soruma bıkmadan cevap veren Sayın Olcay KIZILASLAN' a

Yüksek Lisans boyunca her zaman yanımda olan ve beni destekleyen İnönü Üniversitesi Bilimsel ve Teknolojik Araştırma Merkezi (İBTAM) Fizik Bölümü Süperiletkenlik Grubundaki arkadaşlarıma,

Tezim süresince bana maddi-manevi olarak destek olan ve her zaman moral kaynağı olan Sevgili annem Ayşe TÜRKOĞLU ve babam Sayın Mehmet TÜRKOĞLU ve kardeşlerime sonsuz

TEŞEKKÜR EDERİM

İÇİNDEKİLER

ÖZET.....	i
ABSTRACT.....	ii
TEŞEKKÜR.....	iii
İÇİNDEKİLER.....	iv
ŞEKİLLER DİZİNİ.....	vi
TABLolar DİZİNİ.....	viii
SEMBOLLER.....	ix
1. GİRİŞ.....	1
2. SÜPERİLETKENLİK İLE İLGİLİ KURAMSAL	
TEMELLER.....	3
2.1. Süperiletkenliğin Temel Parametreleri.....	3
2.1.1. Kritik Sıcaklık (T_c).....	3
2.1.2. Kritik Manyetik Alan (H_c).....	5
2.1.3. Kritik Akım Yoğunluğu (J_c).....	6
2.2. Süperiletkenlik İle İlgili Teoriler.....	7
2.2.1. BCS Teorisi.....	7
2.2.2. Ginzburg-Landau Teorisi.....	8
2.2.3. Rezonans Valance Band (RVB) Teorisi.....	11
2.3. Yüksek Sıcaklık Süperiletken Sistemler.....	11
2.3.1. LaSrCuO Süperiletken Sistemi.....	11
2.3.2. YBaCuO Süperiletken Sistemi	12
2.3.3. TlBaCaCuO Süperiletken Sistemi	13
2.3.4. HgBaCaCuO Süperiletken Sistemi	15
2.3.5. BiSrCaCuO Süperiletken Sistemi	16
2.4. İnce Film Kaplama Tekniğı.....	19
2.5. Ultrasonik Sprey Piroliz (USP) Yöntemi.....	22
2.5.1. Ultrasonik Sprey Piroliz (USP) Yönteminin Çalışma Prensibi.....	23
2.5.2. Ultrasonik Sprey Piroliz (USP) İle Sprey Piroliz (SP) Yönteminin Karşılaştırılması.....	24
2.5.3. Ultrasonik Sprey Piroliz (USP) İle Elde Edilen Damlacık Oluşum Mekanizması.....	27
2.5.4. Oluşan Damlacıkların Özelliklerini Etkileyen Faktörler.....	28
2.6. İnce Filmler İçin Uygun Altlık Seçimi.....	28

2.7.	Ultrasonik Sprey Piroliz (USP) Yöntemi İle Yapılan Çalışmalar.....	30
3.	MATERYAL ve YÖNTEM.....	37
3.1.	Yüksek Sıcaklık (HT _c) Süperiletkenlerin Hazırlama Yöntemleri.....	37
3.1.1	Katıhal Reaksiyon Yöntemi.....	37
3.1.2	Sol-Jel Yöntemi.....	38
3.1.3	Cam-Seramik Yöntemi.....	39
3.2.	Tez Kapsamındaki Numunelerin Hazırlanması.....	40
3.3.	X- Işını Kırınımı (XRD).....	42
3.4.	Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM) Enerji Dağılımlı X-Işını (EDX) Analizi.....	43
3.5.	Elektriksel Direnç Ölçümleri (R-T).....	43
3.6.	Manyetik Ölçümler (M-H, M-T).....	44
4.	TARTIŞMA VE BULGULAR.....	45
4.1.	MgO ve SrTiO ₃ Altlık İle Kaplanan Filmlerin XRD Sonuçları.....	45
4.2.	MgO ve SrTiO ₃ Altlıklı Filmlerin SEM Sonuçları.....	47
4.3.	MgO ve SrTiO ₃ Altlıklı Filmlerin Elektriksel Direnç (R-T) Sonuçları.....	59
4.4.	MgO ve SrTiO ₃ Altlıklı Filmlerin M-T Ölçüm Sonuçları.....	61
4.5.	MgO ve SrTiO ₃ Altlıklı Filmlerin M-H Sonuçları.....	63
4.6.	Kritik Akım Yoğunluğu Hesaplamaları.....	68
5.	SONUÇ VE YORUM.....	81
6.	REFERANSLAR.....	83
	ÖZGEÇMİŞ.....	89

ŞEKİLLER DİZİNİ

Şekil 2.1.	T_c , H_c ve J_c ile çevrelenen yüzey faz diagramı. Materyal, faz diagramının altında süperiletken ve üstünde normal durumda bulunmaktadır.....	3
Şekil 2.2.	Süperiletken ve metal malzemeler için özdirencin sıcaklıkla değişimi.....	4
Şekil 2.3.	Süperiletken bir malzemede ΔT , T_c , $T_c(0)$ niceliklerinin gösterimi.....	5
Şekil 2.4.	Kritik manyetik alanın sıcaklıkla değişimi.....	6
Şekil 2.5.	J_c ve sıcaklığın bir fonksiyonu olarak süperiletken ve normal durumun bölgeleri.....	6
Şekil 2.6.	a) İki elektronun çekici etkileşmesinden dolayı örgünün bozulması b) Karşılıklı fonon değişiminden kaynaklanan elektron-elektron etkileşmesi.....	8
Şekil 2.7.	a) LSCO bileşiğinin kristal yapısı b) CuO_6 oktahedran yapısı.....	12
Şekil 2.8.	Ortorombik simetrideki $YBa_2Cu_3O_{6.5}$ sisteminin kristal yapısı.....	13
Şekil 2.9.	a) $TlBa_2Ca_{n-1}Cu_nO_{2n+3}$ ($n=1-3$) sisteminin kristal yapıları b) $Tl_2Ba_2Ca_{n-1}Cu_nO_{2n+4}$ ($n=1-3$) sisteminin kristal yapısı.....	14
Şekil 2.10.	a) Hg-1212 b) Hg-1223 sisteminin kristal yapısı.....	15
Şekil 2.11.	a) Bi-2201 b) Bi-2212 c) Bi-2223 fazlarının kristal yapısı.....	16
Şekil 2.12.	a) Genel bir Ultrasonik Sprey Piroliz (USP) donanımı (b) ultrasonik atomizer başlığının şematik diyagramı.....	23
Şekil 2.13.	Ultrasonik Sprey Piroliz (USP) yönteminde aerosol-parçacık (partikül) dönüşüm mekanizmasının şematik gösterimi.....	24
Şekil 2.14.	Ultrasonik Sprey Piroliz (USP) yönteminin şematik gösterimi.....	25
Şekil 2.15.	Sprey Piroliz sisteminin şematik diyagramı.....	26
Şekil 2.16.	Sprey Piroliz (SP) yönteminin kaplama mekanizması.....	26
Şekil 2.17.	Film ile altlık arasındaki etkileşimin şematik gösterimi.....	29
Şekil 3.1.	BSCCO malzemesini üretmek için uygulanan katıhal reaksiyon yöntemi basamakları.....	38
Şekil 3.2.	BSCCO malzemesini üretmek için uygulanan cam-seramik yöntemi basamakları	39
Şekil 3.3.	870 °C' de 120 dk ısıtma işlemi görmüş MgO altlık üzerinde kesit görüntüsü.....	41
Şekil 3.4.	870 °C' de 120 dk ısıtma işlemi görmüş $SrTiO_3$ altlık üzerinde görüntüsü.....	42
Şekil 3.5.	Dört nokta kontak ölçüm tekniği.....	43
Şekil 4.1.	MgO altlık üzerine üretilen filmlerin XRD kırınım deseni.....	45
Şekil 4.2.	$SrTiO_3$ altlık üzerine üretilen filmlerin XRD kırınım deseni.....	46
Şekil 4.3.	MgO (100) altlık üzerine kaplanmış BSCCO filmlere ait SEM sonuçları. 870 °C' de 30 dk ısıtma işlemi görmüş (BiMg-1) a) 1000 ve b) 5000 büyütme, 870 °C' de 30 dk+870 °C' de 30 dk ısıtma işlemi görmüş (BiMg-2) c) 1000 ve d) 5000 büyütme, 870 °C' de 75 dk ısıtma işlemi görmüş (BiMg-3) e) 1000 ve f) 5000 büyütme ve 870 °C' de 120 dk ısıtma işlemi görmüş (BiMg-4) g) 1000 ve h) 5000 büyütme.....	49
Şekil 4.4.	BiMg-1 filmine ait EDX spektrumu ve EDX verileri.....	50
Şekil 4.5.	BiMg-2 filmine ait EDX spektrumu ve EDX verileri.....	51
Şekil 4.6.	BiMg-3 filmine ait EDX spektrumu ve EDX verileri.....	52

Şekil 4.7.	BiMg-4 filmine ait EDX spektrumu ve EDX dataları.....	53
Şekil 4.8.	SrTiO ₃ altlık üzerine kaplanmış BSCCO filmlere ait SEM sonuçları. 870 °C' de 30 dk ısıt işlem görmüş (BiSr-1) a) 1000 ve b) 5000 büyütme, 870 °C' de 30 dk+870 °C' de 30 dk ısıt işlem görmüş (BiSr-2) c) 1000 ve d) 5000 büyütme, 870 °C' de 75 dk ısıt işlem görmüş (BiSr-3) e) 1000 ve f) 5000 büyütme ve 870 °C' de 120 dk ısıt işlem görmüş (BiSr-4) g) 1000 ve h) 5000 büyütme.....	54
Şekil 4.9.	BiSr-1 filmine ait EDX spektrumu ve EDX verileri.....	56
Şekil 4.10.	BiSr-2 filmine ait EDX spektrumu ve EDX verileri.....	57
Şekil 4.11.	BiSr-3 filmine ait EDX spektrumu ve EDX verileri.....	58
Şekil 4.12.	BiSr-4 filmine ait EDX spektrumu ve EDX verileri.....	59
Şekil 4.13.	MgO (001) altlıklar üzerine üretilen filmlere ait R-T eğrileri.....	60
Şekil 4.14.	SrTiO ₃ altlıklar üzerine üretilen filmlere ait R-T eğrisi.....	61
Şekil 4.15.	a) MgO (100) ve b) SrTiO ₃ altlıklar üzerine kaplanan filmlere ait M-T grafikleri (H ⊥ Film yüzeyi).....	62
Şekil 4.16.	a) MgO (100) ve b) SrTiO ₃ altlıklar üzerine kaplanan filmlere ait M-T grafikleri (H // Film yüzeyi).....	63
Şekil 4.17.	MgO altlıklar üzerine üretilen 870 °C' de a) 30 dk b) 30 dk+30 dk c) 75 dk d) 120 dk ısıt işlem görmüş filmlere ait M-H grafikleri (H ⊥ Film yüzeyi).....	64
Şekil 4.18.	SrTiO ₃ altlıklar üzerine üretilen 870 °C' de a) 30 dk b) 30 dk+30 dk c) 75 dk d) 120 dk ısıt işlem görmüş filmlere ait M-H grafikleri (H ⊥ Film yüzeyi).....	65
Şekil 4.19.	MgO altlıklar üzerine üretilen 870 °C' de a) 30 dk b) 30 dk+30 dk c) 75 dk d) 120 dk ısıt işlem görmüş filmlere ait M-H grafikleri (H // Film yüzeyi).....	66
Şekil 4.20.	SrTiO ₃ altlıklar üzerine üretilen 870 °C' de a) 30 dk b) 30 dk+30 dk c) 75 dk d) 120 dk ısıt işlem görmüş filmlere ait M-H grafikleri (H // Film yüzeyi).....	67
Şekil 4.21.	H ⊥ Film yüzeyi için MgO (100) altlık üzerinde a) 870 °C' de 30 dk b) 870 °C' de 30 dk+870 °C' de 30 dk c) 870 °C' de 75 dk d) 870 °C' de 120 dk ısıt işlem görmüş filmlere ait J _c -H eğrileri.....	68
Şekil 4.22.	H ⊥ Film yüzeyi için SrTiO ₃ altlık üzerinde a) 870 °C' de 30 dk b) 870 °C' de 30 dk+870 °C' de 30 dk c) 870 °C' de 75 dk d) 870 °C' de 120 dk ısıt işlem görmüş filmlere ait J _c -H eğrileri.....	71
Şekil 4.23.	H // Film yüzeyi için MgO (100) altlık üzerinde a) 870 °C' de 30 dk b) 870 °C' de 30 dk+870 °C' de 30 dk c) 870 °C' de 75 dk d) 870 °C' de 120 dk ısıt işlem görmüş filmlere ait J _c -H eğrileri.....	74
Şekil 4.24.	H // Film yüzeyi için SrTiO ₃ altlık üzerinde a) 870 °C' de 30 dk b) 870 °C' de 30 dk+870 °C' de 30 dk c) 870 °C' de 75 dk d) 870 °C' de 120 dk ısıt işlem görmüş filmlere ait J _c -H eğrileri.....	77

TABLÖLAR DİZİNİ

Tablo 2.1.	Bazı metal ve alaşımlar için süperiletken geçiş sıcaklığı	4
Tablo 2.2.	Bazı HT _c süperiletken sistemler için T _c ve H _c değerleri	4
Tablo 2.3.	Bazı elementler için H _c değerleri.....	5
Tablo 2.4.	Bi-2201 fazına ait bağ uzunlukları ve her bir düzlemde bulunan en yakın oksijen atomlarının sayısı	17
Tablo 2.5.	Bi-2212 fazına ait bağ uzunlukları ve her bir düzlemde bulunan en yakın oksijen atomlarının sayısı.....	18
Tablo 2.6.	Bi-2223 fazına ait bağ uzunlukları ve her bir düzlemde bulunan en yakın oksijen atomlarının sayısı	18
Tablo 2.7.	Yaygın olarak kullanılan altlıkların kristal yapıları, ısı genleşme katsayıları ve dielektrik sabitleri.....	30
Tablo 3.1.	Deney sırasında kullanılan ısı işlem şartları	41
Tablo 4.1.	MgO ve SrTiO ₃ altlıklar üzerine kaplanmış filmlerin kristal büyüklük değerleri.....	47
Tablo 4.2.	MgO (100) altlıklar üzerine kaplanan filmlerin kritik geçiş sıcaklık değerleri.....	60
Tablo 4.3.	SrTiO ₃ altlıklar üzerine kaplanan filmlerin kritik geçiş sıcaklık değerleri.....	61
Tablo 4.4.	MgO (100) altlık üzerinde üretilen filmlerin sıcaklık ve manyetik alana bağlı J _c değerleri (H⊥ Film yüzeyi).....	69
Tablo 4.5.	SrTiO ₃ altlık üzerinde üretilen filmlerin sıcaklık ve manyetik alana bağlı J _c değerleri (H ⊥ Film yüzeyi).....	72
Tablo 4.6.	MgO (100) altlık üzerinde üretilen filmlerin sıcaklık ve manyetik alana bağlı J _c değerleri (H // Film yüzeyi).....	75
Tablo 4.7.	SrTiO ₃ altlık üzerinde üretilen filmlerin sıcaklık ve manyetik alana bağlı J _c değerleri (H // Film yüzeyi).....	78

SEMBOLLER

$H_c(0)$	Mutlak sıfırda kritik manyetik alan
H_c	Kritik manyetik alan
J	Akım yoğunluğu
J_c	Kritik Akım Yoğunluğu
T_c	Kritik sıcaklık
T_0	Sıfır direncin ortaya çıktığı sıcaklık
ΔT_c	Faz geçişinin gerçekleştiği sıcaklık aralığı
D_d	Damlacık çapı
L	Kristal büyüklüğü
M	İzotop kütlesi
$\psi(\mathbf{r})$	Dalga fonksiyonu
k_B	Boltzmann sabiti
λ_L	London sızma derinliği
κ	Ginzburg-Landau Parametresi
γ	Çözeltinin yüzey gerilimi
ρ	Çözeltinin yoğunluğu
f	Ultrasonik frekans
Δ	Enerji aralığı
ξ	Uyum (koherens) Uzunluğu

1. GİRİŞ

Süperiletkenlik üzerine yapılan ilk çalışmalar 1908’ de Hollanda’nın Lieden Üniversitesinde Kamerling Onnes’ in Helyumu sıvılaştırması ile başlamıştır [1]. 1911’ de Onnes mutlak sıfır civarında metallerin elektriksel dirençlerini araştırmaya başlamıştır. Oda sıcaklığının altına soğutuldukça metallerin dirençlerinin düştüğü bilinmekle birlikte mutlak sıfıra yaklaştıkça direncin hangi limit değere ulaştığı bilinmiyordu. Ancak, çok düşük sıcaklıkta akımın hemen hemen hiç dirençle karşılaşmadan akacağı tahmin edilmekteydi. Onnes saf olarak bulunması kolay olduğu için bir civa telini soğutarak direncini ölçmeye başlamış ve sıcaklık 4.2 K’ e ulaştığında elektriksel direncin aniden kaybolduğunu görmüştür [2]. Civanın süperiletken hale geldiğinin keşfedilmesinden sonra 1913’ de kurşunun 7.2 K’ de [3] ve 1930’ da Niyobyum’ un 9.2 K’ de [4] süperiletkenlik gösterdikleri bulunmuştur.

1933’ de Meissener ve Ochsenfeld kritik sıcaklığın altındaki bir süperiletken malzemeye dışardan manyetik alan uygulandığında malzemenin bu manyetik alanı dışarladığını gözlediler [5]. Bu olay ”Meissener etkisi” olarak adlandırılmıştır. 1935’ de Heintz ve Fritz London kardeşler manyetik akının süperiletken malzemeye sızabileceğini açıkladılar ve “sızma derinliği” kavramını ortaya koydular [6].

1950 yılında izotop etkisi bulundu. Elementlerin izotoplarının kütleleri ile T_c arasında “ $T_c \cdot M^{1/2} = \text{sabit}$ ” olacak şekilde bir ilişki olduğu tespit edildi [7, 8]. İzotop etkisinin keşfi süperiletkenlikte elektron-fonon etkileşme mekanizması için kanıt olmuştur. 1950’ de V. Ginzburg ve L. Landau, süperiletkenliğin fenomenolojik teorisini ortaya koydular [9]. Landau tarafından geliştirilen teori, ikinci dereceden faz geçişlerinin mekanizmasına dayanmaktadır. Ginzburg-Landau teorisi, süperiletken durumun fiziğini anlamada önemli bir rol oynamıştır.

1957’ de J. Bardeen, L. Cooper ve R. Schrieffer kuantum mekaniğini kullanarak süperiletken maddede akımın nasıl dirençsiz taşındığını ve süperiletkenlik durumunun nasıl ortaya çıktığını açıklayan günümüzde de saf metal ve metal alaşımlar için geçerliliğini koruyan, “BCS” teorisi olarak bilinen teoriyi ortaya koydular [10].

İki süperiletken arasındaki ince bir yalıtkan engel vasıtasıyla Cooper çiftlerinin kuantum mekaniksel olarak tünellemesi 1962’ de B.D. Josephson tarafından teorik olarak gösterildi. Josephson’ ın önerisi bir yıl sonra deneysel olarak doğrulandı ve günümüzde bu olay Josephson etkisi olarak bilinmektedir [11].

1970 ve 1980 yılları arasında birçok metal-alaşım süperiletken malzemesi keşfedilmiştir. 1971 yılında Nb_3Ga ' un 21 K' de ve 1973 yılında Nb_3Ge ' un 23 K' de süperiletken özellik gösterdiği bulunmuştur [12].

1986 yılı süperiletkenlik için yeni bir milat olmuştur. 1986' da J.G. Bednorz ve K.A. Müller 35 K' lık geçiş sıcaklığına sahip ve CuO tabakalarından oluşan oksit bazlı La-Ba-Cu-O süperiletken sistemini keşfettiler. Bu sıcaklık oksitli bileşiklerde elde edilen en yüksek geçiş sıcaklığı olmuştur [13]. Bu sistemlere yüksek sıcaklık (HT_c) süperiletken sistemler adı verilmiştir. 1987'de C.W. Mitchell vd. yaklaşık 20 K geçiş sıcaklığına sahip Bi-Sr-Cu-O süperiletken sistemini keşfettiler [14]. Yine aynı yıl içinde M.K. Wu vd. LaBaCuO sisteminde Lantanyum yerine Yitriyum koyarak Y-Ba-Cu-O süperiletken sisteminin geçiş sıcaklığını yaklaşık 92 K olarak bulmuşlardır [14].

1988' de Bi-Sr-Ca-Cu-O sistemine CuO_2 düzlemi eklendiğinde T_c sıcaklığının arttığı görülmüştür. Sistem CuO_2 düzlem sayısına bağlı olarak Bi-2201 ($T_c=20$ K), Bi-2212 ($T_c=85$ K) ve Bi-2223 ($T_c=110$ K) olmak üzere üç faza sahiptir [15]. Yine aynı yıl Z.Z. Sheng ve A.H. Herman tarafından Tl-Ba-Ca-Cu-O bazlı süperiletken sisteminin T_c sıcaklığının 125 K olduğu keşfedilmiştir [16]. HT_c süperiletken sistemler içinde şu anda en yüksek T_c sıcaklığına sahip olanı Hg-Ba-Ca-Cu-O sistemidir. 1993 yılında keşfedilen $HgBa_2Cu_3O_{8+\delta}$ fazının normal basınç altında T_c sıcaklığının 134 K, 300 GPa basınç altında ise 164 K olduğu belirlenmiştir [17, 18].

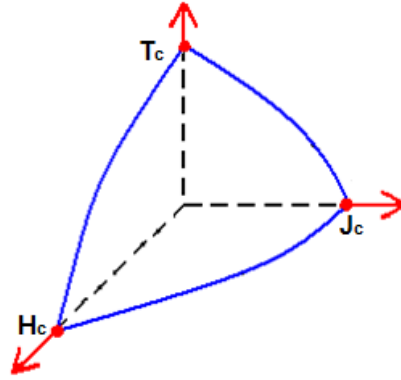
2001 yılında dünyadaki bütün araştırma gruplarını heyecanlandıran MgB_2 metal-alaşımının süperiletken olduğu keşfedildi [19]. Bu sistemin geçiş sıcaklığı 39 K olarak bulundu, ki bu sıcaklık metal-alaşımlar arasında elde edilen en yüksek geçiş sıcaklığı olmuştur. Aynı zamanda yüksek kritik akım yoğunluğuna (J_c), yüksek kritik manyetik alana (H_c) sahip olduğu ve BCS teorisine uyduğu için araştırma gruplarının ilgisini çekmiştir. 2008 yılında ise H. Hosono vd. tarafından LaOFeAs süperiletken sistemi keşfedilmiştir. Bu sistemin T_c sıcaklığı değeri 26 K olarak bulunmuştur. Daha sonra LaOFeAs süperiletken sisteminde La yerine Sm eklenerek T_c sıcaklığı 52 K' ne yükseltilmiştir [20].

Günümüzde süperiletken sistemler üzerine yoğun çalışmalar halen devam etmektedir. Özellikle teknolojik uygulama alanlarında önemli mesafeler alınmıştır. Üretilen malzemeler tel, şerit, film veya çeşitli geometrik şekiller haline getirilerek tren raylarında, uzay çalışmalarında, SQUID' larda yüksek manyetik alan yaratan mıknatıslarda (magnetlerde), süper-bilgisayarlarda, tıpta ve daha birçok noktada teknolojiye uygulanabilmektedir.

2. SÜPERİLETKENLİK İLE İLGİLİ KURAMSAL TEMELLER

2.1. SÜPERİLETKENLİĞİN TEMEL PARAMETRELERİ

Süperiletkenlik üç önemli faktörden oluşmaktadır: Kritik sıcaklık (T_c), kritik manyetik alan (H_c) ve kritik akım yoğunluğu (J_c). Bu parametrelerin her biri diğer mevcut iki parametrenin durumuna bağlıdır. Süperiletkenlik durumunun sürekliliği tüm bu parametrelerin kritik değerlerinin altında kalmasıyla mümkündür ki bu da materyalden materyale değişmektedir. Bu üç parametrenin çevrelediği alan, süperiletkenlik yüzeyini oluşturur, Şekil 2.1.



Şekil 2.1. T_c , H_c ve J_c ile çevrelenen yüzey faz diagramı. Materyal, faz diagramının altında süperiletken ve üstünde normal durumdadır [21].

2.1.1. Kritik Sıcaklık (T_c)

Bir süperiletkenin direncinin kaybolduğu sıcaklık süperiletkenliğe geçiş sıcaklığı ya da kritik sıcaklık, T_c , olarak bilinir. Her malzemenin kendi kritik sıcaklık değeri vardır [22]. Bu sıcaklık değerleri bazı metaller, alaşımlar ve HT_c süperiletkenler için Tablo 2.1 ve Tablo 2.2’ de verilmiştir.

T_c değerinin altında, süperiletkenlerin elektriksel direnci sıfır olmaktadır, Şekil 2.2. Bunun anlamı, akımın kayıpsız bir şekilde malzeme içinden akabilmesidir. Normal malzemelerdeki direncin varlığı, taşıyıcıların safsızlıklarla ya da örgü titreşimleri ile yaptığı saçılmalarla ilişkilidir. Ancak, süperiletkenlerde elektronlar Cooper çiftlerini oluşturarak yapı içerisinde saçılmaya uğramazlar ve dolayısıyla sıfır direnç özelliği gösterirler.

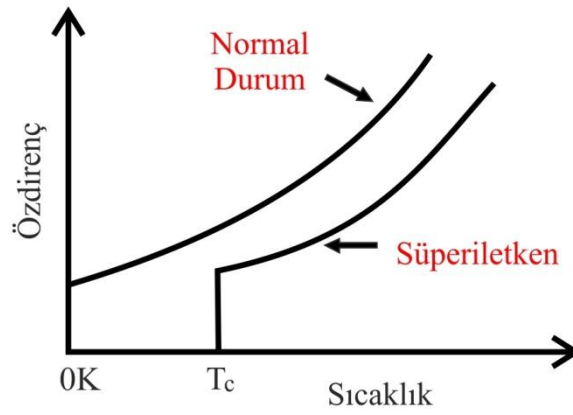
Tablo 2.1. Bazı metal ve alaşımlar için süperiletken geçiş sıcaklığı [22].

Metal	Nb	Pb	Ta	Sn	In	Al	Ga	Zr
T_c (K)	9.3	7.2	4.5	3.7	3.4	1.2	1.1	0.8

Alaşım	Ta-Nb	Pb-Bi	3Nb-Zr	Nb ₃ Sn	Nb ₃ Ge	LaOFeAs	MgB ₂
T_c (K)	6.3	8	11	18	23	26	39

Tablo 2.2. Bazı HT_c süperiletken sistemler için T_c ve H_c değerleri [23].

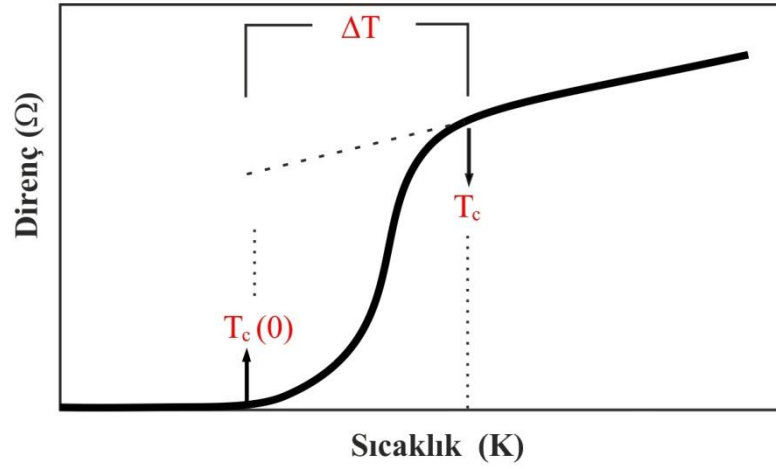
HT_c Süperiletken Sistemler	T_c (K)	H_{c2}^{ab} (T)	H_{c2}^c (T)
NCCO	24	10	—
LSCO	38	62	15
Y-123	92	120	40
Bi-2212	95	100	30
Bi-2223	110	250	30
Tl-1224	128	160	—
Hg-1223	135	190	—



Şekil 2.2. Süperiletken ve metal malzemeler için özdirencin sıcaklıkla değişimi.

Şekil 2.3’ de gösterilen ΔT ($\Delta T = T_c - T_0$) süperiletken numunenin kalitesini tanımlar; artan safsızlık miktarı ile genişleme gösteren ve geçiş bölgesi olarak adlandırılan bu sıcaklık aralığı kritik sıcaklığın belirlenmesini zorlaştırmaktadır.

Aralığın dar olması numunenin saf, kaliteli ve homojen yapıda olduğunu, aralığın geniş olması ise numunede tanecik sınırlarının varlığını göstermektedir [24].



Şekil 2.3. Süperiletken bir malzemedeki ΔT , T_c , $T_c(0)$ niceliklerinin gösterimi.

2.1.2. Kritik Manyetik Alan (H_c)

Bir süperiletkene uygulanabilen süperiletkenlik özelliklerinin bozulmadan kaldığı manyetik alanın bir sınırı vardır. Eğer bir numune süperiletken durumda ise ve uygulanan manyetik alan yavaşça artıyorsa, alan er geç maddenin süperiletken durumunun ortadan kalktığı bir değere ulaşır. Bu değere kritik manyetik alan denir ve H_c ile sembolize edilir [21]. Bazı süperiletken elementler için H_c değerleri Tablo 2.3’ de verilmiştir.

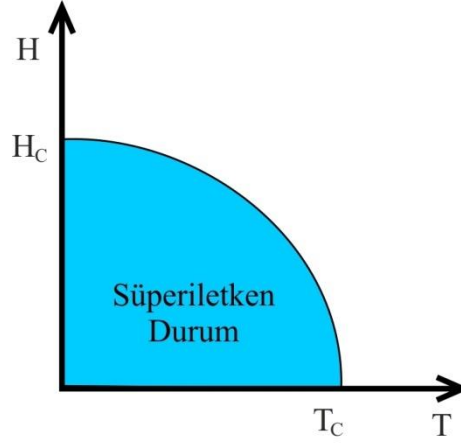
Tablo 2.3. Bazı elementler için H_c değerleri

Element	Cd	Zn	Ga	Al	In	Sn	Hg	Pb	Ta	V	Nb
H_c (T)	0.0028	0.0054	0.0058	0.011	0.028	0.031	0.042	0.081	0.083	0.141	0.206

Bir süperiletken için H_c ’ nin sıcaklığın fonksiyonu olarak değişimi denklem 2.1’ de verildiği gibidir:

$$H_c(T) = H_c(0)[1 - (T/T_c)^{1/2}] \quad (2.1)$$

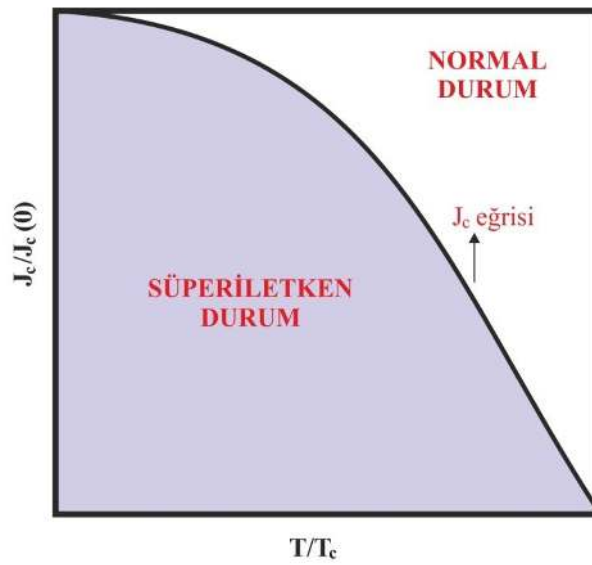
Bu bağıntıda $H_c(0)$, mutlak sıfırdaki kritik alan $H_c(T)$, süperiletkenliğin ortadan kalkması için gerekli maksimum manyetik alandır.



Şekil 2.4. Kritik manyetik alanın sıcaklıkla değişimi [24].

2.1.3. Kritik Akım Yoğunluğu (J_c)

Kritik sıcaklık ve kritik manyetik alan ile karakterize edilen bir süperiletken aynı zamanda bir kritik akım yoğunluğuna (J_c) sahiptir. Bu sınırın üstündeki akım, süperiletken durumu ortadan kaldırır [25]. Yani süperiletken malzemenin taşıyabileceği maksimum akım değerine kritik akım yoğunluğu denir ve J_c ile gösterilir. J_c değeri sıcaklığın azalmasıyla artmaya başlar ve mutlak sıfırda maksimum değerine ulaşır, Şekil 2.5.



Şekil 2.5. J_c ve sıcaklığın bir fonksiyonu olarak süperiletken ve normal durumun bölgeleri [21].

2.2. SÜPERİLETKENLİK İLE İLGİLİ TEORİLER

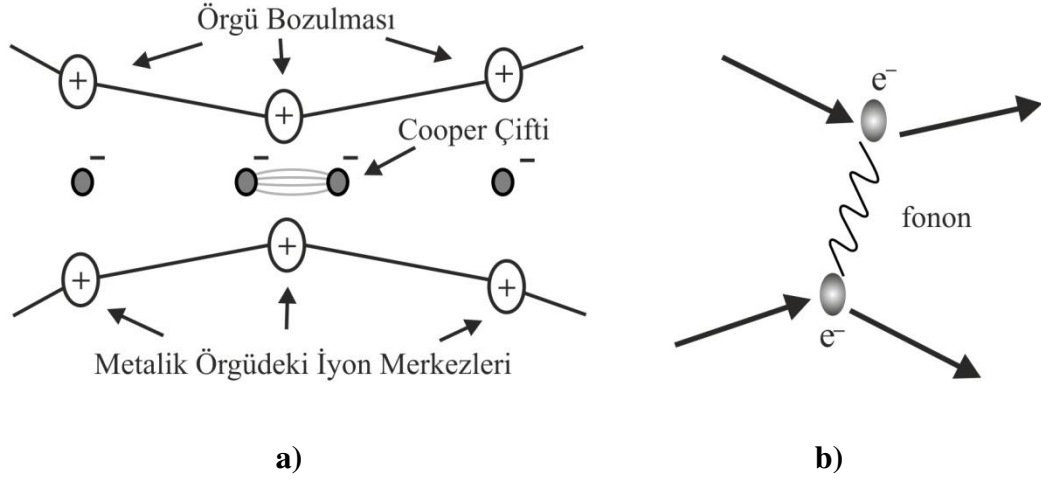
2.2.1. BCS Teorisi

Bardeen, Cooper ve Schrieffer, 1957’ de süperiletkenliğin ilk mikroskobik teorisi olan BCS teorisini ortaya koydular ve bu teori 1972 yılında bu üç bilim adamına Nobel Ödülünü kazandırdı [26].

Teori, düşük sıcaklıklarda elektronları ayrılmış olan normal durumdan daha düşük enerjili olan çiftlenmiş duruma geçişin olduğu temeline dayanmaktadır. Bütün fiziksel sistemlerin en düşük enerji durumuna ulaşmak istemeleri doğanın genel bir kuralıdır. Ancak, BCS teorisi elektron çiftlerini temsil eden dalga fonksiyonlarında tek bir kararlı durumun saçılma olmadan bir örgü boyunca hareket ettiğini ifade eder. Bu da sıfır direnç durumuna götürür [21].

BCS teorisinin anahtar özelliklerinden birisi enerji aralığının tahminidir. Fermi sıvısının Landau kavramında, elektronlar hareket ettiği ortamda quasi-parçacıklar olarak adlandırılan uyarılmalar olarak düzenlenirler. Quasi-parçacıklar çiftlerin ayrılması ile süperiletken temel durumun dışında meydana gelebilir, fakat sadece her uyarmanın bir minimum enerji değeri vardır. Bu minimum enerji, Δ , enerji aralığı olarak bilinir. BCS teorisi, enerji aralığının kritik sıcaklığa $T=0$ K’ de $2\Delta=3.52k_B T_c$ eşitliği ile bağlı olduğunu belirtmektedir (Burada k_B Boltzmann sabitidir) [23].

Kristal örgü içerisinde zayıf bir etkileşim ile elektron çiftlerinin oluşması Cooper tarafından öne sürülen bir fikirdi [27]. Süperiletkenlik olayı, elektronlar arasında ortaya çıkan çekici bir etkileşmenin sonucudur. BCS teorisine göre bu çekim etkileşmesi şu şekilde açıklanabilir; süperiletken örgü içerisindeki pozitif yüklenmiş bir bölgeden negatif yüklü bir elektron geçtiğinde örgü uyarılır ve pozitif yüklü iyonların elektronlara doğru hareketi ile örgüde bir büzülme meydana gelir, Şekil 2.6.a. Böylece, pozitif iyonlar örgüde momentum taşıyan bir dalga (fonon) şeklinde yayılacaktır. Elektron bu bölgeden çıkmadan ve örgü eski pozisyonuna dönmeden önce bu bölgede bulunan ikinci bir elektron bu fononu absorblar ve sistem termodinamik açıdan daha düşük enerjili duruma geçer. Böylece iki elektronun birbirini itmesi beklenirken, fonon yardımıyla bir çekici etkileşme meydana gelir, Şekil 2.6.b.



Şekil 2.6. a) İki elektronun çekici etkileşmesinden dolayı örgünün bozulması b) Karşılıklı fonon değişiminden kaynaklanan elektron-elektron etkileşmesi [28].

2.2.2. Ginzburg-Landau Teorisi

Ginzburg-Landau teorisi, süperiletkenliğin ilk fenomenolojik kuantum teorisidir. Bu teori Landau tarafından geliştirilen ikinci dereceden faz geçişi teorisine dayanmaktadır [29]. Süperiletkenliğin mikroskobik teorisinden önce bu teori ortaya atılmıştır. Daha sonra mikroskobik teori oluşturulduğunda, Ginzburg-Landau eşitliklerinin mikroskobik teoriden türetildiği gösterilmiştir. Bu türetme, Ginzburg-Landau teorisinin girişinde temel niceliklerin fiziksel olarak yorumlamasını sağlamıştır [30].

Kuantum teorisi, süperiletkenliğin manyetik alan yokluğunda normal duruma göre daha düzenli bir durum olan süperiletkenlik fazına geçişin ikinci dereceden faz geçişi olduğunu söyler. İkinci derece faz geçişi süreksiz olarak sistemin simetrisinin bozulması olayıdır. Bu durum, bir süperiletken için düzen parametresinin $T < T_c$ durumunda sıfırdan farklı ve $T \geq T_c$ durumunda sıfır olacağını göstermektedir. Kuantum teorisini geliştirmek için süperiletken elektronun etkin dalga fonksiyonu tanımlanmalıdır. Ginzburg-Landau teorisinde bütün elektronların özdeş davranış gösterdiği kabul edilir ve bütün süper-elektronlar sadece koordinatın dalga fonksiyonu olan $\Psi(r)$ ile tanımlanır. Bu şekilde bütün elektron topluluğunun tek parametrelili dalga fonksiyonu ile temsil edilmesi mümkündür. Böylece, Ginzburg-Landau teorisi süperiletkenin makroskobik özelliklerinin anlaşılmasını sağlar.

Süperiletken durumla normal durum arasındaki serbest enerji farkını düzen parametresi ve vektör potansiyel cinsinden aşağıdaki şekilde önermişlerdir [31]:

$$f = \alpha |\psi|^2 + \frac{1}{2} \beta |\psi|^4 + \frac{1}{2m} | -i\hbar \nabla - 2eA |^2 + \int \vec{H} \cdot \vec{dB} \quad (2.3)$$

Burada f , iki durum arasındaki serbest enerji farkı, A vektör potansiyeli, ψ düzen parametresi, α ve β ise fenomenolojik parametrelerdir. Enerji farkı düzen parametresi ve vektör potansiyele göre türevi alınarak minimum enerji şartı için GL denklemleri elde edilir;

$$\alpha \psi + \beta |\psi|^2 + \frac{1}{2m} (-i\hbar \nabla - 2eA)^2 = 0 \quad (GL - 1) \quad (2.4)$$

$$J = \frac{2e}{m} \text{Re}\{\psi^* (-i\hbar \nabla - 2eA) \psi\} \quad (GL - 2) \quad (2.5)$$

Manyetik alan yokluğunda süperiletken içinde akım yoktur, o halde (GL-2) denklemi sıfır olur ve (GL-1) denklemi;

$$\alpha \psi + \beta |\psi|^2 \psi = 0 \quad (2.6)$$

şeklinde ifade edilebilir. Buna göre;

1.Çözüm: $\psi = 0$, $T \geq T_c$ için normal duruma karşılık gelir.

2.Çözüm: $\psi \neq 0$, $T < T_c$, $|\psi|^2 = -\frac{\alpha}{\beta}$ süperiletken duruma karşılık

gelmektedir.

İkinci dereceden faz geçişi ise,

$$|\psi|^2 = -\frac{\alpha(T - T_c)}{\beta} \geq 0 \quad (2.7)$$

olmalıdır.

GL teorisinden elde edilen koherens uzunluk;

$$\alpha(T) + \beta |\psi|^2 \psi^4 \frac{1}{2m} (-i\hbar \nabla)^2 \psi = 0 \quad (GL - 1 \text{ denklemi}) \quad (2.8)$$

şeklinde verilmektedir. Bu, düzen parametresinin değişimi için bir diferansiyel eşitliktir;

$$\frac{-\hbar^2}{2m} \frac{\partial^2 \psi}{\partial x^2} + \alpha(T) \psi + \beta |\psi|^2 \psi = 0 \quad (2.9)$$

Denklem (2.9), α parametresine bölüldüğünde;

$$\xi = \left(\frac{-\hbar^2}{2m\alpha(T)} \right)^{1/2} \quad (2.10)$$

ifadesi elde edilir. II. GL denklemi

$$J = \frac{e}{m} \psi^* (-2eA) \psi = -\frac{4e^2 |\psi|^2}{m} A \quad (2.11)$$

olur. London eşitliğinden;

$$J = \frac{1}{\mu_0 \lambda_L^2} A \quad (2.12)$$

olduğuna göre;

$$\frac{4e^2 |\psi|^2}{m} = \frac{1}{\mu_0 \lambda_L^2} \Rightarrow \lambda_L^2 = \frac{m}{(2e)^2 \mu_0 |\psi|^2} \quad (2.13)$$

halini alır. Bu durumda Denklem (2.10) ve (2.12);

$$\xi = \sqrt{\frac{\hbar^2}{2m|\alpha|}} \quad , \quad \lambda = \sqrt{\frac{m}{4\mu_0 e^2 \psi_0^2}} \quad (2.14)$$

olur. Bu iki parametrenin oranı Ginzburg-Landau parametresi olarak (κ) bilinir. ($\kappa=\lambda/\xi$) Eğer $\kappa < 1/\sqrt{2}$ ise örnek 1.tip süperiletken ve $\kappa > 1/\sqrt{2}$ ise örnek II. tip süperiletken olarak kabul edilir.

Teori, süperiletken durumun önemli fiziksel özelliklerini açıklamaktadır ve önemli başarılarından biri de Abrikosov' un tanımladığı vorteks durumunun açıklanabilmesidir [32].

2.2.3. Rezonans Valance Band (RVB) Teorisi

Antiferromanyetik Heisenberg spin sistemleri için Anderson' un ortaya koyduğu teori, Rezonans Valance Band teorisi olarak adlandırılmıştır [33].

Bu teoride tek elektron spinleri örgü noktalarında lokalize olurlar ve diğer örgü noktalarındaki elektronlarla etkileşirler. Böylece yapıda antiferromanyetik düzen oluştururlar. Bu durum Mott-Yalıtkan olarak bilinmektedir [34].

Atomlar arası yerdeğiştirme, ara yere girme ve yük perdelenmesi gibi durumlarda zıt spinli komşu elektronlar arasında bir çekici etkileşme olur. Bu durumda örgüye bir alıcı iyon yerleştirilirse holler oluşur ve etkileşme, termodinamik olarak kararlı olan Cooper çiftleri ile olur. Bu da süperiletim durumunu ortaya çıkarır [27, 35].

2.3. YÜKSEK SICAKLIK SÜPERİLETKEN SİSTEMLER

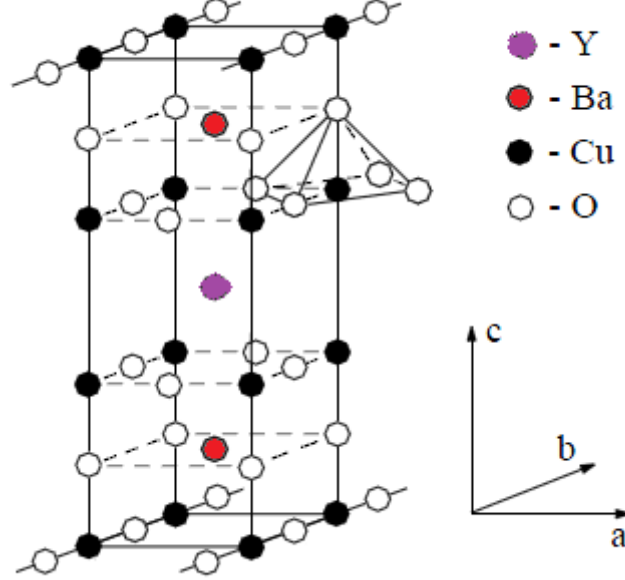
2.3.1. LaSrCuO Süperiletken Sistemi

LaSrCuO ilk keşfedilen yüksek sıcaklık (HT_c) süperiletken sistemidir. Genel formülü $La_{2-x}Sr_xCuO_4$ şeklinde olan sistemin maksimum T_c değeri 38 K' dir. Bu sistem tetragonal simetride olup birim hücre parametreleri yaklaşık olarak $a=b=5.35 \text{ Å}$ ve $c=13.5 \text{ Å}$ dur, Şekil 2.7.a. LaSrCuO sisteminde yük rezervuarını oluşturan, iki LaO düzlemini ayıran ve iletimden sorumlu olan CuO_2 düzlemleri CuO_6 oktahedreleri

2.3.2. YBaCuO Süperiletken Sistemi

Her bir YBCO birim hücresi yitriyum atomlarının bir düzlemi ile ayrılmış ve iki BaO tabakası arasında kalmış iki CaO_2 düzlemi içermektedir. Bu sistem, yapısındaki oksijen miktarına ve ısıtma işlem sıcaklığına bağlı olarak kristal yapısı ve iletkenlik özellikleri farklılık göstermektedir. $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ bileşiğindeki “ δ ” sembolü, oksijen eksikliğini göstermektedir. $0 \leq \delta < 0.5$ için sistem ortorombik simetridedir ve süperiletken özellik göstermektedir. $0.5 \leq \delta \leq 1$ için ise sistem ortorombik fazdan tetragonal simetriye geçerek süperiletkenlik özelliğini kaybetmektedir. Tetragonal simetrideki $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$

sisteminin örgü sabitleri $a=b=3.85 \text{ Å}$ ve $c=11.83 \text{ Å}$ dur. Ortorombik simetrideki $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.95}$ sisteminin örgü sabitleri ise $a=3.82 \text{ Å}$, $b=3.89 \text{ Å}$ ve $c=11.7 \text{ Å}$ dur, Şekil 2.8 [24, 37, 38].

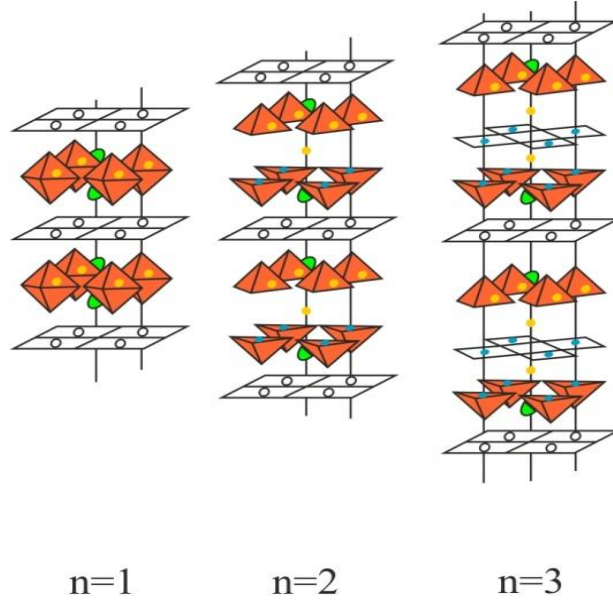


Şekil 2.8 Ortorombik simetrideki $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ sisteminin kristal yapısı [23].

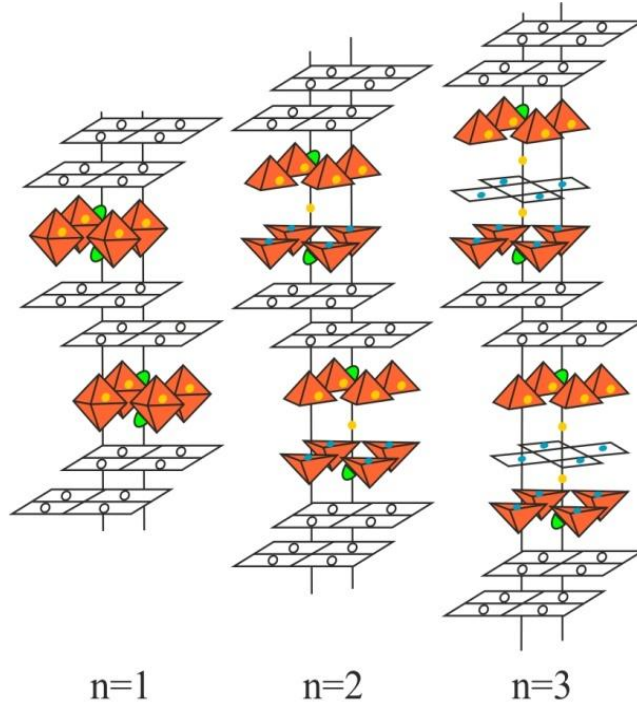
2.3.3. TlBaCaCuO Süperiletken Sistemi

Tl-Ba-Ca-Cu-O bazlı süperiletken ailesi ilk olarak 1988 yılında Sheng ve Hermann tarafından keşfedilmiştir [39]. Genel formülü $\text{Tl}_m\text{Ba}_2\text{Ca}_{n-1}\text{Cu}_n\text{O}_{2n+m+2}$ şeklindedir ve tetragonal simetriye sahiptir, Şekil 2.9 .

Ca içermeyen $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{8+x}$ ve $\text{TlBaCu}_3\text{O}_{5.5+x}$ bileşikleri 80 K altında süperiletken davranış göstermektedir. Yapıya Ca eklendiğinde 100 K' in üstünde süperiletken olduğu keşfedilmiştir. Daha sonra $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10}$ bileşiğinde hazırlama koşullarını değiştirildiğinde 125 K' de T_c ' ye sahip bir süperiletken malzeme elde edilmiştir [34, 39-42].



(a)



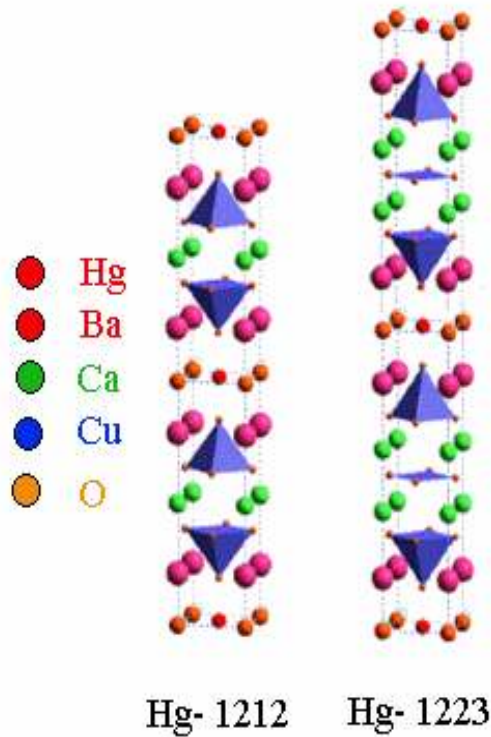
(b)

Şekil 2.9. a) $\text{TlBa}_2\text{Ca}_{n-1}\text{Cu}_n\text{O}_{2n+3}$ ($n=1-3$) sisteminin kristal yapıları b) $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{Ca}_{n-1}\text{Cu}_n\text{O}_{2n+4}$ ($n=1-3$) sisteminin kristal yapıları [43].

2.3.4. HgBaCaCuO Süperiletken Sistemi

Civa bazlı HT_c süperiletkeni 1993 yılında S.N. Putlin ve arkadaşları tarafından keşfedilmiştir [17]. Genel formülü HgBa₂Ca_nCu_{n+1}O_{2n+4} (HgBaCaCuO) şeklindedir. n=0, 1 ve 2 için Hg-1201, Hg-1212 ve Hg-1223 olarak bilinir. Bu üç sistemde tetragonal birim hücreye sahiptir, Şekil 3.4 a, b, c. Örgü parametreleri tüm fazlar için a(=b)=3.86 Å ve c parametresi ise sırasıyla n =0, 1 ve 2 için sırasıyla 9.5 Å, 12.6 Å ve 15.7 Å değerindedir.

Bu süperiletken sisteminde basıncın büyük etkisi vardır. Basıncın artmasıyla birlikte kritik geçiş sıcaklığı artmaktadır. Hg-bazlı sistemin normal basınç altında geçiş sıcaklığı 134 K, 300 GPa basınç altında ise 164 K değerindedir [38, 44]. Kristal yapısı BSCCO' ya benzerlik gösterir ve tetragonal simetriye sahiptir. Civanın çabuk buharlaşması ve toksik özellikte oluşu bu malzemenin üretimini zorlaştırmaktadır.



Şekil 2.10. a) Hg-1212 b) Hg-1223 sisteminin kristal yapısı [45].

Düşük sıcaklık fazı olarak bilinen Bi-2201 sisteminin T_c değeri yaklaşık olarak 20 K' dir. Bi-2201 fazı, BiO/SrO/CuO/SrO/BiO şeklinde bir istiflenmeye sahip ve Ca atomu içermemektedir, Şekil 3.5.a. Sistem tetragonal yapıya sahiptir ve örgü sabitleri $a=b=5.39 \text{ Å}$, $c=24.4 \text{ Å}$ dır [47]. Bu fazda Cu atomları altı tane oksijen ile çevrilidir. Oksijenler son derece uzun CuO_6 oktahedralini meydana getirirler. BiO düzleminde Bi-Bi arası uzaklık [010] doğrultusunda periyodik olarak 2.6 Å dur. İki BiO düzlemi arası mesafe 3.1 Å dur. BiO-SrO tabakaları arasındaki uzaklık ise 2.9 Å dur. SrO-CuO arası mesafe de 1.7 Å dur, Tablo 2.4.

Tablo 2.4. Bi-2201 fazına ait bağ uzunlukları ve her bir düzlemde bulunan en yakın oksijen atomlarının sayısı [27].

Bağ	Bağ Uzunluğu(Å)	Oksijen Sayısı
Cu-O (1)	1.90	4
Cu-O (2)	2.58	2
Bi-O (2)	2.00	1
Bi-O (3)	2.20	1
	2.70	2
	3.21	1
	3.28	1
Sr-O (1)	2.53	2
	2.94	2
Sr-O (2)	2.95	1
	2.81	2
	2.68	1
Sr-O (3)	2.87	1

Bi-2212 fazının geçiş sıcaklığı 80-90 K arasındadır. Bi-2212 fazının kristal yapısı Bi-2201 fazına oldukça benzemektedir. Bu iki yapının birbirinden farkı CuO düzlemleri arasına Ca atomunun yerleşmesidir. Bu sistem BiO/SrO/CuO/Ca/CuO/SrO/BiO şeklinde bir istiflenme gösterir, Şekil 3.5.b. Bi-2212 sisteminde Cu-O tabakaları, CuO_5 piramidleri şeklindedir ve düzlemdeki Cu atomu kare piramidin köşelerine yerleşmiş beş oksijen atomuyla çevrilidir. Birim hücre, uygulanan ısı işlemlere göre tetragonal veya ortorombik olabilmektedir. Birim hücre parametreleri ortorombik sistem için; $a=5.39 \text{ Å}$, $b=5.41 \text{ Å}$ ve $c=30.8 \text{ Å}$ ve tetragonal sistem için; $a=b=5.4 \text{ Å}$ ve $c=30.6 \text{ Å}$ değerindedir [48]. Oluşan bağlar, bağ uzunlukları ve oksijen miktarları Tablo 2.5' de verilmiştir.

Tablo 2.5. Bi-2212 fazına ait bağ uzunlukları ve her bir düzlemde bulunan en yakın oksijen atomlarının sayısı [27].

Bağ	Bağ Uzunluğu(Å)	Oksijen Sayısı
Ca-O (1)	2.52	8
Cu-O (1)	1.91	4
Cu-O (2)	2.16	1
Bi-O (2)	2.22	1
Bi-O (3)	2.71	4
	2.97	1
Sr-O (1)	2.56	4
Sr-O (2)	2.74	4
Sr-O (3)	2.91	1

BSCCO ailesi içerisinde Bi-2223 fazı yüksek sıcaklık fazı olarak bilinmektedir ve T_c sıcaklığı 110 K değerindedir. Bu sistem, BiO/SrO/CuO/CaO/CuO/CaO/CuO/SrO/BiO şeklinde düzlemsel bir istiflenmeye sahiptir, Şekil 3.5.c. Bi-2223 yapısında, Cu₂ atomları kare şeklinde dört oksijen atomu ile çevrilmiştir. Yapı, tetragonal birim hücrelerine sahiptir ve örgü sabitleri $a=b= 5.4 \text{ Å}$ ve $c=37.1 \text{ Å}$ değerindedir [27, 35, 48]. Sistemin bağ uzunlukları ve oksijen miktarları ise Tablo 2.6’ da verilmiştir.

Tablo 2.6. Bi-2223 fazına ait bağ uzunlukları ve her bir düzlemde bulunan en yakın oksijen atomlarının sayısı [27].

Bağ	Bağ Uzunluğu(Å)	Oksijen Sayısı
Ca-O (1)	2.48	8
Cu (1)-O (1)	1.91	4
Cu (1)-O (2)	2.31	1
Cu (2)-O (1)	1.91	4
Sr-O (2)	2.65	4
Sr-O (3)	2.77	4
Bi-O (2)	2.99	1
Bi-O (3)	2.03	1
	1.87	1
	2.77	2
	3.35	1
	3.15	1
	3.82	1

2.4. İNCE FİLM KAPLAMA TEKNİKLERİ

Yüksek sıcaklık (HT_c) süperiletkenlerin ($BiSrCaCuO$, $YBaCuO$, $HgBaCuO$, $TlBaCaCuO$) keşfedilmesinden sonra gerek malzeme sentezleme ve karakterizasyonu gerekse teknolojik uygulamalarla ilgili olarak yoğun çalışmalar yapılmıştır. Özellikle yüksek kritik akım yoğunluğuna (J_c) sahip olmaları bu malzemeleri daha da çekici kılmaktadır. HT_c 'lerin fiziksel özelliklerini, süperiletken geçiş sıcaklığını (T_c) ve kritik akım yoğunluğunu (J_c) geliştirmek için birçok katkılar/dopingler yapılmıştır. Son yıllarda HT_c süperiletken sistemlerin teknolojik uygulanabilirlikleri yoğun şekilde çalışılmaktadır. Bu açıdan oldukça önemli olan düşük boyutlarda (mikro/nano boyutlarda) taneciklerin eldesi için de yoğun çalışmalar yapılmaktadır.

Süperiletken malzemelerin ince/kalın film, tel ve şerit formunda elektronik, manyetik ve optik uygulamalar gibi teknolojik alanlara entegrasyonları için yoğun çalışmalar yapılmaktadır. Birçok uygulamada çok önemli yeri olan ince filmler üzerine araştırmalar yapılmaktadır [21]. Günümüzde ince filmler yarıiletken aletlerde, manyetik kayıt ve algılama sistemlerinde, optik kaplamalarda ve dekoratif işlerde yaygınlıkla kullanılmaktadır. Kaplama yöntemlerindeki farklılıklar ve kaplama sırasındaki çeşitli işlemler sonucu, yığın (bulk) malzemedeki bulunmayan birçok özellik ince filmlerde elde edilebilmektedir: Atomik büyütme işleminden kaynaklanan filme özgü malzeme özelliklerini, kristal yönelmesini ve çok katlı yapılardan kaynaklanan kuantum ve diğer boyut etkilerini görmek mümkündür [49-51].

Genel olarak ince film kaplama teknikleri, fiziksel buhar kaplama (PVD) ve kimyasal buhar kaplama (CVD) olmak üzere iki gruba ayrılırlar. Fiziksel buhar kaplama tekniklerinde en yaygın olarak kullanılan yöntemler; Lazerle Çöktürme (PLD), Püskürtme (Sputtering), Moleküler Demeti Epitaksi (MBE) ve Buharlaştırma (Evaporation)'dır. Kimyasal buhar kaplama tekniklerinde en yaygın olarak kullanılan yöntem ise Metal-Organik Kimyasal Buhar Kaplama (MO-CVD)'dir [52].

Günümüze kadar geliştirilen farklı kaplama işlemleri ile uygulanan fiziksel buhar kaplama tekniği vakumlu ortamda, bir ısıtıcı (rezistans, lazer, elektron bombardımanı vb.) ile buharlaştırılan materyal(lerin) kaplanacak olan malzeme üzerinde (örneğin altlık) ince bir film katmanı halinde birikmesi işlemine dayanmaktadır [53, 54].

Lazerle çöktürme (PLD) tekniği, HT_c süperiletkenlerden iyi kalitede filmler elde etmede kanıtlanmış başarısıyla önem kazanmıştır. PLD tekniği vakum çemberi içerisindeki hedefe yüksek güçte lazer tutulması ile gerçekleştirilir. Bu metotta lazer,

hedef malzeme üzerine odaklandırılır. Lazer tutulması, hedefteki malzemenin buharlaşarak altlık üzerine kaplama yapabilmesini sağlar. Bu işlem çok yüksek gazı vakum ortamlarında veya bir taşıyıcı gaz ortamında yapılabilir. Örneğin, oksijen oksit kaplama işlemlerinde kullanılır. Lazer demeti hedefe ulaştığında, enerji hedef tarafından absorblanarak termal enerjiye çevrilir. Buharlaşma oluşur ve plazma meydana gelir. Plazmanın içerisinde çok yüksek enerjili parçacıklar vardır. Bu parçacıklar, sıcak altlık üzerine birikerek film tabakasını oluşturur. Plazma, nispeten düşük altlık sıcaklıklarında çok yüksek kalitede ince filmlerin büyütülmesine yardımcı olmaktadır. Atomik oranda çok katmanlı yapılar ve süper örgüler kolaylıkla bu teknik ile üretilirler. Bu tür avantajlar, PLD tekniğini ince film teknikleri arasında en popüler yöntemlerden biri haline getirmiştir [34, 38, 55-59].

Moleküler demeti epitaksi (MBE) yöntemi, yüksek vakum şartları altında molekülerin ya da atomların buharlaştırılmasıyla tek kristal epitaksiyel ince filmlerin tabaka tabaka oluşturulmasına dayalı yöntemdir. Bu teknik, sadece film gelişiminin nasıl ilerlediğini değil aynı zamanda atomik seviyede film gelişimini kontrol etmeye olanak sağlamaktadır. Böylece çok tabakalı yapıların kontrollü oluşumu gerçekleşmektedir. Sistemde, kaplanacak malzemenin buharlaştırma oranı bilgisayar ile kontrol edilmektedir. Sistem büyütme çemberi, analiz çemberi ve numune çemberinden oluşmaktadır. Film oluşturma sırasında bileşenler, çok yüksek bir vakum bölgesi içindeyken altlık yüzeyine bir ışın demeti gönderilir ve kaynaklardan buhar akışlarının toplanmasıyla altlık eş zamanlı olarak kaplanmaktadır. Bu yöntem ilk kez yarıiletken filmlerin büyütülmesi için kullanılmıştır ancak, şu an daha çok tabakalı malzemeler oldukları için HT_c süperiletkenlerden ince film üretimi için paha biçilemez bir yöntemdir [34, 55, 60].

Püskürtme (sputtering) tekniği, ince film üretiminde bilim adamları tarafından yaygın olarak kullanılan tekniklerden biridir. Bu yöntemde katı malzeme gaz bir plazma içinde pozitif iyonlarla bombardıman edilir ve katı malzemenin yüzeyinden atomlar kopartılır. Kaplanacak olan malzeme, hızlandırılmış iyonlar gibi enerjik parçacıklarla bombardıman edilirse saçılan atomlar altlık yüzeyinde film tabakası oluştururlar. Maksimum kaplama oranı, birbirine bakan hedef ve altlığın geometrisinin uyumuyla gerçekleşmektedir. Ancak, kaplanmış filmde gaz plazmasındaki iyonların bombardımanından dolayı ciddi kusurlar gözlenebilir. Bunu önlemek için altlık yüzeyi, hedef püskürtücüsüyle dik açılı olacak şekilde yerleştirilmelidir. Bu teknik başlangıç eksenini, ürünün miktarını önemli derecede azaltabilme gibi dezavantajlara sahiptir.

Püskürtme tekniğinde bir diğer problem, farklı elementler için püskürtülen ürünlerdeki farklılıklardan dolayı istenilen kompozisyona sahip olamamasıdır. Bu problemlere karşın, HT_c süperiletken filmlerin üretiminde yoğun olarak kullanılmaya devam eden pahalı olmayan bir tekniktir [38, 61].

Buharlaştırma (Evaporation) ise PVD kaplama teknikleri arasında en basit olanıdır. Bütün bileşenlerin eşzamanlı buharlaştırılmasıyla ya da her bileşenin sırayla gönderilip kaplanmasıyla yüksek derecede yönelimli filmler elde edilir. Buharlaştırma işlemi sırasında altlığın kaynağa en yakın bölümünün daha kalın olması, altlığa dönme hareketi verilmesiyle önlenabilir. Başka bir çözüm ise, vakum odasına 0.005-0.2 Torr basınçlı bir soygaz vererek buhar atomlarının birbirleriyle çarpıştırılması sağlanır ve bu atomların altlığın üzerinde eşit miktarda dağılması ile gerçekleştirilmiş olur. Bu yöntem ile çok düzgün bir kaplama elde edilebilir. Buharlaştan atomların kinetik enerjileri düşük olduğu için, kaplamaların ana malzemeye yapışma yetenekleri de düşüktür. Bunun yanısıra, sistemin oldukça basit olması ve buhar veriminin yüksek ve kaplama malzemesi seçiminde geniş olanaklar sunması bu tekniğin avantajlarıdır [38].

Kimyasal buhar kaplama (Chemical Vapour Deposition-CVD) katı malzemeyi oluşturan gaz içerikli bileşenlerin kimyasal reaksiyonlarını ve ayrışmalarını kapsar. Tepkimeye giren gazlar, ısıtılan bir altlık yüzeyine taşınır. Burada bileşenlerine ayrılır ve istenilen süperiletken fazın oluşması için, altlık yüzeyi ile etkileşime girer. CVD metodunun avantajı düzenli, saf ve tekrarlanabilir filmlerin üretiminin gerçekleştirilebilmesidir. Yüksek reaksiyon sıcaklığı, aşındırıcı gazların varlığı ve nispeten düşük kaplama oranları dezavantajlarıdır [57, 62].

Metal-Organik Kimyasal Kaplama (MO-CVD) ise ince filmlerin geniş ölçekte üretimi için ideal bir metottur. Elektronik endüstrisinde her zaman kullanılır ve yüksek verime sahip geniş bir yüzey bölgesinde film kaplamada oldukça etkilidir. MO-CVD tekniğinde bir veya birden fazla bileşen reaksiyon bölgesine organometalik bileşik olarak taşınır. İstenilen bileşiğin oluşumu organometalik ve diğer bileşenlerin pirolizi ve ısıtılmış altlık üzerinde atomik veya moleküler parçaların birleşmesi yoluyla gerçekleşir. HT_c süperiletken ince filmlerde kompozisyon ve kalınlığın düzgünlüğü ve büyüme oranları, MO-CVD hücresinde ısı, kütle ve momentum taşınmasıyla kontrol altına alınır [38, 55, 63].

Tez kapsamında BSCCO ince film üretimi için tercih ettiğimiz yöntem olan Ultrasonik Sprey Piroliz (USP) yöntemi de bir kimyasal buhar kaplama tekniğidir.

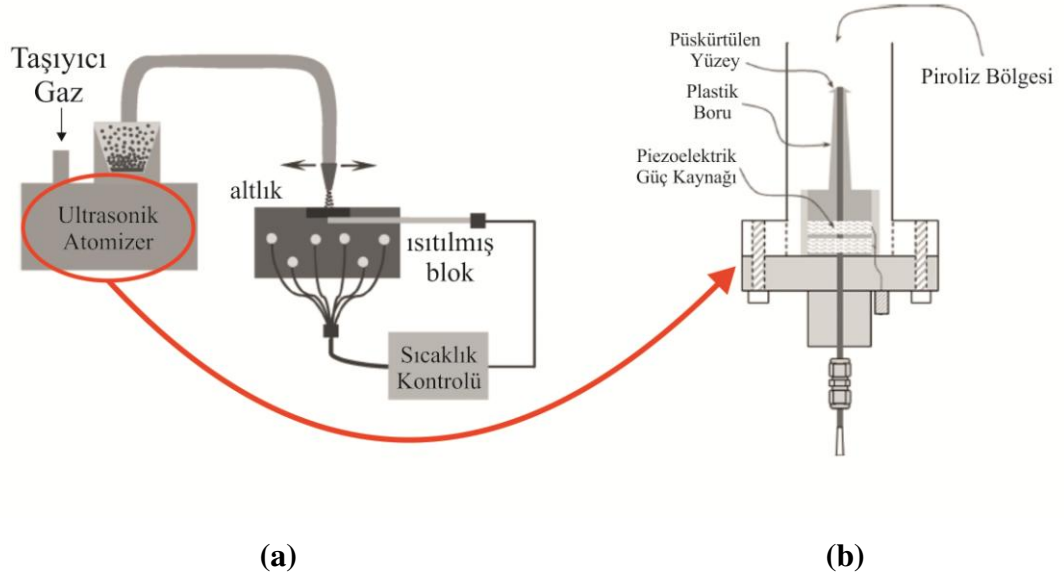
2.5. ULTRASONİK SPREY PİROLİZ (USP) YÖNTEMİ

Düşük boyutta taneciklerin eldesi oldukça güzel fiziksel özelliklere sahip ince/kalın film veya tel ve şerit malzeme üretimini mümkün kılmaktadır. Özellikle yüksek J_c ' ye ulaşmak için güçlü ve sağlam tanecik sınırlarının artırılması gerekmektedir. Bu da tanecik boyutunun düşürülmesi anlamına gelmektedir. USP metodu ile bu gereksinim rahatlıkla gerçekleştirebilmektedir.

USP metodu yarıiletken veya süperiletken ince film ve nano boyutta toz üretimi için kullanılan bir tekniktir. Bu metot saflık, homojenlik, birçok malzemeye (metal, seramik ve alaşımlara) uygulanabilirlik, prosesin kontrollü bir şekilde gerçekleşmesi (konsantrasyon, PH, başlangıç çözeltisi, prekürsör çeşidi ve damlacıkları ısıtma oranı gibi süreç parametrelerini), üretim işleminin kısa sürelerde tamamlanması, yöntemin kolay olması büyük ölçekte ve düşük maliyetlerde üretim gibi önemli avantajlara sahiptir [54, 64, 65]. Aynı zamanda fiziksel buhar kaplama yöntemlerinin aksine, USP metodu yüksek kalitede bir hedef ve herhangi bir adımda vakum gerektirmez. Bu da endüstriyel uygulama alanlarında büyük avantajlar sağlar [66].

USP sisteminin donanımı; bir ultrasonik atomizer, precursor çözeltisi, altlık ısıtıcısı ve ısı denetçisinden oluşur, Şekil 2.12.a . Temel olarak bu teknik, ısıtılmış altlığa çözelti püskürtülmesini içermektedir. Çözelti genellikle sulu ortamda, istenilen karışımın bileşen atomlarının çözülmesi ile yapılır [66, 67].

Ultrasonik atomizerin tabanına yerleştirilen piezoelektrik malzeme sayesinde spray işlemi gerçekleşmektedir. Piezoelektrik seramik malzeme üzerine akustik dalga gönderildiğinde malzeme üzerinde gerilim oluşur. Mekanik gerilimin olduğu bu boyutsal değişim kristali kutuplaştırarak elektrik alanı oluşturur. Piezoelektrik malzeme, akustik dalgayı elektrik alanı dönüştürebildiği gibi elektrik alanı da akustik dalgaya dönüştürebilme özelliğine sahiptir. Sistemdeki güç kaynağı sayesinde oluşan elektrik alan sprayi oluşturan sıvıya uygulandığında sıvı yüzeyinde sıvı damlacıkları oluşarak spray işlemi gerçekleştirilir, Şekil 2.12.b .



Şekil 2.12. (a) Genel bir Ultrasonik Sprey Piroliz (USP) donanımı [68] (b) ultrasonik atomizer başlığının şematik diyagramı [69].

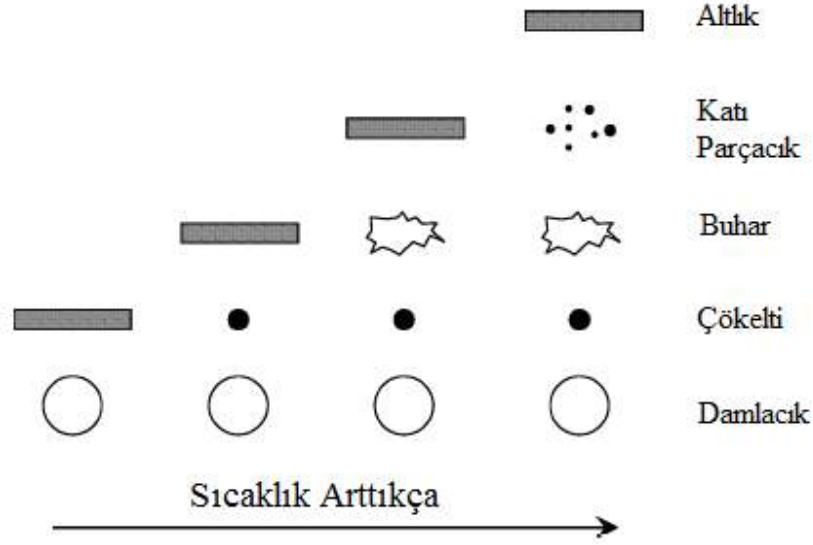
2.5.1. Ultrasonik Sprey Piroliz (USP) Yönteminin Çalışma Prensibi

USP metodunda hedefte bulunan başlangıç çözeltisi ultrasonik titreştirici yardımı ile (~ 2.5 MHz’ de) bağ yapısı bozularak nano-boyutta zerrecikler bulutu (mist) haline getirilir ve bir ısıtıcıdan geçirilerek sürücü gaz yardımı ile bir reaktörde toplanır [70]. Toplanan bu toz zerrecikleri küresel formdadır ve boyutları da 50-250 nm kadar küçük olabilmektedir. Aynı zamanda toz bulutu bir altlık üzerine düşürülerek istenilen kalınlıkta/ölçekte ince/kalın filmler çok rahatlıkla hazırlanabilmektedir. Bu işlem sırasında toz bulutunun altlıklara daha hızlı yapışması için altlıklar belli sıcaklıklarda tutulmalıdır.

USP tekniğinin genel prensibi, aerosol oluşumuna ve bu aerosol tanelerinin arzu edilen boyutta partiküllere dönüşmesine dayanır. Aerosol oluşumu, ultrasonik atomizer kullanılarak sağlanmaktadır ve aerosolü oluşturan damlacıklar, başlangıç çözeltisinin atomizasyonu ile meydana gelmektedir. Aerosol oluşturmak için yüksek frekansta (100 kHz-10 MHz) ses ötesi dalgaların oluşturulması gerekmektedir.

Bu yöntemde temel alınan aerosol-parçacık (partikül) dönüşümünün mekanizmasının şematik gösterimi Şekil 2.13’ de verilmiştir. Ultrasonik atomizer tarafından oluşturulan aerosol damlacığı partiküle dönüşür. Bu dönüşüm esnasında aerosol damlacıklar farklı işlemlerle yoğun parçacıklar ya da mikro gözenekler halini

almaktadır. Yüksek ısıtma oranının sonucu olarak birinci çözeltinin homojenliği elde edilen parçacıklarda kendini gösterir [71].



Şekil 2.13. *Ultrasonik Sprey Piroliz yönteminde aerosol-parçacık (partikül) dönüşüm mekanizmasının şematik gösterimi [72].*

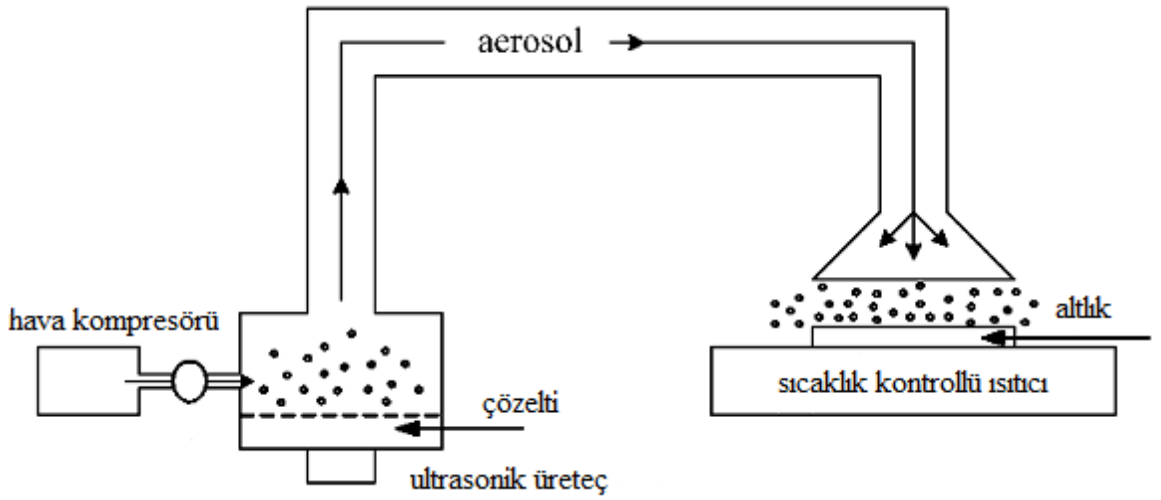
Aerosol kaynağı olarak uygun bileşenlerin çözeltisi, aerosol damlacıkların üretildiği aerosol üreteçte kullanılır. İstenilen şekilde ince film hazırlamak için kimyasal termal ayrıştırma yöntemlerinin ayrıntılarının yanı sıra aerosol kaplama durumlarının detaylarını da bilmek önemlidir. USP yönteminde kaplama ve ayrışma işlemleri dört adımda gerçekleşir: precursor çözeltisinden damlacıkların üretimi, damlacığın suyunu kaybederek hacminin azalması (çökelti), oksitlerde precursor dönüşümü (buharlaştırma) ve katı parçacık oluşumu [68, 73-76].

2.5.2. Ultrasonik Sprey Piroliz (USP) ile Sprey Piroliz (SP) Yönteminin Karşılaştırılması

Ultrasonik Sprey Piroliz (USP), osilatör olarak adlandırılan bir ultrasonik güç vericisi ile püskürtülen damlacıkların termal olarak çöktürülmesiyle oluşan toz hazırlama yöntemidir. Bu yöntemin Sprey Piroliz (SP) yönteminden farkı, püskürtme başlığı olarak ultrasonik titreştiricili sprej başlığının kullanılmasıdır. Bu sistemde ağızlık, kendini çevreleyen havaya dağılmayacak şekilde bir püskürtme yapar. Bu teknik, ısıtılan altlık yüzeyine ultrasonik olarak püskürtülen parçacıkların çökeltilmesine dayanmaktadır. termal ayrışmasına bağlıdır. Diğer kaplama metotlarıyla

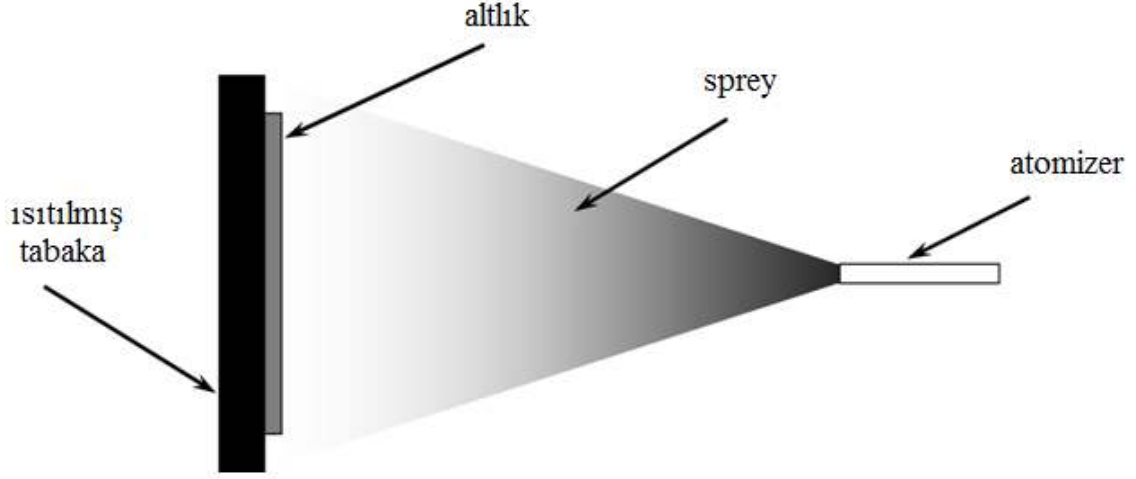
karşılaştırıldığında USP tekniği düşük donanım maliyeti, yüksek kaplama oranı ve geniş bölgeye iyi bir kalınlık homojenliği gibi avantajlara sahiptir. Bunun yanısıra, atmosfer şartlarına duyarlı olması ve sık sık pürüzlü yapılar elde edilebilmesi gibi dezavantajları da bulunmaktadır [77].

Bu yöntemin deneysel kurulumunda; bir başlangıç çözeltisi, ultrasonik nebulizer, hava desteği, boru şeklinde bir tüp ve ısıtılmış altlık yeterlidir. Şekil 2.14’ de görüldüğü gibi aerosol, ultrasonik nebulizerde hava desteği ile çökertilir [77].



Şekil 2.14. Ultrasonik Sprey Piroliz (USP) yönteminin şematik gösterimi [78].

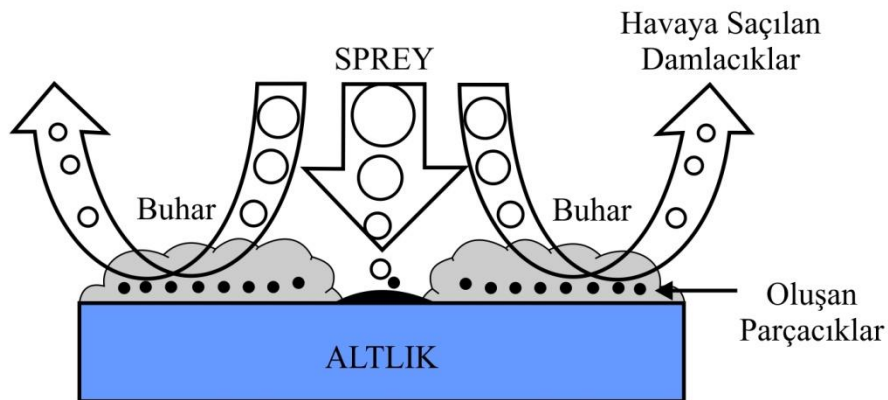
Sprey Piroliz (SP) yöntemi ise basit ve ekonomik olduğu için tercih edilmektedir. Metot, çok katmanlı filmler için kullanılabilmektedir. Sprey Piroliz yöntemi cam endüstrisinde ve güneş pili üretiminde yıllardır kullanılmaktadır. Temel olarak bu yöntemin çalışma prensibi, hazırlanan çözeltilerin ısıtılan altlık üzerine basınçlı azot gazı ya da hava yardımıyla püskürtülmesine dayanmaktadır, Şekil 2.15. Bu yöntemde püskürtme, payreks camdan veya paslanmaz metalden yapılmış atomizer ile yapılmaktadır.



Şekil 2.15. *Sprey Piroliz sisteminin şematik diyagramı [57].*

Sprey Piroliz (SP) tekniğinde filmin kalınlığı sprey ağızlığı ile altlık arasındaki uzaklığa, altlık sıcaklığına, kullanılan malzemenin konsantrasyonuna ve püskürtülen çözeltinin hacmine bağlıdır. Püskürtme yapılan altlığın ortasından kenarlarına doğru çöktürme kalınlığındaki değişim homojen olmayan mikro yapıya sebep olur. Bu yöntemle film kalınlığı, ağızlığın lineer olarak hareket ettirilmesiyle ya da altlığın döndürülmesiyle ayarlanabilmektedir.

Sprey Piroliz yönteminin kaplama mekanizması Şekil 2.16’ da gösterilmektedir. Bu yöntemde kaplama sadece yüzeye çarpan yüksek hızlı parçacıklardan oluşur. Bu adımda tanecik aerosolu, gaz ile altlık üzerine taşınmaktadır. Böylece film, parçacıkların altlık üzerine birikmesi ile kalınlaşır. Sprey Piroliz tekniğinde istenilen şey, değişmeyen boyutta parçacıklara sahip birden fazla aynı filmlerin kaplanmasıdır [79, 80].



Şekil 2.16 *Sprey Piroliz (SP) yönteminin kaplama mekanizması [79, 80].*

2.5.3. Ultrasonik Sprey Piroliz (USP) ile Elde Edilen Damlacık Oluşum Mekanizması

Aerosol damlacığının atomizer dalga yoluyla oluşma mekanizması üzerine birçok çalışma yapılmıştır. Atomizasyon işleminde ana mantık kullanılan atomizasyon cihazının temel işlevlerini anlamaktır. Özellikle hangi uygulama için hangi tür atomizerin en uygun olduğunu ve atomizerin performansının sıvının özelliklerinden ve işletim koşullarındaki değişkenlerden nasıl etkilendiğini bilmek önemlidir. Hava üfleme, ultrasonik ve elektrostatik atomizerler genellikle Ultrasonik Sprey Piroliz (USP) tekniğinde kullanılmaktadır [67].

İnce film oluşumunda sıvı, titreşen bir yüzey üzerinden akmasına izin verildiğinde ince damlalara ayrılır ve bu olay ultrasonik atomizasyon olarak bilinir [81, 82]. Yıllardır ultrasonik atomizasyon, elektronik uygulamalarda yüksek kalitede tozların üretimi için kullanılmaktadır. Bu yöntem, safsızlığı minimum düzeyde ve değişmeyen boyut-dağılımı fazla olan ürünler veren küresel biçimli tozların üretilmesine olanak sağlar [83].

Ultrasonik atomizasyon ve aerosol oluşumu akustik dalga belli bir genlik değerine sahip olduğunda meydana gelmektedir. Oluşan aerosolun ortalama damlacık boyutu gönderilen ultrasonik dalganın frekansından etkilendiği gibi çözeltinin özelliklerine de (viskozite, yüzey gerilimi, konsantrasyon, yoğunluk, vb.) bağlıdır. Ultrasonik nebulizer ile püskürtülen damlacıkların ortalama çapı;

$$D_d = 0.34 \left(\frac{8\pi\gamma}{\rho f^2} \right) \quad (2.15)$$

bağıntısı ile hesaplanabilmektedir [84, 85]. Burada D_d ; damlacık çapı, ρ ; çözeltinin yoğunluğu, γ ; çözeltinin yüzey gerilimi ve f ; uygulanan ultrasonik frekanstır.

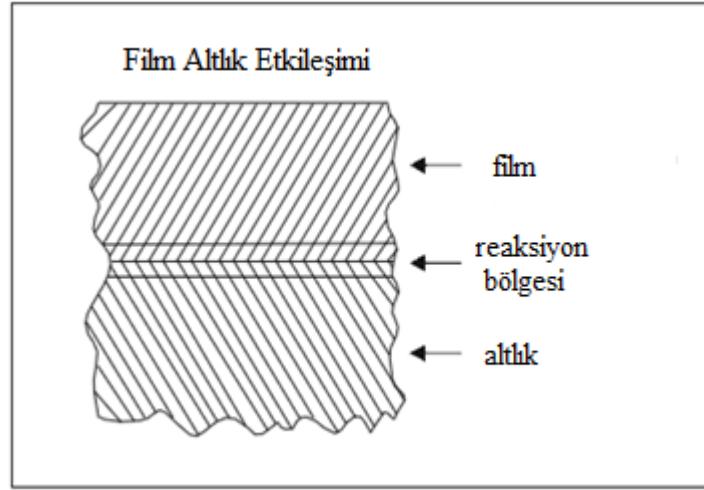
2.5.4. Oluşan Damlacıkların Özelliklerini Etkileyen Faktörler

Ultrasonik Sprey Piroliz (USP) tekniğinde oluşan ürünün boyutunu, morfolojisini ve yüzey özelliklerini etkileyen birçok parametre vardır. Bu parametreler; reaksiyon sıcaklığı, başlangıç çözeltisinin konsantrasyonu ve ultrasonik atomizer frekansı olarak sayılabilir. Bu parametreler değiştirilerek farklı özellikte ürünler elde etmek mümkündür. Bu parametreler arasında başlangıç çözeltisinin konsantrasyonu ve reaksiyon sıcaklığı mikro yapı üzerinde en önemli etkiye sahiptir [80].

Ultrasonik Sprey Piroliz (USP) tekniğinde buharlaşma ve çözülme dinamikleri, tamamen sıcaklığa dayalı olduğundan reaksiyon sıcaklığı önemli bir rol oynar. Reaksiyon sıcaklığının artmasıyla beraber ortalama tanecik boyutu ve tanecik boyut dağılımının azaldığı gözlenir. Bunun başlıca nedeni sıcaklığın artmasıyla ortaya çıkan hızlı genleşme ile partiküllerin çok küçük parçalara bölünebilmesidir [20]. Ürün oluşumunu etkileyen önemli parametrelerden biri de başlangıç çözeltisinin konsantrasyonudur. Partiküllerin üretimi üzerine yapılan çalışmalar çözelti konsantrasyonunun artmasının partikül boyutunda artışa sebep olduğunu göstermiştir. Buna karşın daha yüksek miktarda partikül üretmek için yüksek konsantrasyona sahip çözeltiler tercih edilmelidir. Aynı zamanda bu yöntemde ultrasonik atomizörün frekansı partikül boyutunu etkilemektedir. Ultrasonik frekansın artması ile partikül boyutu azalmaktadır [84].

2.6. İNCE FİLMLER İÇİN UYGUN ALTLIK SEÇİMİ

Altık seçimi, yüksek kalitede ince filmler üretmek için önemli bir parametredir. Bütün filmlerin kaplanması kaplama sonrası ısıtma işlemi gereklidir ve bu işlem sırasında film ile altık arasında etkileşim meydana gelir. Film ile altık arasındaki etkileşim, örgü uyumu ve film ile altığın termal genleşme katsayılarının uyumu olarak adlandırılmaktadır. Film ile altık arasındaki etkileşimin şematik gösterimi Şekil 2.17’de gösterilmiştir. Burada kaplama ve altıktan farklı yapıların oluştuğu bir reaksiyon bölgesi veya yeni yapıların oluşmadığı film ile altık arasında meydana gelen difüzyonun olduğu bir ara yüzey meydana gelmektedir. Yeni bölge, zaman ve sıcaklıkla büyümeye devam eder [34].



Şekil 2.17. Film ile altlık arasındaki etkileşimin şematik gösterimi [34].

Altlıkları belirlemedeki ilk iş, altlık ve filmin kimyasal açıdan uygun olup olmadığının belirlenmesidir. Aynı zamanda altlık, çökeltme sürecine ve filmlerin kullanım şartlarına da uygun olmalıdır. Altlık seçiminde bir diğer önemli nokta, film ile altlık arasındaki termal genleşme katsayıları arasındaki uyumdur. HT_c filmler ile altlık arasında iyi bir termal genleşme uyumunun olması filmin altlığa tutunması ve ısı işlem sırasında filmde çatlakların ortaya çıkmaması için çok önemlidir. Bu parametrelerin uyumu iyi olduğunda yüksek kalitede epitaksiyel büyümenin gerçekleşme olasılığı da artar. Altlık seçiminde göz önüne alınan diğer bir nokta da özellikle filmler, endüstride kullanılacaklarsa, fiyat ve ebat konusudur. HT_c süperiletken filmleri kaplamada bazı altlıkların kristal özellikleri Tablo 2.7’ de gösterilmiştir.

Tablo 2.7. Yaygın olarak kullanılan altlıkların kristal yapıları, ısı genleşme katsayıları ve dielektrik sabitleri [34].

Altlık	Kristal Yapısı	Örgü Sabitleri(Å)	Termal Genleşme Katsayısı (K ⁻¹)	Dielektrik Sabiti
SrTiO ₃	Kübik	3.905	10x10 ⁻⁶	180
Y-ZrO ₂	Kübik	5.16	10x10 ⁻⁶	7.8
MgO	Kübik	4.21	12x10 ⁻⁶	9.7
Si	Kübik	5.43	3x10 ⁻⁶	12
SiO ₂	Hegzagonal	4.91, 5.394	1x10 ⁻⁶	3.8
Al ₂ O ₃	Hegzagonal	4.76, 12.9	6x10 ⁻⁶	10.2
Gadolinyum	Kübik	12.383	8x10 ⁻⁶	15
MgAl ₂ O ₄	Kübik	8.085	8x10 ⁻⁶	—
LaGaO ₃	Ortonombik	5.52, 5.49, 7.77	—	27
LiNbO ₃	Hegzagonal	5.15, 13.86	—	—

Bi-bazlı süperiletken filmleri büyütmede YSZ (Yttrium Stabilized Zirconia), SrTiO₃, LaAlO₃, BeO ve MgO (001) gibi tek kristalli altlıkların farklı türleri şimdiye kadar çeşitli araştırmacılar tarafından kullanılmıştır. Bu altlıkların örgü parametrelerine göre, termal genleşme katsayıları ve sentezlenmiş Bi-bazlı filmlerin en iyi elektrik özellikleri SrTiO₃, LaAlO₃ ve MgO altlıkları en uygun olanlarıdır [86].

2.7. ULTRASONİK SPREY PİROLİZ (USP) YÖNTEMİ İLE YAPILAN ÇALIŞMALAR

Nano-boyutta toz üreten metodlarından bir tanesi “Ultrasonik Sprey Piroiliz (USP)” metodudur. USP metodu maliyet açısından diğer metodlara kıyasla çok düşük, hata yapılması durumunda telafi edilmesi oldukça kolay, büyük ölçekte üretimi mümkün, homojen, küresel ve mikro/nano-boyutta dağılıma sahip seramik tozların elde edilmesine imkan sağlayan bir metot olarak son yıllarda çalışılmaktadır. Bu anlamda yapılan çalışmalardan bazıları aşağıda özetlenmiştir.

R.L. Henry vd. [87] sulu nitrat çözeltilerinden MgO altlıklar üzerine $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$, $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}\text{Ag}$ ve $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ ince filmleri spreylendirilmiştir. 300 °C ile 875 °C aralığındaki altlık sıcaklıklarının etkileri araştırılmıştır. Kaplama sonrasında filmler oksijen ortamında $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ için 850 °C’ de ve $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ için ise 960 °C’ de tavlansmıştır. $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}\text{Ag}$ ’ nin birim hücre parametresi $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ ’ nin birim hücre parametresi ile yaklaşık aynı değerde bulunmuştur, fakat $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}\text{Ag}$ ’ nin XRD deseninde (001) yansımalarının büyük ölçüde genişlediği gözlenmiştir. $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}\text{Ag}$ filminin çok küçük 81 K’ de T_c ’ ye ve $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ filminin ise 74 K’ de T_c ’ ye sahip olduğu bulunmuştur. Üretilen filmlerin kalınlık değerlerinin 3-8 µm arasında olduğu bulunmuştur. Çok fazlı olan $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ filmler çok geniş ΔT_c ’ ye sahip olup T_c değeri 65 K olarak belirlenmiştir.

M. Jergel vd. [88] USP yöntemi ile BSCCO-2212 ince filmleri hazırlamışlardır. MgO altlık üzerine ilk kaplama yaklaşık 150 °C’ de uygulanmış daha sonra $T > 800$ °C’ de ısıtılma işlemi tabi tutularak iki adımda büyütme gerçekleştirilmiştir. Elde edilen filmlerin 3-5 µm kalınlığında olduğu tespit edilmiştir. Filmlerin J_c değerleri 10^3 - 10^4 Acm^{-2} olarak bulunmuştur. Aerosol ile kaplama süresince termal ayrışmanın temelleri ve tek bileşenlerin stokiometrik karışımları tartışılmıştır. Kaplama sırasında düşük altlık sıcaklığının düşük J_c değerine sebep olduğu belirlenmiştir.

D.L. Schultz vd. [89] spreylendirilme tekniği ile TBCCO-1223 filmlerini hazırlamışlardır. Bu filmler 4-6 µm boyutunda precursor toz ($\text{Pb}_{0.46}\text{Ba}_{0.4}\text{Sr}_{1.52}\text{Ca}_{1.86}\text{Cu}_3\text{O}_x$) elde edilerek hazırlanmıştır. Bu karışım hava boya tabancası ile ısıtılan (80-100 °C) altlık üzerine püskürtülmüştür. Organik bileşikleri ortadan kaldırmak için örnek, oksijen ortamında 700-800 °C’ de 60-75 dk tavlansmıştır. Filmler talyum oksit kaynağı için 770 °C’ de ve precursor için 931 °C’ de 120 dk süresince sinterlenmiştir. J_c değerleri 0 T, 5 K’ de 9×10^6 Acm^{-2} ve 4.75 T, 5 K’ de 2×10^6 Acm^{-2} olarak hesaplanmıştır.

M. Jergel [61] yüksek sıcaklık (YBCO, BSCCO ve TBCCO) süperiletken filmleri sprey piroliz yöntemi ile üretmişlerdir. Bu çalışmada kaplama tekniği kadar kaplama sürecinin bazı detayları da verilmiştir. Yüksek sıcaklık, yüksek akım ve yüksek alan uygulamaları için en uygun filmlerin YSZ altlıklar üzerine üretilen TBCCO-1223 filmler olduğu belirlenmiştir. Bu filmlerin 104-107 K' de T_c değerine ve 0 T' da 77 K' de $1.1 \times 10^5 \text{ Acm}^{-2}$, 2 T' da 60 K' de 10^4 Acm^{-2} , 9 T' da 4.2 K' de 10^5 Acm^{-2} J_c değerlerine sahip olduğu bulunmuştur.

K. Konstantinov vd. [90] tarafından polikristal oksit filmler Al_2O_3 altlıklar üzerine sprey piroliz yöntemi ile kaplanmıştır. İlk püskürtme çözeltisinde atomik oran Bi:Pb:Sr:Ca:Cu = 1.6:0.4:2:2:3' dür. Filmlerin püskürtmeden sonra farklı sıcaklıklarda ve sabit sıcaklıkta farklı sürelerde tavlandıktan sonra hazırlama yönteminin farklı adımlarında EDX ve ICP-AES analizleri ile kimyasal kompozisyonları araştırılmıştır. Elde edilen sonuçlardan katyonların konsantrasyon değişiklerinin etki ettiği belirlenmiştir.

H.K. Singh vd. [91] tarafından USP yöntemi ile MgO altlıklar üzerine Cd katkılı Tl-2223 ince filmleri hazırlanmıştır. Filmlerin sentezlenmesi süresince oksijen kullanılmamıştır, ki bu alelade hazırlama proseslerinden farklıdır. Cd katkısı Tl-2223 fazının büyümesine ve T_c ' nin artmasına neden olmuştur. Filmlerin T_c değerleri katkılanmaya bağlı olarak 118 K ile 124 K arasında bulunmuştur. En yüksek J_c değerinin 77 K' de 0 T' da $1.12 \times 10^5 \text{ Acm}^{-2}$ olduğu belirlenmiştir. Bu filmlerin yüzey morfolojisi levha şeklinde kristal büyümesinin olduğunu ortaya koymuştur.

R. Abraham vd. [92] USP yöntemi ile $\text{Tl}_{0.5}\text{Pb}_{0.5}\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$ HT_c sistemini hazırlamışlardır. Her ne kadar ayrışma sıcaklığı ($\sim 650^\circ\text{C}$) çok düşük olsa da püskürtme ve ısıtım işlem sırasında bir miktar talyum oksit kaybının olduğu bulunmuştur. Deney şartlarına bağlı olarak tanecik morfolojisi karnabahar şeklinde olmuştur. (Tl/Pb)-Sr-1212 oldukça kararlı bir faz olarak ortaya çıkmıştır. T_c değeri bütün örneklerde 80 K civarında elde edilmiştir.

L. Mancic vd. [93] USP yöntemi ile Bi-Pb-Sr-Ca-Cu-O sisteminin oluşumuna ürenin etkisini araştırmışlardır. Saf precursor çözeltisinden elde edilen toz ile üretilen precursor çözeltisinden elde edilen tozların özelliklerinin farkları DSC, SEM-EDS ile incelenmiştir. Precursor çözeltilerinde ürenin varlığının daha fazla faz geçişi sağladığı, ortalama tanecik büyüklüğünü düşürdüğü ve homojenliği geliştirdiği belirlenmiştir.

H.K. Singh vd. [94] USP yöntemi ile Tl-2223 filmleri hazırlamışlardır. Filmler 650 °C’ de yüksek vakumda ısıtılma işlemine tabi tutulmuştur. Buradan, Tl-2223 fazının büyümesi için oksijen ortamının gereksiz olduğu sonucuna ulaşılmıştır. Filmlerin T_c değerinin 123 K olduğu bulunmuştur. 0 T manyetik alanda ve 77 K sıcaklıkta J_c değeri $1.2 \times 10^5 \text{ Acm}^{-2}$ den büyük bulunmuştur. Sisteme Ag katkılanması yapıldığında J_c değerinin %25 arttığı belirlenmiştir. Ag katkılı örneklerin yüzey morfolojilerinin rastgele yönelmiş levha şeklinde kristallerden oluştuğu görülmüştür.

J.L.M. Driscoll vd [95] USP tekniği ile MgO ve Al_2O_3 altlıklar ve polikristal Ag üzerinde $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ kalın filmleri hazırlamışlardır. Optimum şartlarda elde edilen filmlerin 95 K’ de T_c ’ ye sahip olduğu bulunmuştur. “Manyetik uzunluk ölçek” ölçümleri ile filmlerdeki tanecikler arası bağlanmanın iyi olduğu bulunmuştur. 77 K’ de $1.0 \times 10^4 \text{ Acm}^{-2}$ ve 20 K’ de $5 \times 10^5 \text{ Acm}^{-2}$ değerleri elde edilmiştir. Çözelti konsantrasyonu düşürülerek T_c ve J_c ’ nin artması sağlanmıştır.

A. Ferreri vd [96], USP yöntemi ile LaAlO_3 (100) altlık üzerine $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ kalın filmleri hazırlamışlardır ve tavlama sıcaklığının filmlerin özelliklerine etkileri incelenmiştir. Y:Ba:Cu (1:2:0.6) oranındaki nitrat precursorler ile 900 °C kaplama sıcaklığı ve 500 °C tavlama sıcaklığı kullanılmıştır. Filmlerin T_c ve T_0 sıcaklıkları sırasıyla ~96 K ve ~86 K olarak elde edilmiştir. J_c değerleri ise 77 K’ de 1 T manyetik alan altında $>10^4 \text{ Acm}^{-2}$ olarak bulunmuştur.

A. Ferreri vd [97], USP yöntemi ile tek kristal LaAlO_3 (100) altlık üzerine in-situ $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ kalın filmleri hazırlamışlardır. Çalışmada nitrat konsantrasyonunun filmlerin özellikleri üzerine etkileri araştırılmıştır. Yaklaşık 900°C büyüme sıcaklığı, 0.7 ile $1\ \mu\text{m/dk}$ aralığında değişen oranda değişen püskürtme hızı kullanılmıştır. Bu şekilde $3\ \mu\text{m}$ kalınlığında ve epitaksiyel olarak büyütülmüş filmler elde edilmiştir. Filmlerin T_c ve T_0 sıcaklıkları sırasıyla $\sim 91\ \text{K}$ ve $\sim 85\ \text{K}$ olarak bulunmuştur. J_c değerleri ise $77\ \text{K}'$ de $1\ \text{T}$ manyetik alan altında $>10^4\ \text{Acm}^{-2}$ olarak bulunmuştur.

T.C. Shields vd [98] USP yöntemi ile tek adımda tek kristal SrTiO_3 (100) üzerinde in-situ $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ filmler üretmişlerdir. 800°C ile 900°C arasındaki sıcaklıklarda film büyümesi gerçekleştirilmiştir. AC manyetik alınganlık ölçümleri filmlerde herhangi bir oksitleme işlemine gerek olmadığını göstermiştir. T_c değeri $90\ \text{K}'$ de elde edilmiştir. Manyeto-optik görüntüleme çalışmaları filmlerde taneciklerin homojen, sıkı bağlı olduğunu ancak yer yer çatlakların oluştuğunu ortaya koymuştur. J_c değeri $77\ \text{K}'$ de $0\ \text{T}$ manyetik alan altında $1.9 \times 10^5\ \text{Acm}^{-2}$ olarak hesaplanmıştır.

S. Phok vd. [99] USP yöntemi kullanarak MgO ve LaAlO altlıklar üzerinde Tl-1223 ve $(\text{Hg,Re})\text{-1223}$ filmlerini hazırlamışlardır. Filmlerin kalınlıkları 0.35 ile $2\ \mu\text{m}$ kalınlığında ölçülmüştür. Filmlerin c-ekseninde yöneldikleri belirlenmiştir. Tl-1223 ve $(\text{Hg,Re})\text{-1223}$ filmlerin T_c değerleri sırasıyla $110\ \text{K}$ ve $134\ \text{K}$ olarak bulunmuştur. J_c değeri $77\ \text{K}'$ de $7.5 \times 10^5\ \text{Acm}^{-2}$ ve $1.6 \times 10^6\ \text{Acm}^{-2}$ olarak hesaplanmıştır olarak belirlenmiştir.

A. Ferreri vd. [100], USP yöntemi ile tek kristal SrTiO_3 (100) üzerinde $1\ \mu\text{m}$ kalınlıklı $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ filmler üretmişlerdir. Oldukça yoğun precursor çözeltisinin kaplanması ile bu iletkenlerin geliştiğini gözlemişlerdir. Filmlerin J_c değeri $77\ \text{K}'$ de $5 \times 10^5\ \text{Acm}^{-2}$ olarak elde edilmiştir.

K.T. Wojcienchowski vd. [101] USP yöntemini nano-kristaller veya şekilsiz fazları içeren biçimde metalik ve seramik malzemeleri hazırlamada kullanmışlardır. Bu tekniğin çok ince duvarlara sahip ince-boş küresel tanecikler hazırlamak için kullanılabileceği ve geniş aralıkta precursorlerin kullanımına izin verdiği sonucuna ulaşılmıştır. Elde edilen seramik tozların altlıklar ile uyum içerisinde olduğu görülmüştür.

M. Liu vd. [102] tamamen laboratuarda dizayn edilmiş USP yöntemi ile Ag altlıklar üzerinde YBCO şeritler hazırlamışlardır. Şeritlerin J_c değeri 10^3 Acm^{-2} olarak bulunmuştur. Metal bileşenlerin tam kontrolü, yüksek kaplama oranı ve düşük maliyetli, vakumsuz metot olduğundan USP yöntemi gelecek vadeden bir metot olduğu belirtilmiştir.

L. Min vd. [103] USP yöntemi ile 15 cm uzunluğunda YBCO süperiletken şeritleri kaplamışlardır. 700°C ' de 15 dakika süresince yapılan kaplama YBCO filmlere bağlanabilirliği ve yüzey morfolojisini geliştirmiştir. Kaplama ile Ag altlığın dağılması ve buharlaşmasının önüne geçilmiş dolayısı ile YBCO filmlerin süperiletken özellikleri araştırılabilmiştir. J_c değeri 10^4 Acm^{-2} olarak bulunmuştur.

J. Yoo vd. [104] USP yöntemi ile BSCCO nano-tozlarını hazırlamışlardır. BSCCO sisteminin metal tuz çözeltisi hazırlanmış ve 2.4 MHz de çalışan ultrasonik nebulizer ile $1 \mu\text{m}$ ' den daha düşük boyutta BSCCO tanecikleri elde edilmiştir. T_c değerinin 100 K civarında olduğu ve taşıyıcı akım yoğunluğunun 25 kAcm^{-2} olduğu belirlenmiştir.

A. Kumar vd. [66] USP yöntemini kullanarak çeşitli altlıklar üzerinde $\sim 10 \mu\text{m}$ kalınlığında $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ ve $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$ süperiletken filmlerini hazırlamışlardır. Filmlerin c-ekseni boyunca yöneldiği belirlenmiştir. Altlıklar hem $<500^\circ\text{C}$ düşük sıcaklıklarda hem de $550-900^\circ\text{C}$ yüksek sıcaklıklarda tutularak kaplama gerçekleştirilmiştir. Filmlerin süperiletkenlik özellikleri, püskürtme çözelti konsantrasyonu, kaplama sıcaklığı, altlıklar ve tavlama süreci değiştirilerek incelenmiştir. En yüksek T_c sıcaklığı 89 K ' de ve T_0 sıcaklığı ise 77 K ' de elde edilmiştir. En yüksek J_c değerlerinin ise 77 K ' de $\sim 4 \times 10^4 \text{ Acm}^{-2}$ ve 20 K ' de $\sim 10^4 \text{ Acm}^{-2}$ olduğu bulunmuştur.

Z.D. Yakinci vd. [105] USP tekniğini kullanarak Al_2O_3 (001) altlıklar üzerinde 350-1150 nm kalınlığında MgB_2 filmleri hazırlamışlardır. En iyi T_c ve T_0 değerleri sırasıyla 39.5 K ve 38 K olarak bulunmuştur ve film kalınlığı ile bu değerlerin azaldığı belirlenmiştir. Üretilen filmlerin J_c değerlerinin de film kalınlığına bağlı olduğu görülmüştür. Maksimum J_c değeri 1150 nm kalınlığındaki filmler için 10 K' de ve 0 T' da $3.18 \times 10^6 \text{ Acm}^{-2}$ olarak hesaplanmıştır.

Z.D. Yakinci ve. [106] USP yöntemi ile nano boyutta Mg ve B tozları elde etmişler. Bu tozları kullanarak MgO (100) ve Al_2O_3 altlıklar üzerine kaplamışlardır. In-situ ısıtma sürecinden sonra ~600-1000 nm kalınlığında süperiletken filmler elde edilmiştir. MgB_2 filmlerin süperiletkenlik özellikleri üzerine tavlama sıcaklığının, püskürtme süresinin ve parçacık konsantrasyonunun etkileri incelenmiştir. Al_2O_3 altlık üzerinde büyütülmüş MgB_2 film için T_c ve T_0 değerleri sırasıyla 39.5 K ve 37.4 K olarak elde edilmiştir. Yine Al_2O_3 altlık için J_c değerinin 10 K' de 0 T' da $4 \times 10^6 \text{ Acm}^{-2}$ olduğu bulunmuştur. Elde edilen sonuçlar filmlerin süperiletkenlik özelliklerinin çözeltide parçacık konsantrasyonuna, altlık sıcaklığına ve püskürtme sırasındaki taşıyıcı gaz hızına oldukça bağlı olduğu bulunmuştur.

M.E. Yakinci vd. [107] USP tekniği kullanılarak MgB_2 ince filmler hazırlamışlardır. Çalışmada 2.4 MHz çalışma frekansı ile farklı konsantrasyonlarda Mg, B, saf su ve LAPSA konsantrasyonlarını içeren çeşitli çözeltiler ve gaz atmosferi kullanılmış ve 500 nm ile 1 μm kalınlığında filmler elde edilmiştir. Ex-situ olarak hazırlanan filmler için T_c ve T_0 değerleri sırasıyla 39.5 K ve 37.4 K ve in-situ olarak hazırlanan filmler için ise 39.5 K ve 37 K olarak elde edilmiştir. Ex-situ olarak hazırlanan filmler için J_c ' nin $4.12 \times 10^6 \text{ Acm}^{-2}$ ve in-situ olarak hazırlanan filmler için ise $4.01 \times 10^6 \text{ Acm}^{-2}$ olduğu belirlenmiştir.

3. MATERYAL VE YÖNTEM

3.1. Yüksek Sıcaklık (HT_c) Süperiletkenlerin Hazırlama Yöntemleri

Yüksek sıcaklık süperiletken malzemeleri hazırlama yöntemleri üretilen örneklerin özelliklerini doğrudan etkilemektedir. Kaliteli süperiletken örnekler elde etmek için sıcaklık ve zamanın dikkatli seçilmesi, malzemenin ısıl işleme tabi tutulduğu ortamdaki kısmi oksijen basıncının bilinmesi, tanecik boyutları ve peletleme işlemi gibi faktörler oldukça önemlidir.

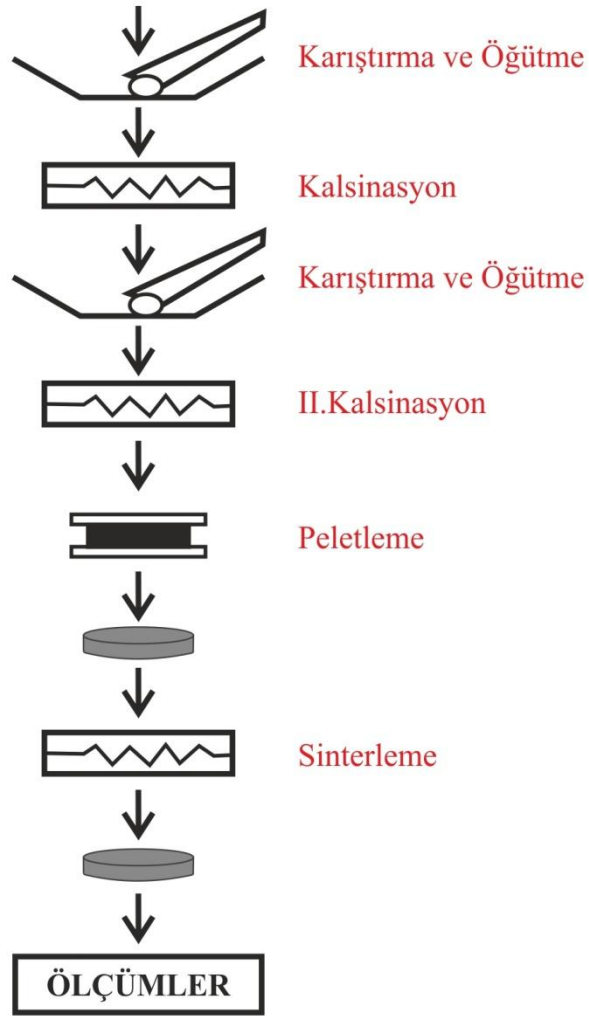
HT_c süperiletkenler amaca yönelik olarak değişik yöntemlerle hazırlanabilmektedir. Bu yöntemlerin en yaygın kullanılanları katıhal reaksiyon yöntemi, sol-jel yöntemi ve cam-seramik yöntemidir. Bu yöntemlerin ortak hedefleri ise küçük parçacık boyutuna sahip istenilen stokiyometride homojen örneklerin elde edilmesidir. Aynı zamanda bu hazırlama yöntemleri süperiletken malzemelerin kalitesi ve daha iyi fiziksel özellikler (yapısal kararlılık, yüksek T_c ve J_c) açısından da oldukça önemlidir [54].

3.1.1. Katıhal Reaksiyon Yöntemi

HT_c süperiletkenleri hazırlamada en basit ve yaygın olarak kullanılan bu yöntem öğütme, kalsinasyon ve sinterleme adımlarını içeren bir yöntemdir.

Bu yöntem ile tozlardaki istenmeyen fazların oluşumunu mümkün olduğu kadar azaltarak homojenlik sağlanır. Bu metotta oksit bileşikler istenilen atomik oranlarda tartılarak iyice karıştırılır. Karışım, süperiletkenin cinsine bağlı olarak uzun zaman aralığında yüksek sıcaklıklarda kalsinasyon işlemine tabi tutulur. Kalsinasyon işleminin amacı, öğütme sırasında toz karışım içerisine giren yabancı maddelerin ve oksitlerin sıcaklıkla ayrışmasını sağlamaktır. Daha sonra numune soğutulur, tekrar öğütülür ve yeniden kalsinasyon işlemi yapılır. Bu işlem istenilen kompozisyona ulaşmak için birkaç kez tekrarlanabilir. Daha sonra öğütülmüş ince toz numune uygun basınç altında pelet haline getirilir. Numunenin cinsine bağlı olarak değişik atmosferler altında belirlenen sürelerde peletler ısıl işleme (sinterleme) tabi tutulur. Bu ısıl işlem sonunda çatlaklar ve dislokasyonların oluşmaması için numune yavaşça soğutulmalıdır. Bu yöntemde sıcaklık, tavlama zamanı, atmosfer ve soğutma oranı gibi faktörler kaliteli bir süperiletken elde etmek için önemli rol oynamaktadır.

Bi_2O_3 , SrCO_3 , CaCO_3 ve CuO



Şekil 3.1. BSCCO malzemesini üretmek için uygulanan katıhal reaksiyon yöntemi basamakları.

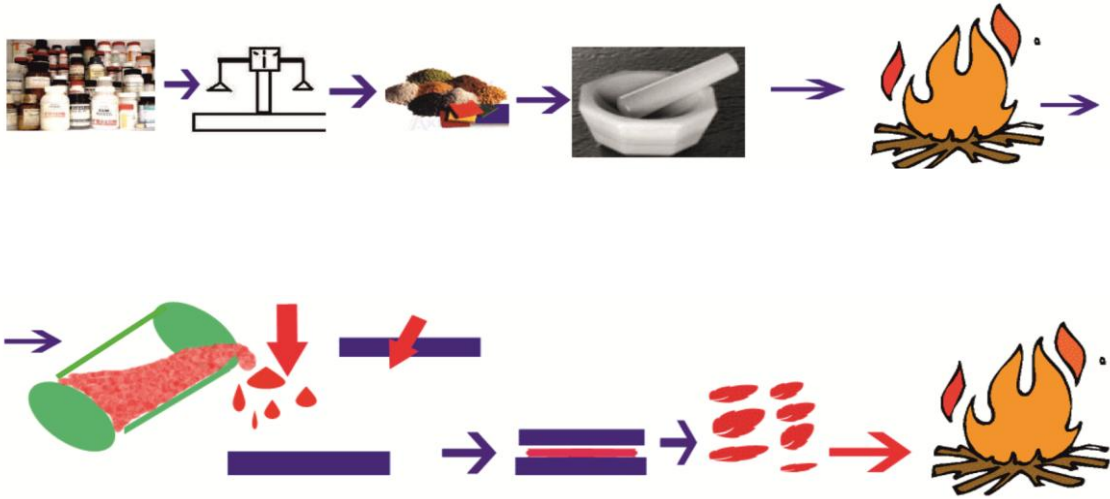
3.1.2. Sol-Jel Yöntemi

Diğer yöntemlere göre daha az kullanılan ve son yıllarda bilinen seramik süperiletken hazırlama yöntemlerine alternatif olarak ortaya çıkmış bir metottur. Sol-jel yönteminde numune hazırlama birkaç aşamada gerçekleşir: İlk olarak başlangıç nitratları veya asetatları istenilen atomik oranlarda 2-10 saat arasında karıştırılır ve 60-120 °C' de ısıtılma tabi tutulur. Elde edilen yapı viskoz halde sol şeklindedir. Daha sonra bu sol 90-150 °C' ye ısıtılır ve yavaş yavaş soğutularak jel elde edilir.

Bu yöntemin sonucu olarak istenilen boyutta parçacık büyüklüğü elde edilebilir. 250-500 °C sıcaklığında 10 dk-5saat ısıtım işlemi uygulanarak numunede kalan su, asetatlar ve nitratlar ayrılır ve yüksek sıcaklıklarda ısıtım işlemleri ile süperiletken faz elde edilir. Bu metodun homojen, ince tane ve kısa işlem süresi gibi avantajları vardır.

3.1.3. Cam-Seramik Yöntemi

Süperiletken elde etme yöntemlerinden bir diğeri cam-seramik yöntemidir. Diğer yöntemlerde olduğu gibi istenilen stokiometrik oranlarda tartılan başlangıç tozları karıştırılıp öğütülür. Elde edilen karışım eritme potasına konularak 2-3 saat aralığında 1050-1250 °C sıcaklıkta eritme işlemi uygulanır. Daha sonra eriyik çok kısa bir sürede daha önceden soğutulmuş metal bir plaka üzerine (genellikle bakır plaka) dökülür ve ikinci bir soğuk plaka ile üzerine bastırılarak ani soğutma gerçekleştirilir. Böylece çok ince tabakalar şeklinde cam (amorf) malzemeler elde edilmiş olur. Bu malzemeler belli bir sıcaklıkta ve sürede ısıtım işlemine tabi tutularak süperiletken hale getirilir. Bu yöntem ile oldukça yoğun ve istenilen büyüklük ve geometrik şekilde malzemeler üretilmektedir.



Şekil 3.2. BSCCO malzemesini üretmek için uygulanan cam-seramik yöntemi basamakları.

3.2. TEZ KAPSAMINDAKİ NUMUNELERİN HAZIRLANMASI

Yaptığımız çalışmalarda Ultrasonik Sprey Piroliz (USP) tekniğini kullanarak tek kristal SrTiO_3 ve MgO (100) altlıklar üzerinde filmler elde edilmiştir.

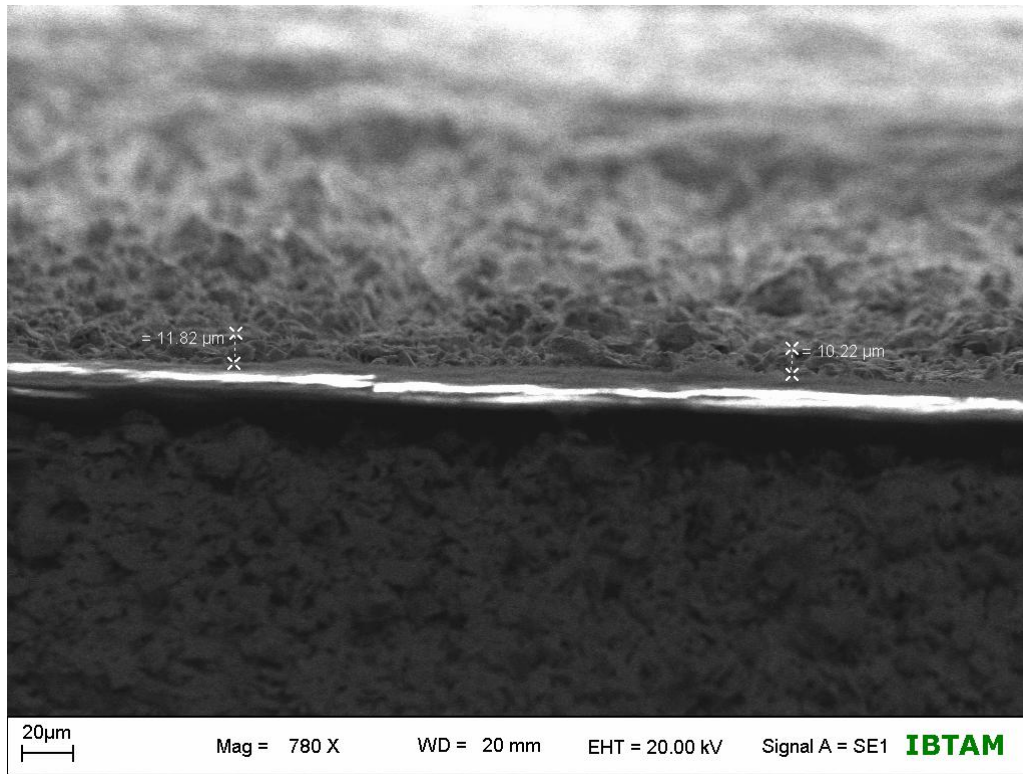
Başlangıç kompozisyonu olan $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+\delta}$ sistemini elde etmek için yüksek saflıkta (% 99.9) Bi_2O_3 , SrCO_3 , CaCO_3 ve CuO tozları uygun stokiometrik oranlarda tartıldı ve bir agad havanda 4-5 saat süre ile oda sıcaklığında iyice karıştırıldı. Daha sonra karışım bir $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ (alimüna) potaya konularak yüksek sıcaklık eritme fırınına yerleştirildi. Fırın 750°C 'ye ayarlandı ve bu sıcaklığa sabit $10^\circ\text{C}/\text{dk}$ ısıtma hızı ile çıkıldı. Karışım bu sıcaklıkta 24 saat tutularak ilk kalsinasyon işlemi yapıldı. Daha sonra numune soğutulup tekrar öğütüldü ve 830°C 'de 24 saat süreyle ikinci kalsinasyon işlemi yapıldı. Bu işlemler ile öğütme sırasında toz karışım içerisine giren yabancı maddelerin, oksit ve karbondioksitlerin sıcaklıkla ayrışması sağlandı. Numune tekrar soğutulup öğütüldü ve 850°C 'de 200 saat ısıtma işlemi yapıldı. Böylece ham tozlar üretilmiş oldu. Daha sonra karışım Ball Milling (Retsch MM 400) cihazı ile 14.0 Hz 'de 40 dakika öğütüldü ve böylece daha ince tozlar elde edildi. Elde edilen tozun 2 gramı ile 23.6 ml etanol, manyetik karıştırıcı yardımı ile 1 saat karıştırıldı.

Tek kristal MgO (100) ve SrTiO_3 altlıklar alkol ve aseton ile temizlendi ve kurutuldu. Elde edilen homojen çözelti nebulizer sisteminde $\sim 2.5\text{ MHz}$ frekansında ultrasonik olarak titreştirilerek sıvı bulutu haline getirildi ve temizlenen MgO (100) ve SrTiO_3 altlık üzerine 10 dk süre ile düşürüldü. Bu işlemde altlıklar her kaplamada çıkartılıp kurutma işlemine tabi tutuldu. Aynı anda püskürtme yapılan SrTiO_3 ve MgO (100) altlıklar üzerine beş kez kaplama işlemi yapıldı. MgO (100) ve SrTiO_3 altlıklı filmlere ait aynı ısıtma şartları Tablo 3.1'de verilmektedir. Elde ettiğimiz MgO (100) ve SrTiO_3 altlıklar üzerine kaplanan filmlerin kalınlıkları filmlerin kesitten görüntüleri alınarak belirlenmiştir. 870°C 'de 120 dk ısıtma işlemi görmüş MgO (100) altlık üzerinde üretilen filmin (BiMg-4) kesit görüntüsü Şekil 3.3'de ve 870°C 'de 120 dk ısıtma işlemi görmüş SrTiO_3 altlık üzerinde üretilen filmin (BiSr-4) kesit görüntüsü Şekil 3.4'de gösterilmektedir.

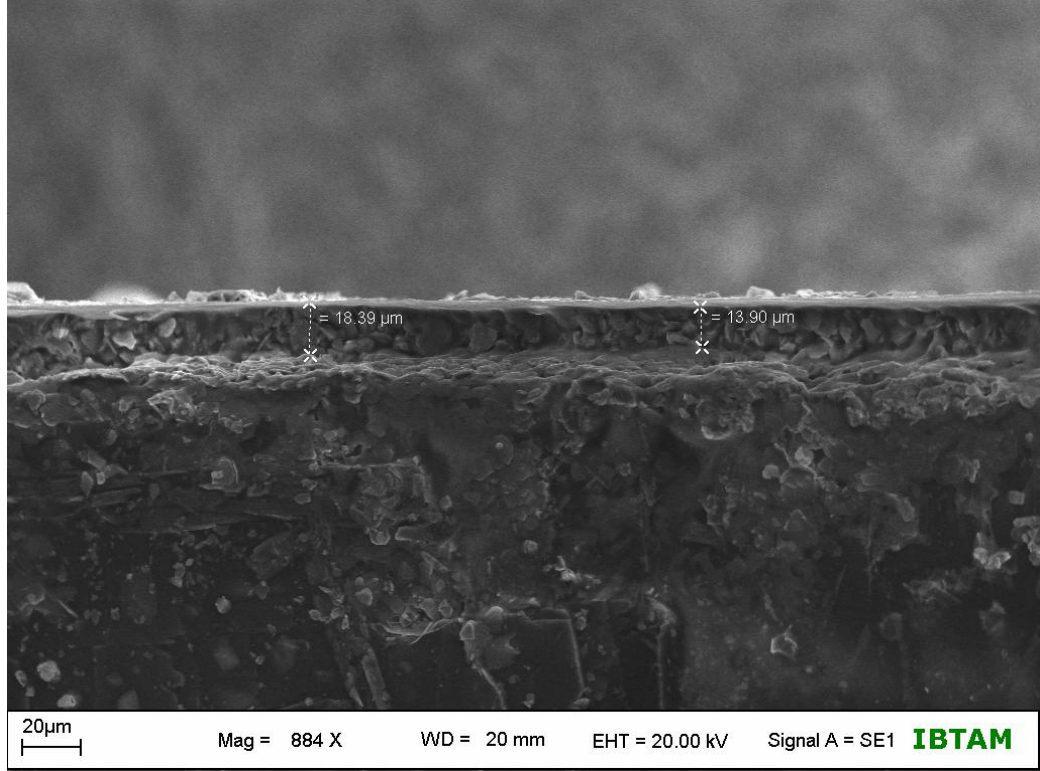
Üretilen filmlerin fiziksel, elektriksel ve manyetik karakterizasyonları, taramalı elektron mikroskobu (SEM), X-ışını kırınımı (XRD), enerji dispersive x-ışını (EDX) analizi, direnç-sıcaklık (R-T), manyetizasyon (M-H, M-T) kullanılarak karakterizasyonları yapıldı.

Tablo 3.1. Deney sırasında kullanılan ısıt ışılem ışıletleri.

Film	Altık	Isıl ışılet Sıcaklıđı	Bekleme Süresi	Film Kalınlıđı
BiSr-1	SrTiO ₃	870 °C	30 dk	16 µm
BiMg-1	MgO	870 °C	30 dk	11 µm
BiSr-2	SrTiO ₃	870 °C	30 dk+30 dk	21 µm
BiMg-2	MgO	870 °C	30 dk+30 dk	18 µm
BiSr-3	SrTiO ₃	870 °C	75 dk	12 µm
BiMg-3	MgO	870 °C	75 dk	19 µm
BiSr-4	SrTiO ₃	870 °C	120 dk	9.5 µm
BiMg-4	MgO	870 °C	120 dk	18 µm



Şekil 3.3. 870 °C' de 120 dk ısıt ışılet görmüş MgO altık üzerinde üretilen filmin (BiMg-4) kesit görüntüsü.



Şekil 3.4. 870°C ' de 120 dk ısıtılma işlemi görmüş SrTiO_3 altlık üzerinde üretilen filmin (BiSr-4) kesit görüntüsü.

3.3. X-Işını Kırınımı (XRD)

X-ışını kırınımı (XRD) analizi kristal yapıların incelenmesinde ve kristal fazların belirlenmesinde oldukça kullanışlı bir metottur. XRD analizleri sadece kristal numunelerdeki fazları, kristal yapıyı ve birim hücre parametrelerini belirlemek için değil aynı zamanda malzemelerin amorf olup olmadıklarının belirlenmesinde de kullanılmaktadır. Bu yöntemin temeli Bragg yansımasına dayanır. Gönderilen x-ışını örnek üzerinden yansır ve bir dedektör yardımıyla algılanan ışın bilgisayar programına aktararak yansıma şiddetine karşılık 2θ grafiği çizilir.

X-ışınları analizleri $\text{CuK}\alpha$ ($\lambda=1.5405 \text{ \AA}$) radyasyonu kullanılarak “Rigaku RadB-DMAX-11” bilgisayar kontrollü X-ışını difraktometrisi ile gerçekleştirilmiş ve kristal yapı analizleri “Jade 6.0+Crystal Refinement” programında bulunan referans verilerle karşılaştırılarak yapılmıştır. Bütün ölçümler $2\theta=3-80^{\circ}$ aralığında $3^{\circ}/\text{dk}$ sabit hızda alınmıştır.

3.4. Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM) ve Enerji Dağılımlı X-ışını (EDX) Analizi

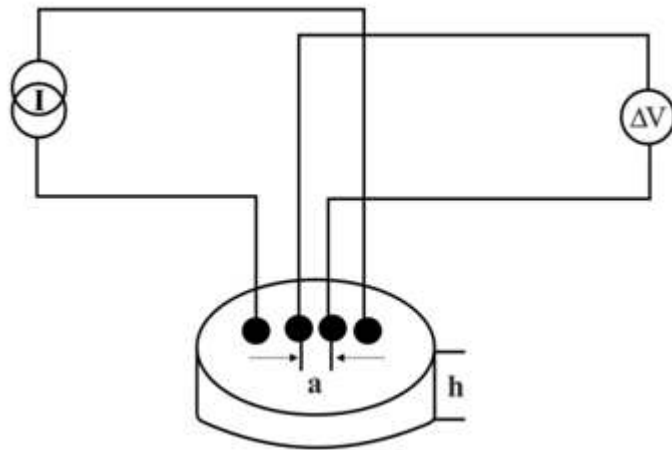
Taramalı elektron mikroskobu yüksek voltaj ile hızlandırılmış elektronların malzeme yüzeyine çarptırılıp yansıması prensibine dayanmaktadır. Bu yansıyan elektronlar ve buna bağlı olarak ortaya çıkan x-ışınları kullanılarak değişik mikro yapı analizleri gerçekleştirilebilmektedir.

Üretilen filmlerin yüzey morfolojisi ve elementel analizleri taramalı elektron mikroskobu (SEM) ve enerji dağılımlı x-ışını (EDX) spektrometresi kullanılarak yapılmıştır. SEM görüntüleri, “LeO Evo-40xVP” model taramalı elektron mikroskobu kullanılarak alınmıştır. Elementel analizler Bruker 125 eV dedektöre sahip “Quantax” marka EDX ile gerçekleştirildi.

3.5. Elektriksel Direnç Ölçümleri (R-T)

Üretilen filmlerin direnç ölçümleri (R-T) sıcaklığın bir fonksiyonu olarak elektriksel dirençteki değişim ile gerçekleştirilmiştir.

Malzemelerin dirençleri “Leybold LT-10” model kapalı devre He soğutucu ünitesi ve cryostat sistemi kullanılarak ölçülmüştür. Ölçümler 25-290 K aralığında alınmıştır ve kontaklar dört nokta kontak yöntemi kullanılarak yüksek iletkenliğe sahip gümüş boya ile yapılmıştır, Şekil 3.5.



Şekil 3.5. Dört nokta kontak ölçüm tekniği. Burada a , kontak mesafesi ve h numune kalınlığıdır [108].

3.6. Manyetik Ölçümler (M-H, M-T)

Hazırlanan filmlerin M-H ve M-T ölçümleri, Fiziksel özellikler ölçüm sistemi, Quantum design-9T (PPMS)” sistemi kullanılarak gerçekleştirilmiştir. Titreşim örneklemeli manyetometre sisteminde (VSM) temel prensip, örneğin algılama bobini yakınında bobinin eksenel yönünde titreştirilmesi sırasında eş zamanlı olarak algılama bobininde etki ile voltaj oluşturulması ve bu voltajın sistem tarafından ölçülmesidir.

M-H ölçümleri -9T ile 9T alan değeri arasında 5 K, 20 K ve 77 K sabit sıcaklık değerlerinde yapılmıştır. M-T ölçümleri 50 Oe manyetik alanda gerçekleştirilmiştir. M-T ölçümlerinden süperiletken örneklerin diamanyetizma durumları ve T_c sıcaklıkları belirlenmiştir.

Kritik akım yoğunluğu, J_c , süperiletken malzemenin taşıyabileceği maksimum akım olarak tanımlanır. Bir süperiletkende kritik akım yoğunluğunu belirleyen öğelerden biri Cooper çiftlerinin bozulmasıdır. Bu durumda örnek bozulan çiftlerin yoğunluklarına bağlı olarak kısmen normal iletken davranış gösterir. II. tip süperiletkenlerde bu çiftlerin bozulmasının yanında girdapların hareketi de kritik akım yoğunluğuna etki eder.

Üretilen filmlerde M-H dataları kullanılarak kritik akım yoğunluğu, J_c , denklem 2.14’ de hesaplanmıştır.

$$J_c = \frac{20 \Delta M}{\left[a \left(1 - \frac{a}{3b} \right) \right]} \quad (2.16)$$

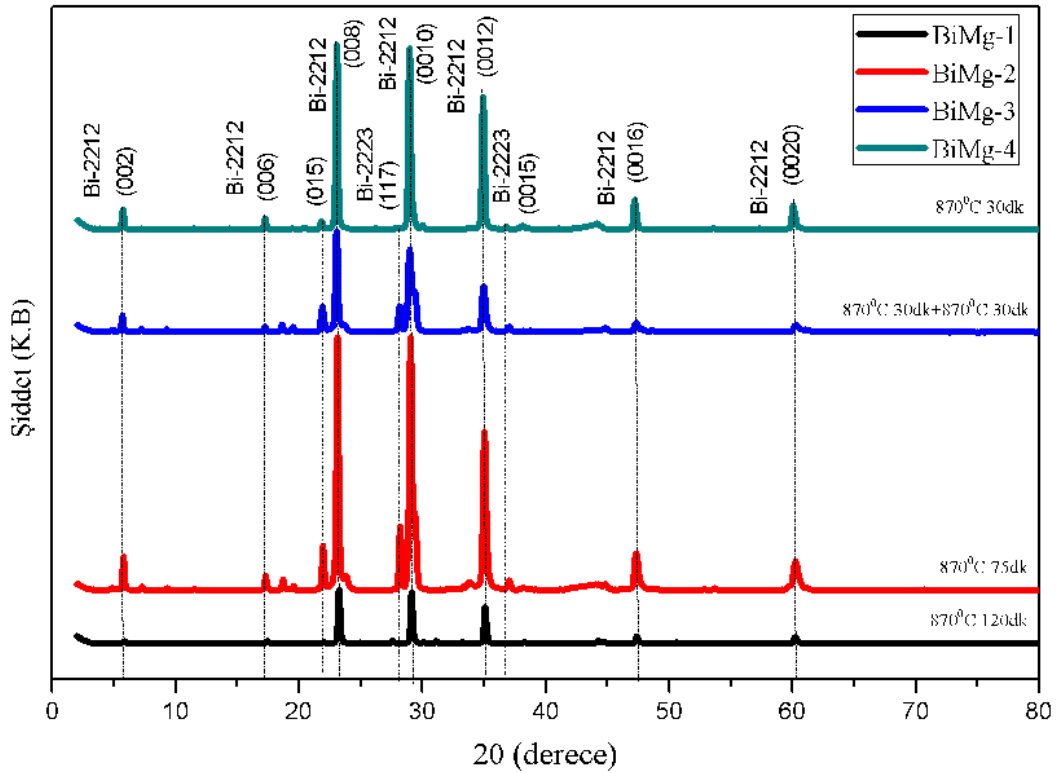
Burada ΔM değeri histeresiz eğrisinden elde edilen M_+ - M_- (M_+ pozitif manyetizasyonu ve M_- negatif manyetizasyonu gösterir) değerine karşılık gelen mıknatıslanma değeri, a ve b ise filmlerin boyutlarıdır.

4. TARTIŞMA VE BULGULAR

4.1. MgO ve SrTiO₃ Altlık ile Kaplanan Filmlerin XRD Sonuçları

MgO (100) altlık üzerine kaplanmış BSCCO filmlerin XRD desenleri Şekil 4.1’ de görülmektedir. Değişik ısıtım sürelerinde hazırlanmış bütün filmlerde genel olarak Bi-2212 fazının oluştuğu belirlenmiştir. Ancak bu filmlerde düşük oranda Bi-2223 ve safsızlık fazlarının da oluştuğu anlaşılmıştır. En şiddetli pik 870 °C’ de 30 dakika + 870 °C’ de 30 dakika ısıtım görmüş (BiMg-2) film için elde edilmiştir. Bu durum en iyi kristalleşmenin bu filmde olduğunu ortaya koymaktadır. İlk çalışmalarda $2\theta=42.3^\circ$ açısında MgO (100) altlığına ait pik olduğu bulunmuştur. Ancak, bu pik oldukça şiddetli olduğundan ve diğer pikleri baskıladığından hangi filmde ne kadarlık kristalleşme olduğu anlaşılamamıştır. Bu nedenle $2\theta=42.3^\circ$ açısında bulunan MgO’ e ait safsızlık piki kasten çıkarılmıştır.

MgO (100) altlıklı filmlerin kristal simetrisinin tetragonal olduğu bulunmuş ve örgü parametreleri $a(=b)=5.4451 \text{ \AA}$ ve $c=31.022 \text{ \AA}$ olarak hesaplanmıştır. MgO altlık üzerine kaplanmış BSCCO filmlerin XRD desenleri Şekil 4.1’ de görülmektedir.



Şekil 4.1. MgO altlık üzerine üretilen filmlerin XRD kırınım deseni.

Üretilen filmlerde ortalama kristal büyüklüğü Scherrer metodunda denklem 4.1 kullanılarak hesaplanmıştır [109]:

$$L = \frac{0.9 \cdot \lambda}{FWHM \cdot \cos\theta} \quad (4.1)$$

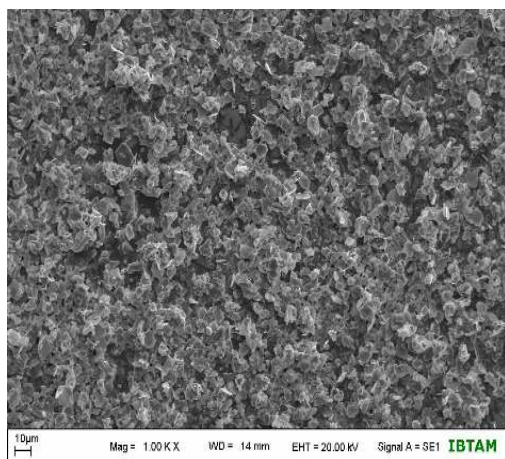
Burada λ ; kullanılan x-ışınının dalga boyu ($\lambda = 1.5405 \text{ \AA}$), FWHM; x-ışını piklerinin yarı maksimumdaki tam genişliği ve θ ; x-ışını piklerinin açısı değeridir. Buna göre en iyi yapısal özellik gösteren BiMg-2 filminde ortalama kristal büyüklüğü $371.33 \text{ \AA}$ ve BiSr-2 filminde ise $376.25 \text{ \AA}$ olarak bulunmuştur. Diğer filmlerde ise aşağıda verilen kristal büyüklüklerine yakın değerler olduğu görülmüştür.

Tablo 4.1. *MgO ve SrTiO₃ altlıklar üzerine kaplanmış filmlerin kristal büyüklük değerleri.*

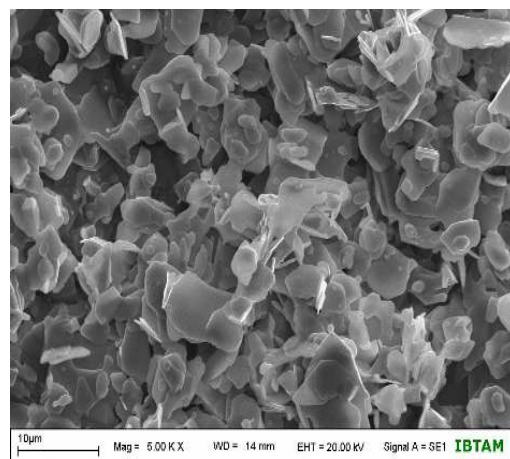
Materyal	Kristal büyüklüğü, L ($\text{\AA}$)
BiMg-1	375.72
BiMg-2	371.33
BiMg-3	337.04
BiMg-4	347.72
BiSr-1	272.94
BiSr-2	376.25
BiSr-3	339.51
BiSr-4	349.35

4.2. MgO ve SrTiO₃ Altlıklı Filmlerin SEM Sonuçları

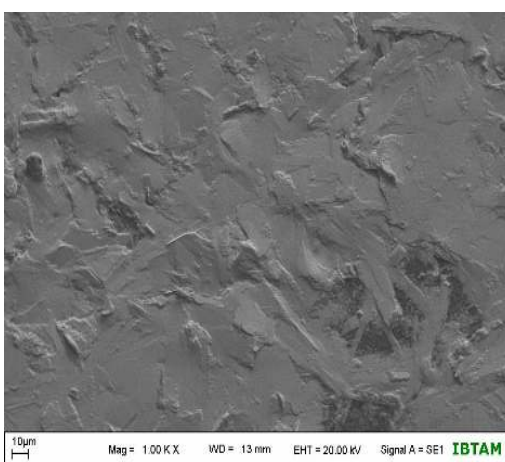
MgO (100) üzerine kaplanmış BSCCO filmlerin yüzeylerine ait SEM fotoğrafları Şekil 4.3.a-h' da gösterilmiştir. Filmlerin EDX analizleri ise Şekil 4.4-4.8' de verilmiştir.



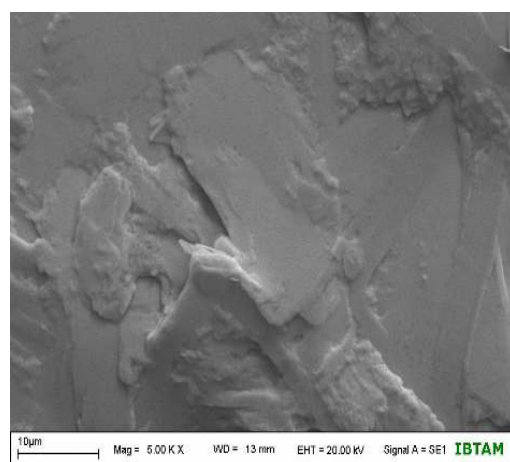
(a)



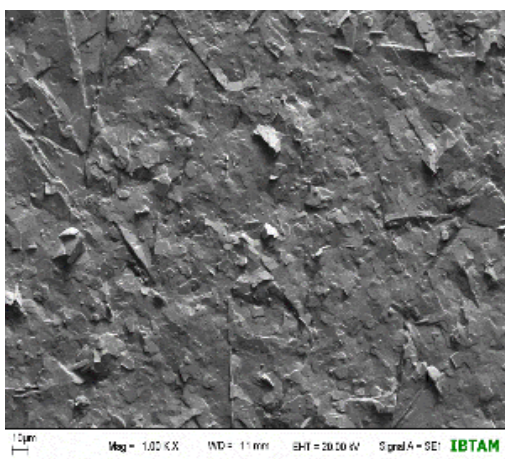
(b)



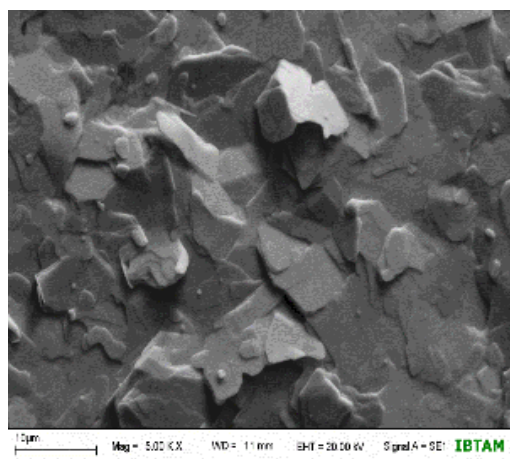
(c)



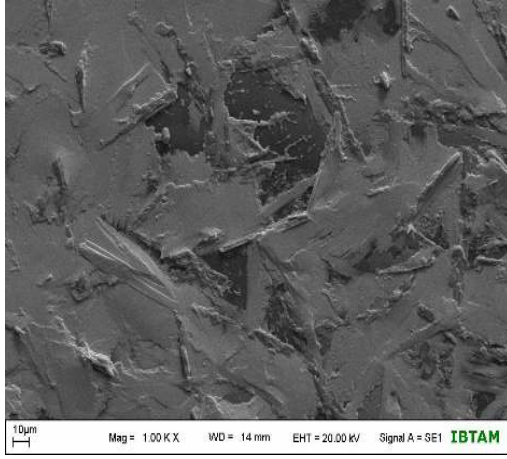
(d)



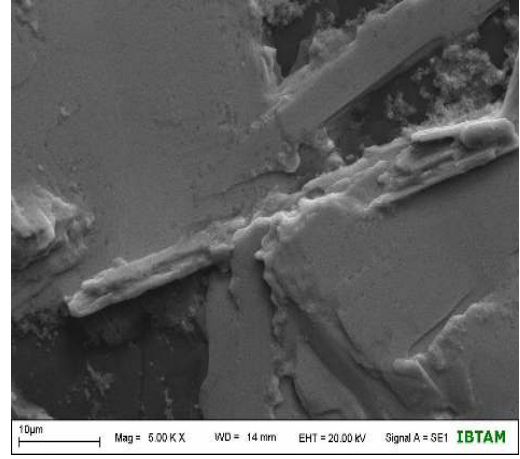
(e)



(f)



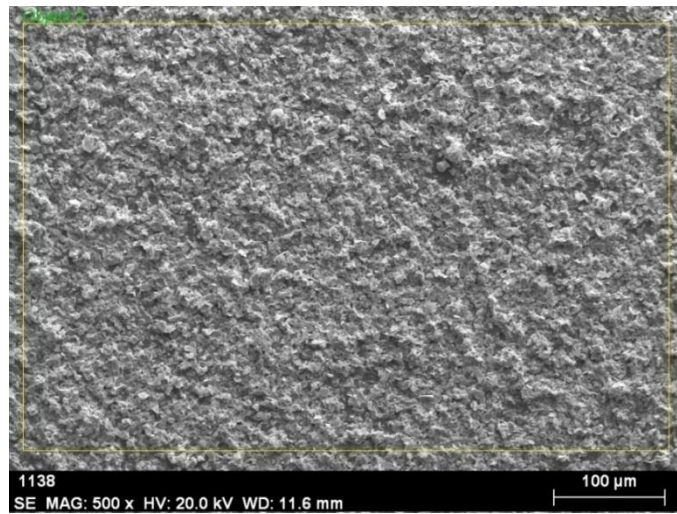
(g)

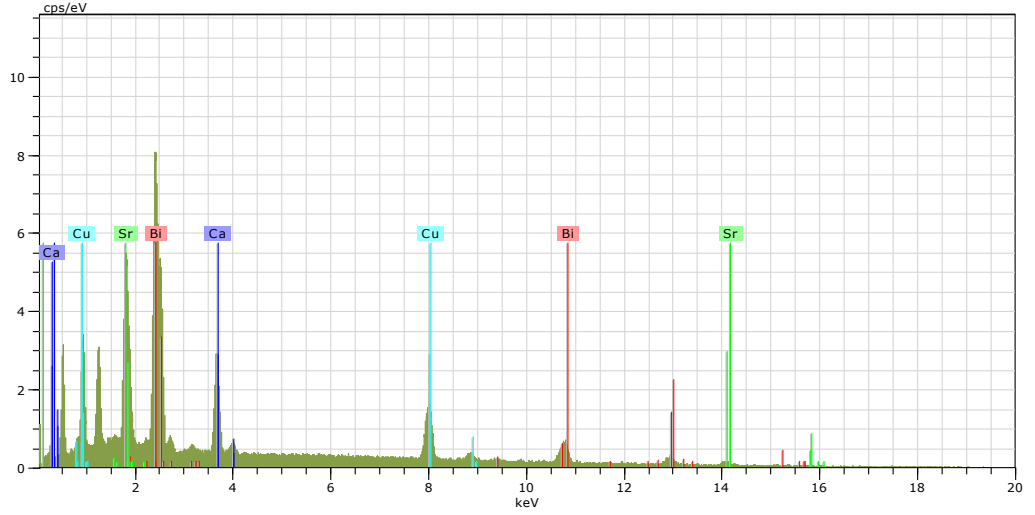


(h)

Şekil 4.3. *MgO (100) altlık üzerine kaplanmış BSCCO filmlere ait SEM sonuçları. 870 °C’ de 30 dk ısıt işlem görmüş (BiMg-1) a) 1000 ve b) 5000 büyütme, 870 °C’ de 30 dk+870 °C’ de 30 dk ısıt işlem görmüş (BiMg-2) c) 1000 ve d) 5000 büyütme, 870 °C’ de 75 dk ısıt işlem görmüş (BiMg-3) e) 1000 ve f) 5000 büyütme ve 870 °C’ de 120 dk ısıt işlem görmüş (BiMg-4) g) 1000 ve h) 5000 büyütme.*

MgO (100) altlıklar üzerine kaplanmış ve ısıt işlem görmüş filmlerin SEM fotoğrafları Şekil 4.3.a-h’ da gösterilmiştir. 870 °C’ de 30 dakika ısıt işlem görmüş filmde (BiMg-1) BSCCO malzemelerinin genel karakteristiği olan yapraksı tanecikler oluşmuştur, Şekil 4.3.a ve Şekil 4.3.b. Bu tip bir kristalleşme tanecikler arası bağlantıların zayıf olduğunu göstermektedir. EDX analizleri, Şekil 4.4, bu filmdeki kompozisyonun $\text{Bi}_{1.8}\text{Sr}_{1.8}\text{Ca}_{1.5}\text{Cu}_{1.7}\text{O}_x$ olduğunu ortaya koymuştur.

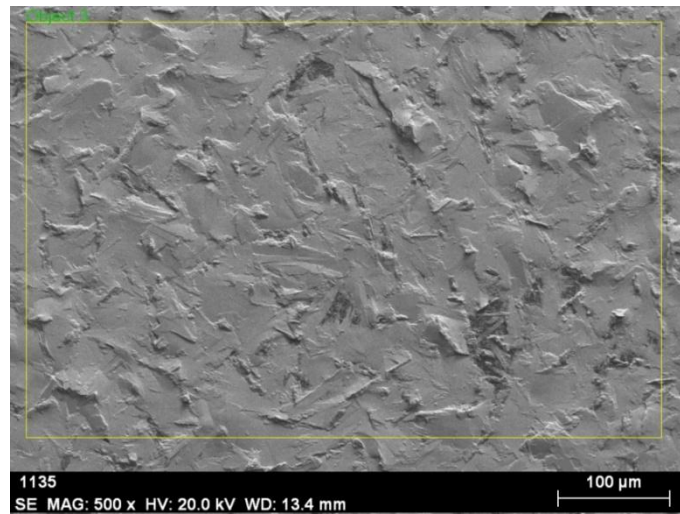


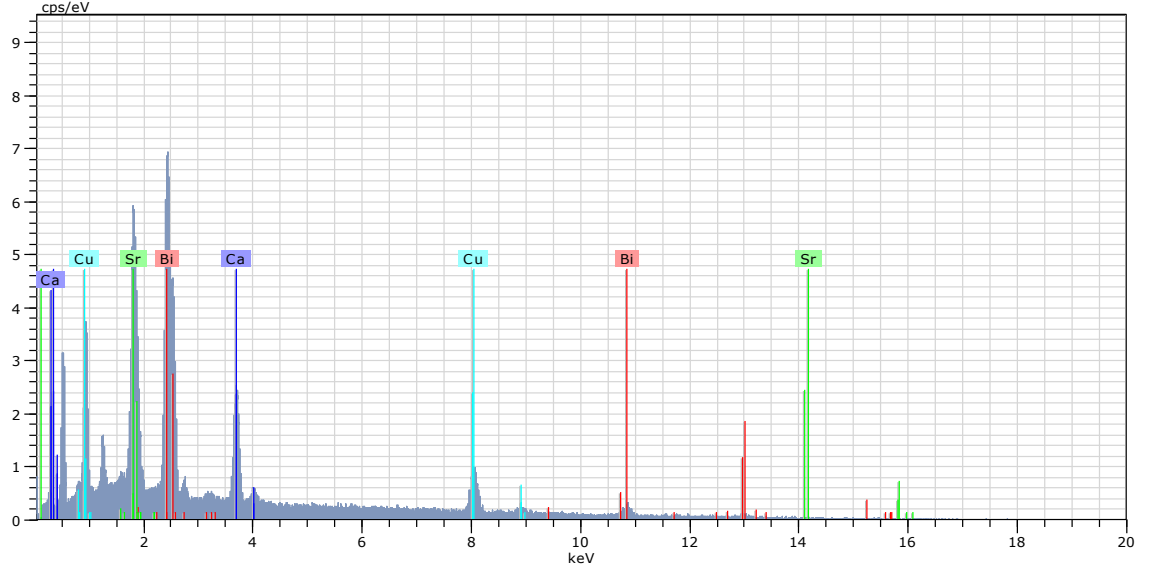


Element	Atomik Ağırlık (%)
Ca	22.39
Cu	25.17
Sr	26.24
Bi	26.20

Şekil 4.4. BiMg-1 filmine ait EDX spektrumu ve EDX verileri.

870 °C’ de 30 dakika + 870 °C’ de 30 dakika ısıtıl işlem görmüş filmde (BiMg-2) yüzey morfolojisinde değişiklik meydana gelmiştir, Şekil 4.3.c ve Şekil 4.3.d. Filmde oldukça büyük kesit alanına sahip, levha şeklinde kristalleşmenin olduğu gözlenmiştir. Bu tip bir morfoloji düşük açılı kristaller arası sınırlardan dolayı, süperiletken filmlerde tercih edilen bir kristal yapılanmasıdır. EDX sonuçları, Şekil 4.5, bu filmdeki kompozisyonun $\text{Bi}_{1.2}\text{Sr}_{2.2}\text{Ca}_{1.7}\text{Cu}_{1.7}\text{O}_x$ olduğunu ortaya koymuştur.

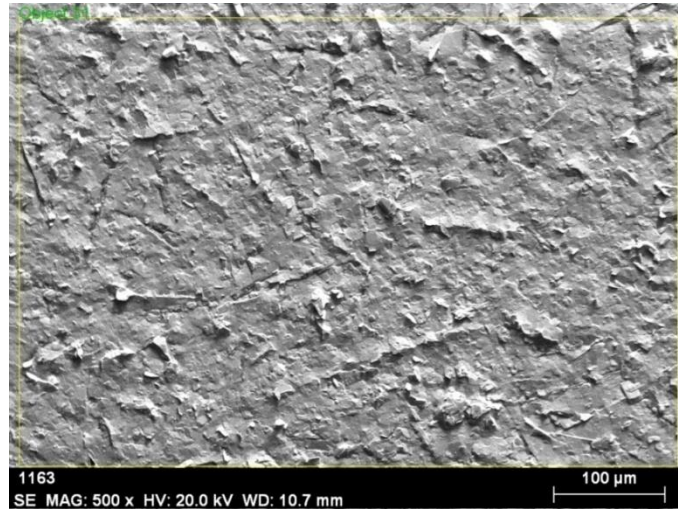


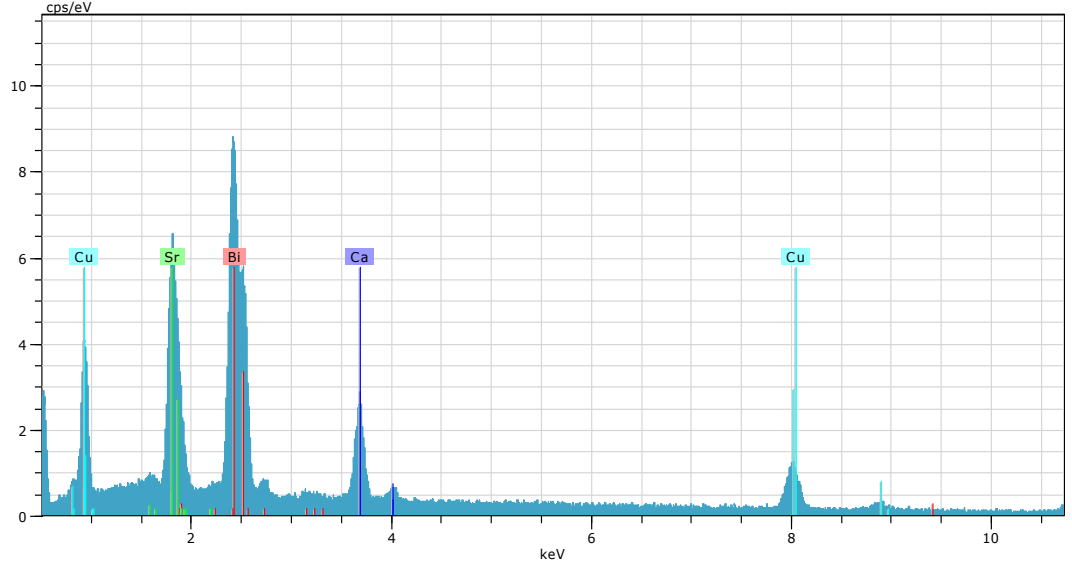


Element	Atomik Ağırlık (%)
Ca	25.32
Cu	24.58
Sr	31.72
Bi	18.38

Şekil 4.5. BiMg-2 filmine ait EDX spektrumu ve EDX verileri.

Şekil 4.3.e ve Şekil 4.3.f, 870 °C’ de 75 dk ısıtılma işlemi görmüş filmin (BiMg-3) yüzey yapısını göstermektedir. Isıtılma süresi 75 dakikaya uzatıldığında büyük levhalarda yer yer kırıklar olduğu belirlenmiştir. EDX sonuçları, Şekil 4.6, bu filmdeki kompozisyonun $\text{Bi}_{1.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{1.6}\text{Cu}_{1.9}\text{O}_x$ olduğunu ortaya koymuştur.

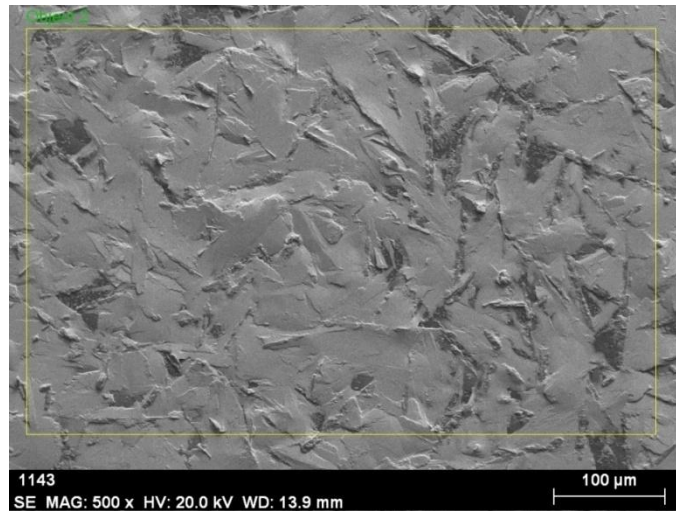


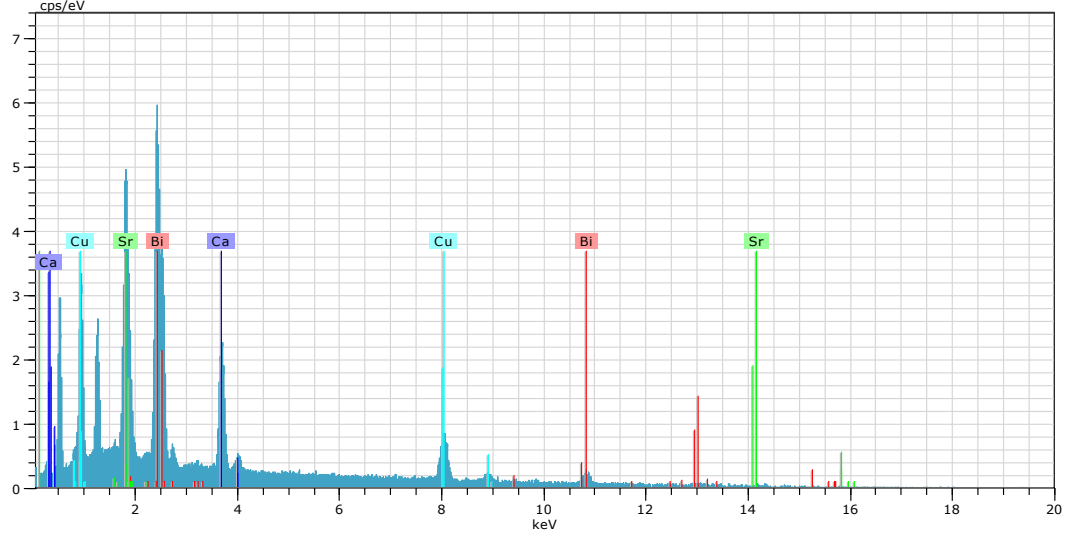


Element	Atomik Ağırlık (%)
Ca	23.39
Cu	27.45
Sr	28.88
Bi	20.29

Şekil 4.6. BiMg-3 filmine ait EDX spektrumu ve EDX verileri.

870 °C’ de 120 dakika ısıtıl işlem görmüş film (BiMg-4) için ısıtıl işlem süresinin artması ile yüzey yapılanmasındaki bozulmalar devam etmiştir, Şekil 4.3.g-h. EDX sonuçları, Şekil 4.6, bu filmdeki kompozisyonun $\text{Bi}_{1.2}\text{Sr}_{2.1}\text{Ca}_{1.7}\text{Cu}_{1.8}\text{O}_x$ olduğunu ortaya koymuştur, Şekil 4.7.

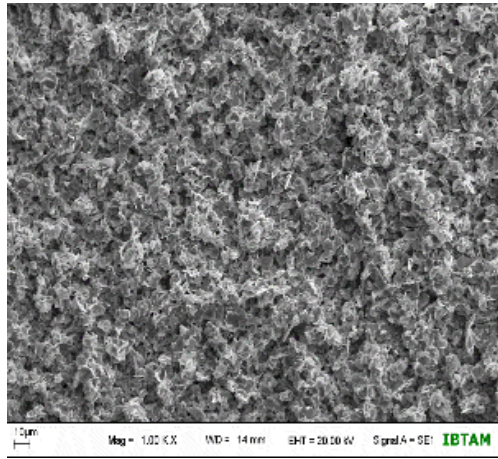




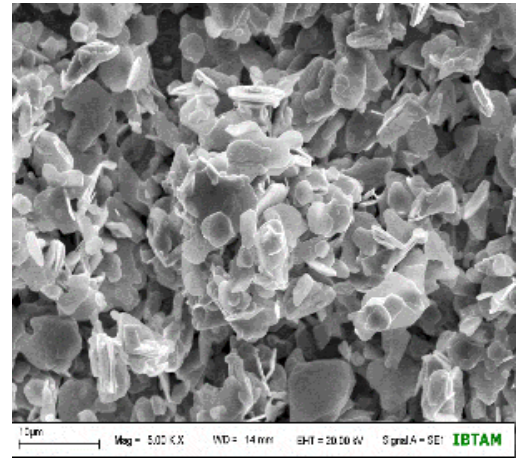
Element	Atomik Ağırlık (%)
Ca	25.20
Cu	26.45
Sr	30.72
Bi	17.63

Şekil 4.7. *BiMg-4* filmine ait EDX spektrumu ve EDX dataları.

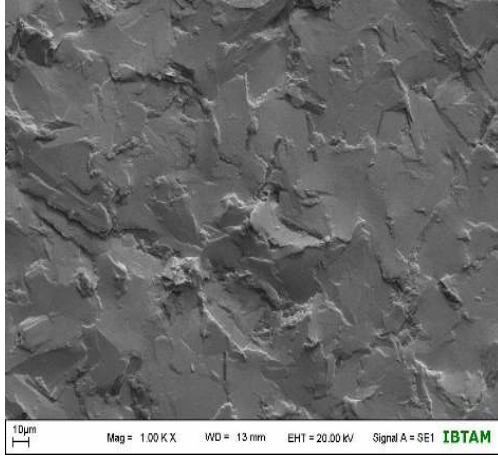
SrTiO₃ altlıklar üzerine kaplanmış ve ısıtıl işlem görmüş filmlerin SEM fotoğrafları Şekil 4.8.a-h' da gösterilmiştir.



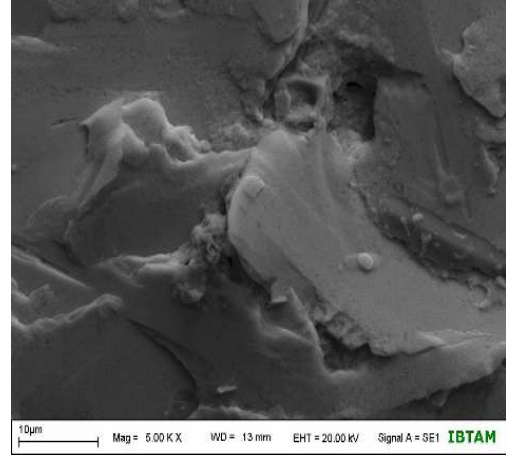
(a)



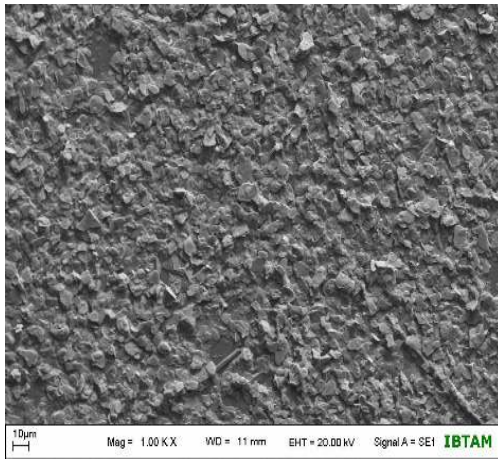
(b)



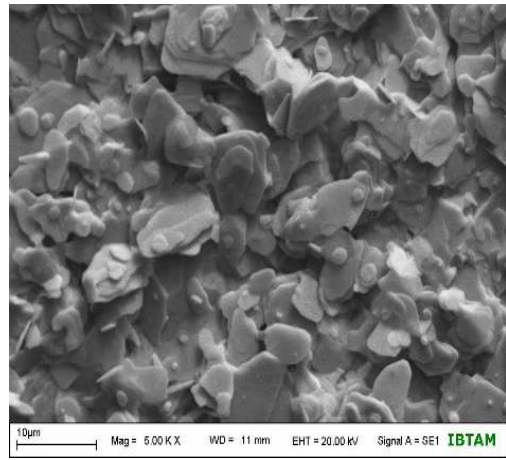
(c)



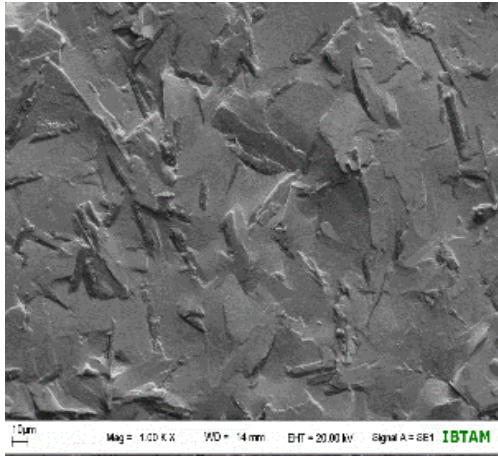
(d)



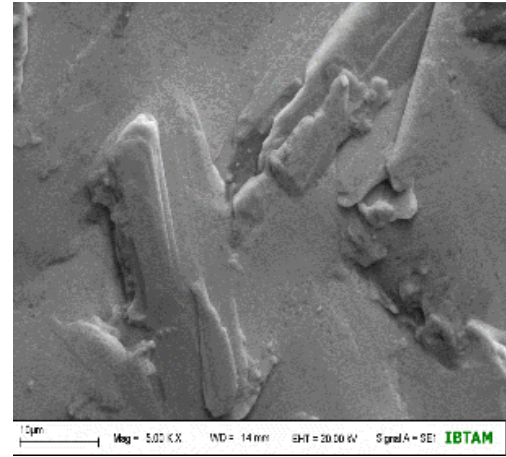
(e)



(f)



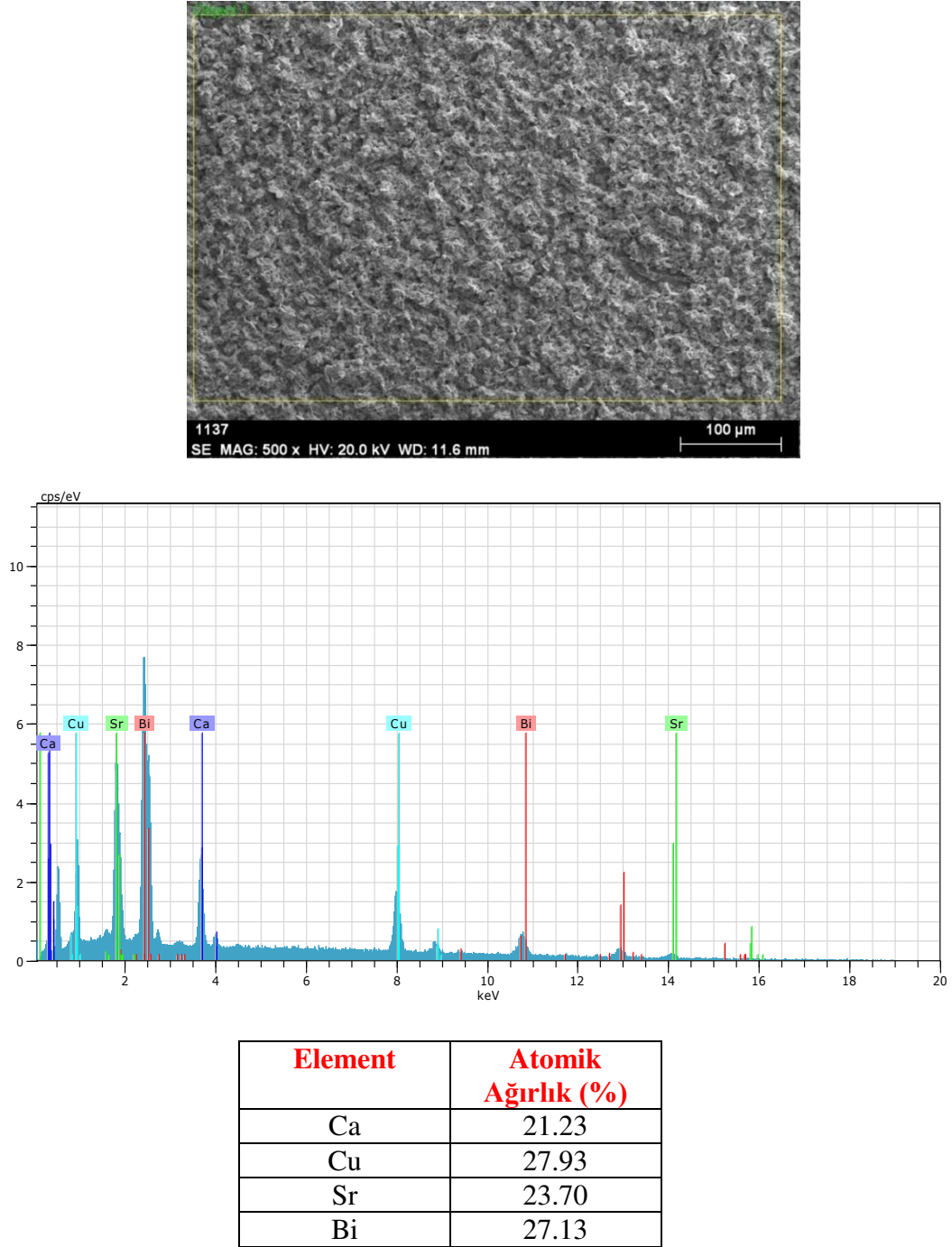
(g)



(h)

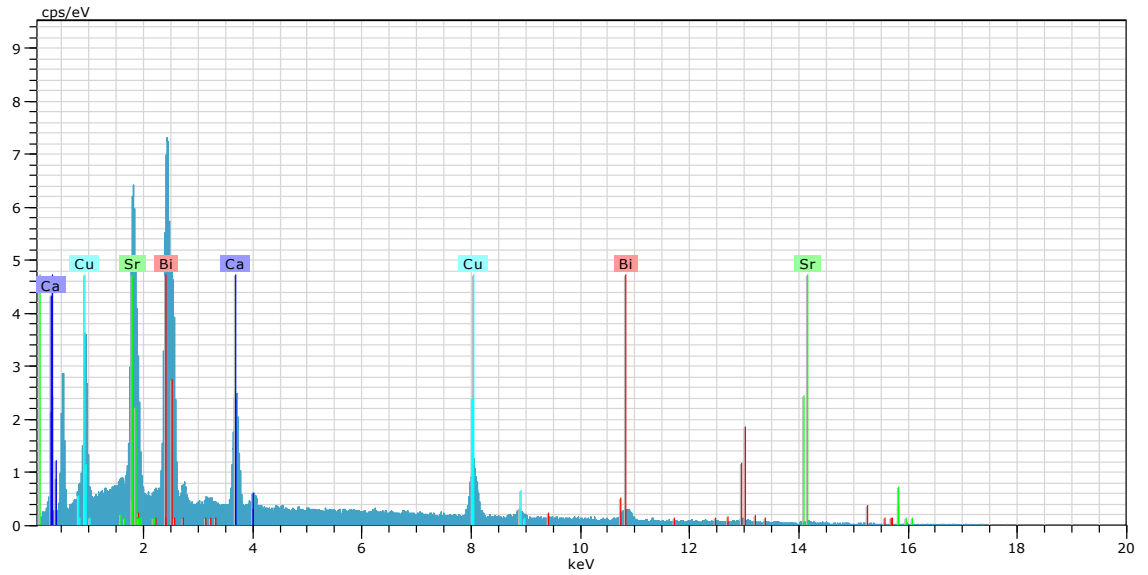
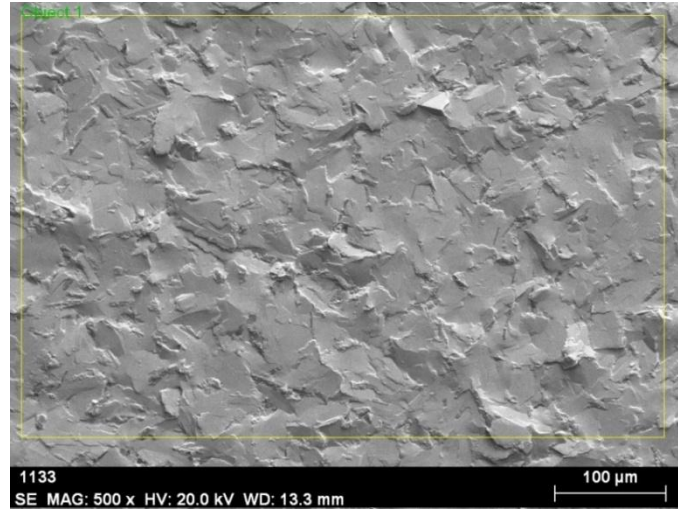
Şekil 4.8. SrTiO_3 altlık üzerine kaplanmış BSCCO filmlere ait SEM sonuçları. 870°C ' de 30 dk ısıt işlem görmüş (BiSr-1) **a)** 1000 ve **b)** 5000 büyütme, 870°C ' de 30 dk+ 870°C ' de 30 dk ısıt işlem görmüş (BiSr-2) **c)** 1000 ve **d)** 5000 büyütme, 870°C ' de 75 dk ısıt işlem görmüş (BiSr-3) **e)** 1000 ve **f)** 5000 büyütme ve 870°C ' de 120 dk ısıt işlem görmüş (BiSr-4) **g)** 1000 ve **h)** 5000 büyütme.

870 °C’ de 30 dk ısıt ışıem g rm   filmde (BiSr-1) tipik BSCCO yapılanması g r lmektedir. Yaprak  eklinde kristallerden olu mu  yapılanmada yer yer bo luklar bulunmaktadır,  ekil 4.8.a ve  ekil 4.8.b. EDX sonu ları bu filmdeki kompozisyonun $\text{Bi}_{1.8}\text{Sr}_{1.6}\text{Ca}_{1.4}\text{Cu}_{1.9}\text{O}_x$ oldu unu ortaya koymu tur,  ekil 4.9.



 ekil 4.9. BiSr-1 filmine ait EDX spektrumu ve EDX verileri.

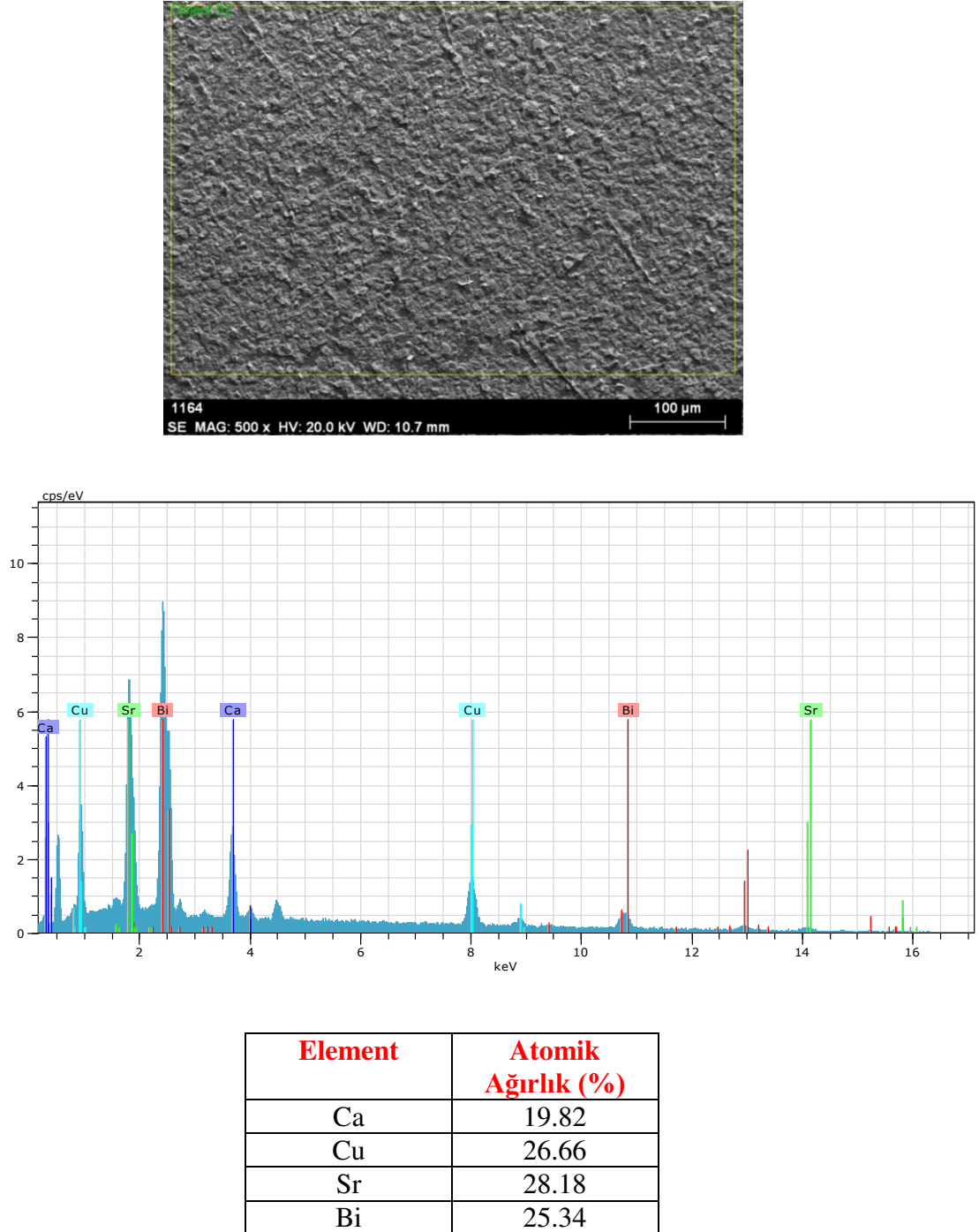
Film üzerine 870 °C’ de 30 dk ekstra ısıtma işlem uygulandığında (BiSr-2) büyük kesit alanlı levha şeklinde kristalleşme meydana gelmiştir, Şekil 4.8.c ve 4.8.d. Aynı şartlarda hazırlanmış MgO (100) altlık üzerine kaplanan film ile benzer yüzey yapılanmasının olduğu görülmüştür. Bu tip bir morfoloji düşük açılı kristaller arası sınırlardan dolayı tercih edilen bir kristal yapılanmasıdır. EDX sonuçları, Şekil 4.10, bu filmdeki kompozisyonun $\text{Bi}_{1.4}\text{Sr}_{1.9}\text{Ca}_{1.6}\text{Cu}_{1.8}\text{O}_x$ olduğunu göstermiştir.



Element	Atomik Ağırlık (%)
Ca	24.29
Cu	26.81
Sr	28.12
Bi	20.78

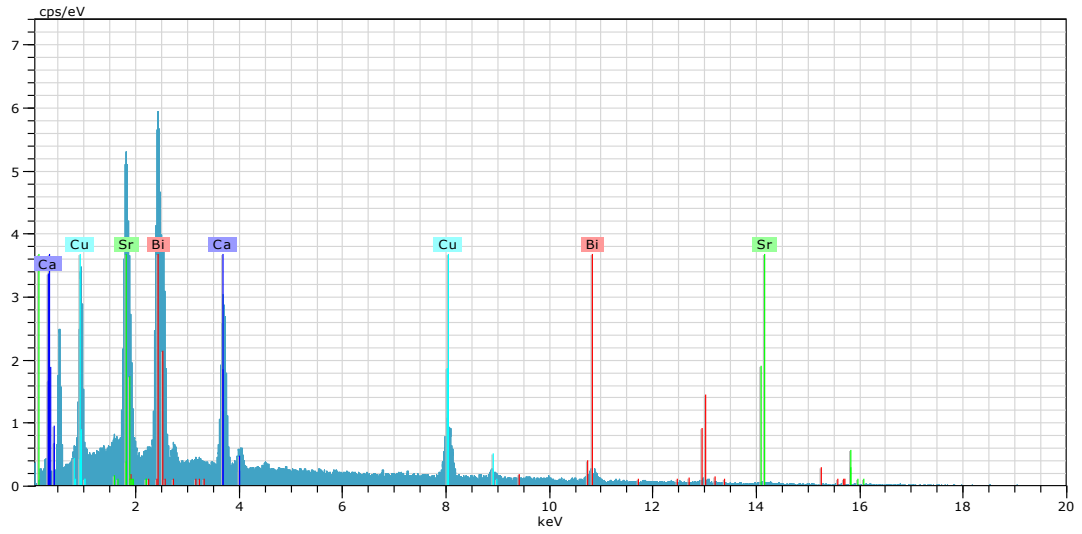
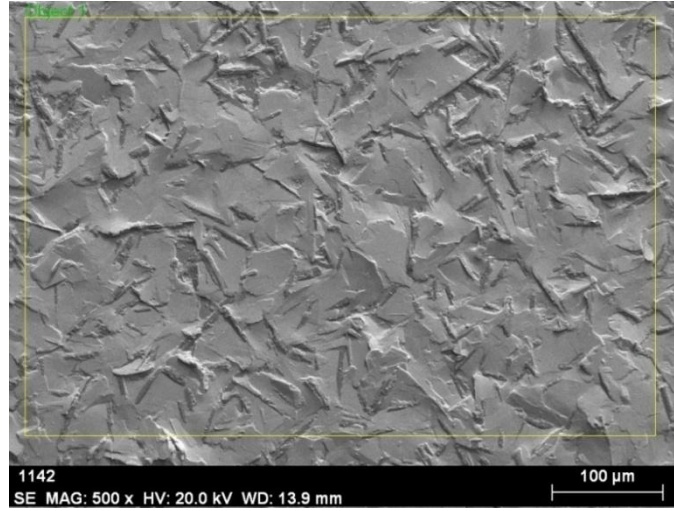
Şekil 4.10. BiSr-2 filmine ait EDX spektrumu ve EDX verileri.

870 °C’ de 75 dk ısıt işlem görmüş filmde (BiSr-3) ısıt işlem süresinin artması ile levha şeklindeki yapılanma bozulmuş ve tanecikli (granular) kristaller oluşmuştur, Şekil 4.8.e ve 4.8.f. EDX sonuçları bu filmdeki kompozisyonun $\text{Bi}_{1.7}\text{Sr}_{1.9}\text{Ca}_{1.3}\text{Cu}_{1.8}\text{O}_x$ olduğunu göstermiştir, Şekil 4.11.



Şekil 4.11. BiSr-3 filmine ait EDX spektrumu ve EDX verileri.

870 °C’ de 120 dk ısıt ışılem g rm    filmde (BiSr-4) ısıt ışılem s resi 120 dakikaya  ıkarıldı ında rastgele y nelimli levhaların olu tu u g zlenmi ir,  ekil 4.8.g ve  ekil 4.8.h. EDX sonu ları bu filmdeki kompozisyonun $\text{Bi}_{1.2}\text{Sr}_2\text{Ca}_{1.9}\text{Cu}_{1.9}\text{O}_x$ oldu unu ortaya koymu tur,  ekil 4.12.



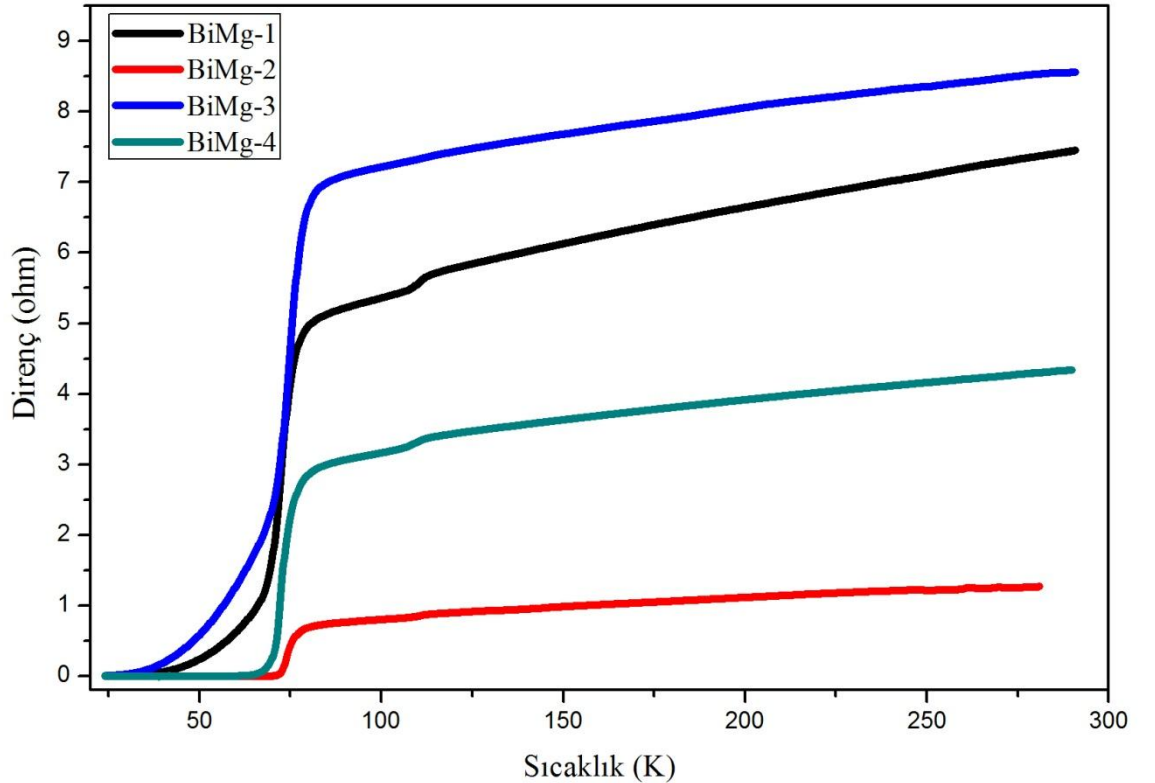
Element	Atomik A�ırlık (%)
Ca	27.32
Cu	27.70
Sr	28.80
Bi	16.18

 ekil 4.12. BiSr-4 filmine ait EDX spektrumu ve EDX verileri.

SEM sonuçları en iyi yapılanmanın ekstra ısıtım işlem yapılmış (870 °C' de 30 dk+870 °C' de 30 dk) BiMg-2 ve BiSr-2 filmlerinde elde edildiğini göstermiştir. Bunun nedenin büyük plaka şeklinde kristallerin oluşması, dolayısı ile düşük açılı kristaller arası sınırlardan dolayı olduğuna inanmaktayız.

4.3. MgO ve SrTiO₃ Altlıklı Filmlerin Elektriksel Direnç (R-T) Ölçüm Sonuçları

MgO (100) altlıklar üzerine kaplanan filmlerin direnç-sıcaklık (R-T) eğrileri Şekil 4.13' de gösterilmiştir. Filmlere ait T_{c1} , T_{c2} ve T_0 değerleri Tablo 4.2' de verilmiştir. Üretilen filmler 290 K' den süperiletken geçiş sıcaklığı T_c ' ye kadar metalik özellik sergilemişlerdir. MgO (100) altlıklar üzerine üretilen filmlerde çift fazlı süperiletken geçiş olduğu görülmüştür. 100 K' in üstünde görülen geçiş Bi-2223 fazına ait iken 80 K civarındaki geçiş ise Bi-2212 fazına aittir. Ancak, XRD ve SEM-EDX sonuçları ile birlikte ele alındığında Bi-2223 fazının çok düşük oranda oluştuğunu vurgulamakta fayda vardır.

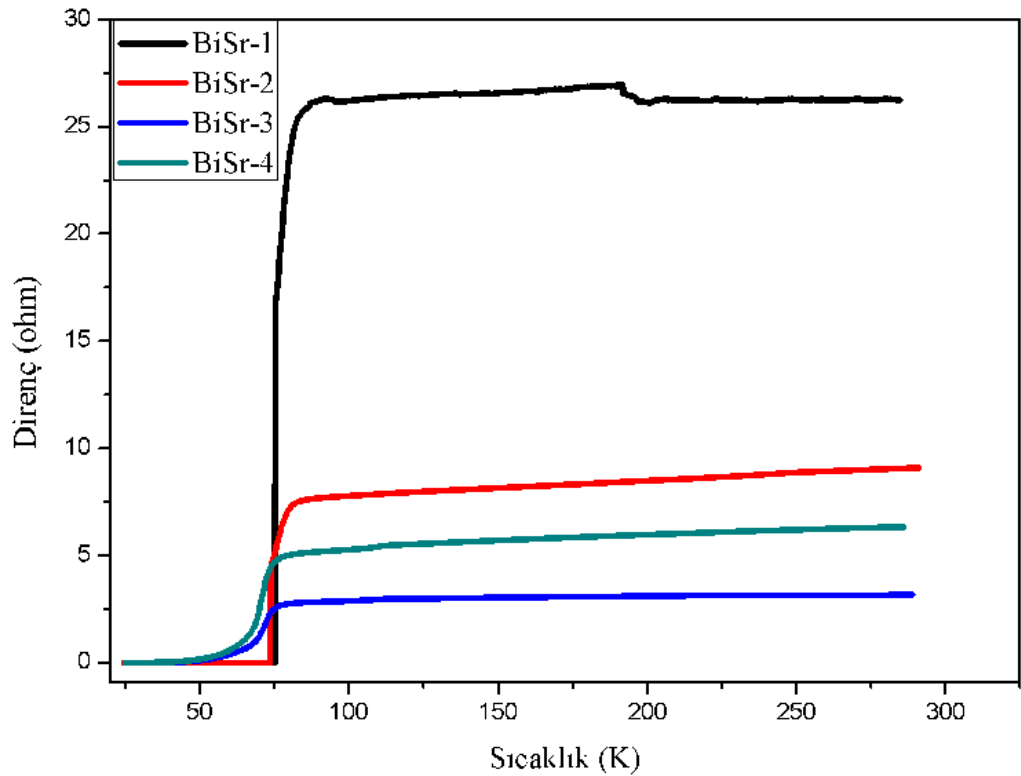


Şekil 4.13. MgO (100) altlıklar üzerine üretilen filmlere ait R-T eğrileri.

Tablo 4.2. *MgO (100) altlıklar üzerine kaplanan filmlerin kritik geçiş sıcaklık değerleri.*

Film	T_{c1} (K)	T_{c2} (K)	T_0 (K)	M-T eğrisi
				T_c (K)
BiMg-1	110	80.9	50	75.6
BiMg-2	111.8	83.6	73.3	72.2
BiMg-3	-	84	48	72.8
BiMg-4	111.5	83	71.5	74.8

En yüksek T_{c1} ve T_{c2} değerleri 870 °C’ de ekstra 30 dakika ısıtıl işlem görmüş filmde (BiMg-2) elde edilmiştir. Ancak MgO (100) altlık üzerine kaplanan filmlerin T_0 değerlerinin düşük olduğu görülmektedir. Bu durum optimum sıcaklığının altında ve/veya üstünde ısıtıl işlem yapıldığında gerekli faz oluşumlarının sağlanamadığının bir göstergesidir. Başka bir deyişle, Bi-2212 fazı tam oluşamamakta ve kristal sınırları civarında Bi-2212 ve kısmen Bi-2201 fazlarının aynı anda oluşması böyle bir duruma neden olmaktadır. SrTiO₃ altlıklar üzerine kaplanan filmlerin direnç-sıcaklık (R-T) eğrileri Şekil 4.14’ de ve T_c değerleri ise Tablo 4.3’ de verilmektedir. Bu filmlerde de bazı filmlerin çift fazlı geçiş gösterdikleri gözlenmiştir.



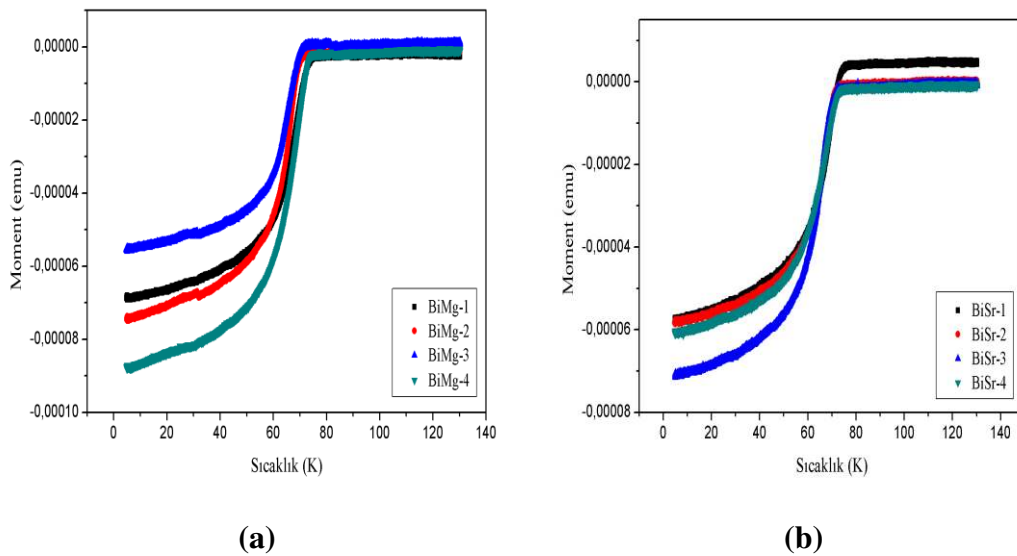
Şekil 4.14. *SrTiO₃ altlıklar üzerine üretilen filmlere ait R-T eğrisi.*

Tablo 4.3. SrTiO_3 altlıklar üzerine kaplanan filmlerin kritik geçiş sıcaklık değerleri.

Film	$T_{c1}(\text{K})$	$T_{c2}(\text{K})$	$T_0(\text{K})$	$M-T$ eğrisi $T_c(\text{K})$
BiSr-1	-	87.5	75	76.6
BiSr-2	-	83.6	75	73.4
BiSr-3	111	82	70	72.6
BiSr-4	111	81	70	74.6

4.4. MgO ve SrTiO_3 Altlıklı Filmlerin M-T Ölçüm Sonuçları

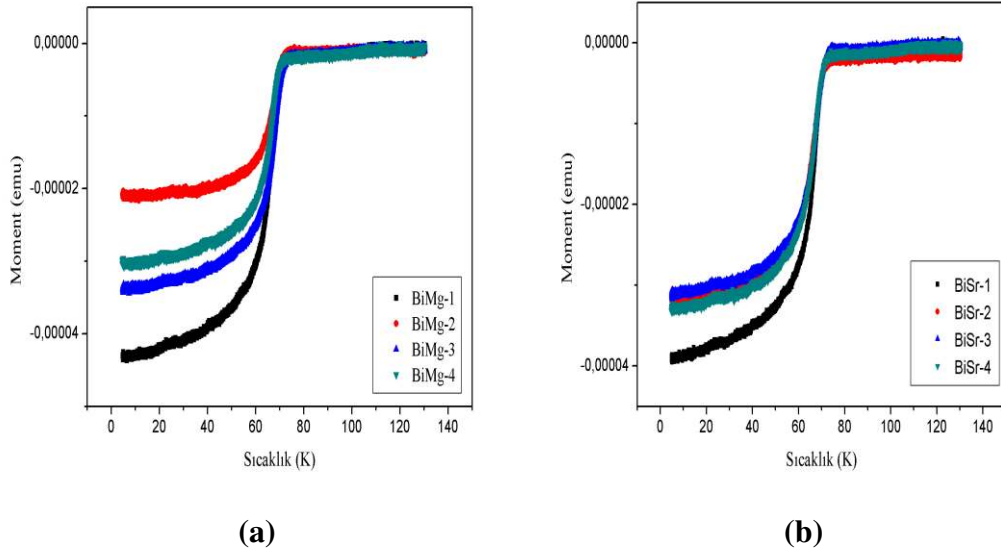
Süperiletken malzemeler, kritik geçiş sıcaklığı (T_c) değerinin altına kadar soğutulduklarında malzemede direncin aniden sıfıra gittiği ve malzemenin tamamen diamanyetik duruma geçerek uygulanan manyetik alanı dışarladığı bilinmektedir. Bu nedenle, kritik sıcaklık, direnç ölçümlerinden veya manyetik uygunluk ölçümlerinden belirlenebilmektedir. M-T ölçümleri bütün örneğin manyetik durumunu belirler ve örneğin tamamının süperiletken olup olmadığının bir göstergesidir. Bununla birlikte, öz direnç süperiletken akım yollarının oluşması ile ilişkilidir. Bu nedenle, manyetizasyon eğrisinden bulunan T_c sıcaklığına kıyasla öz direnç-sıcaklık eğrisinden bulunan T_c sıcaklığı daha yüksek sıcaklıklarda elde edilmektedir. MgO (100) ve SrTiO_3 altlıklar üzerine kaplanan filmlerin M-T eğrileri Şekil 4.15’ de gösterilmektedir. Burada manyetik alan film yüzeyine dik uygulanarak ölçüm alınmıştır.



Şekil 4.15. a) MgO (100) ve b) SrTiO_3 altlıklar üzerine kaplanan filmlere ait M-T grafikleri ($H \perp$ Film yüzeyi).

Şekil 4.15' de MgO altlık üzerinde üretilen filmlere ait M-T grafiğindeki T_c değerleri BiMg-1, BiMg-2, BiMg-3 ve BiMg-4 için sırasıyla 75.6 K, 72.2 K, 72.8 K ve 74.8 K olarak elde edilmiştir. SrTiO₃ altlık üzerinde üretilen filmlere ait M-T grafiğindeki T_c değerleri ise BiSr-1, BiSr-2, BiSr-3 ve BiSr-4 için sırasıyla 76.6 K, 73.4 K, 72.6 K ve 74.6 K olarak elde edilmiştir. SrTiO₃ altlıklar üzerine üretilen BiSr-1 filminde tam bir diamagnetik davranış elde edilememiştir, ancak bu film paramagnetik davranış göstermiştir, Şekil 4.15.b . Bu duruma tanecikli yapıda var olan XRD' de dedekte edilemeyen safsızlıkların neden olduğuna inanmaktayız.

Manyetik alan film yüzeyine paralel uygulanan MgO (100) ve SrTiO₃ altlıklar üzerine kaplanan filmlerin M-T eğrileri Şekil 4.16' da gösterilmektedir.



Şekil 4.16. a) MgO (100) ve b) SrTiO₃ altlıklar üzerine kaplanan filmlere ait M-T grafikleri ($H // \text{Film yüzeyi}$).

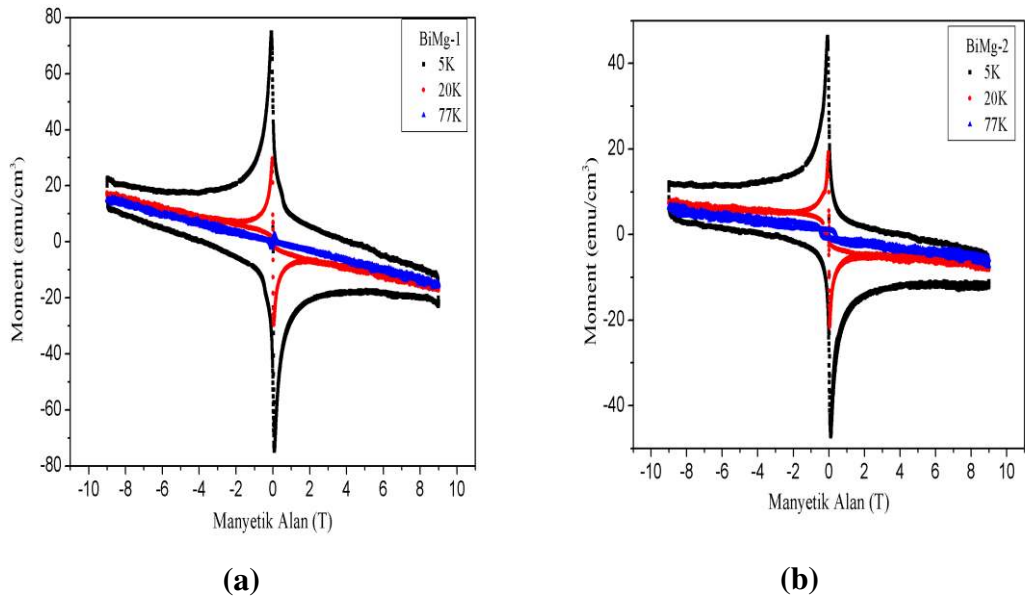
Burada hiçbir filmde paramanyetik davranış gözlenmemiştir, Şekil 4.16. MgO (100) altlık üzerinde üretilen filmlere ait T_c değerleri BiMg-1, BiMg-2, BiMg-3 ve BiMg-4 için sırasıyla 74 K, 73.5 K, 73.6 K ve 73 K olarak elde edilmiştir. SrTiO₃ altlık üzerinde üretilen filmlere ait T_c değerleri ise BiSr-1, BiSr-2, BiSr-3 ve BiSr-4 için sırasıyla 74.3 K, 73.6 K, 74.3 K ve 73.8 K olarak elde edilmiştir.

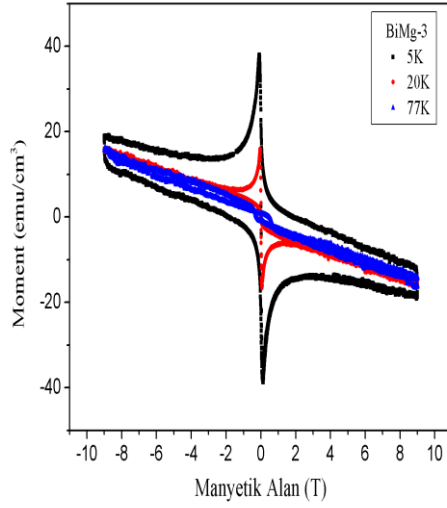
4.5. MgO ve SrTiO₃ Altlıklı Filmlerin M-H Ölçüm Sonuçları

Süperiletkenlerin manyetik özellikleri biraz karışıktır. Karışıklık, örneğin polikristal ya da tek kristal olmasına, taneciklerin güçlü bir şekilde bağlı oluşuna, örneğin içerisindeki kusurların tipine ve yoğunluğuna ve örneğin hazırlanış yöntemine dayanmaktadır. M-H eğrileri süperiletken malzemelerin dışardan uygulanan farklı alanlar altında davranışlarının ve taşıyabilecekleri maksimum akım yoğunluklarının belirlenmesinde dolayısı ile akı dinamiklerinin anlaşılmasında da önemli rol oynar.

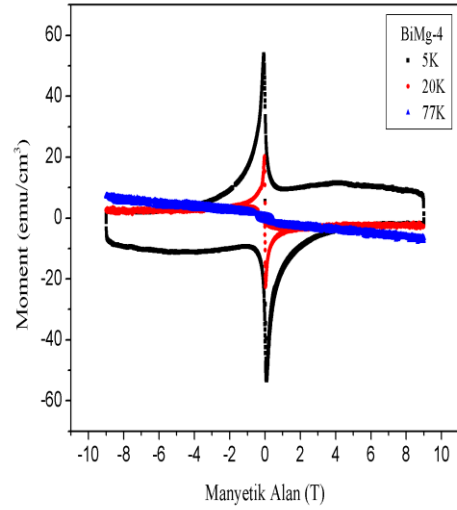
Bütün manyetik malzemeler uygulanan manyetik alana karşı kendilerine özgü bir tepki geliştirirler. Malzemenin gösterdiği bu tepki manyetizasyon olarak adlandırılır. Diyamanyetik özellik göstermesinden dolayı süperiletken malzemelerde, uygulanan alan ile birlikte vorteks akımları oluşur ve bu akımlar örnek içine manyetik alanın sızmasını engeller. Bundan dolayı II. tip süperiletkenlerde H_{c1} ' e kadar uygulanan manyetik alan örnek içine sızmaz. Ancak H_{c1} kritik alandan daha büyük bir manyetik alanının uygulanması ile manyetik akı örnek içine sızmaya başlar. Böylelikle manyetizasyon azalmaya başlar ve H_{c2} değerinde sıfır olur. Uygulanan manyetik alan azaltıldığında akı çizgisi tersinir özellik göstererek manyetizasyon pozitif yönde değişir. Manyetik alan sıfıra düşürüldüğünde ise tuzaklanan akıdan dolayı kalıcı manyetizasyon oluşmaktadır ve bu da tersinmez bir M-H eğrisi oluşmasını sağlar.

MgO (100) altlıklar üzerine kaplanan filmlerin M-H eğrileri Şekil 4.17' de gösterilmektedir. Burada M-H ölçümleri 5 K, 20 K ve 77 K' de manyetik alan film yüzeyine dik uygulanarak alınmıştır.





(c)

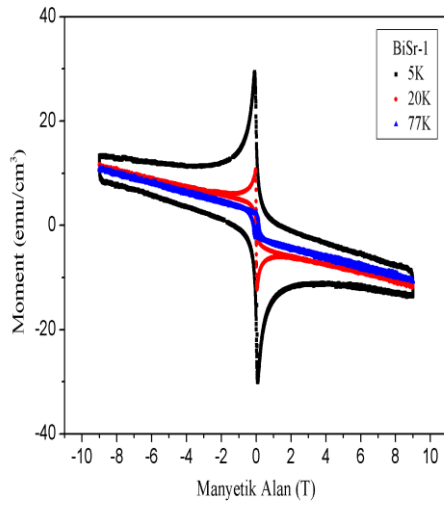


(d)

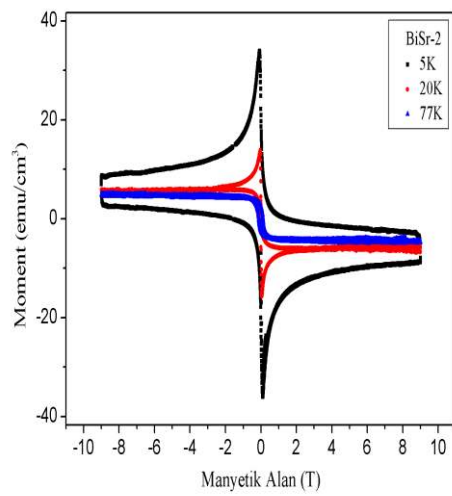
Şekil 4.17. MgO altlıklar üzerine üretilen 870 °C’ de **a)** 30 dk **b)** 30 dk+30 dk **c)** 75 dk **d)** 120 dk ısıtım işlem görmüş filmlere ait M-H grafikleri ($H \perp$ Film yüzeyi).

Manyetizasyon, sıcaklığın ve uygulanan manyetik alanın artması ile azalmıştır. Bu durum flux ların hareketine bağlanabilir. Düşük sıcaklıklarda flux çivilenmesi (flux pinning) güçlüdür ve flux lar kristal içine vorteksler olarak sızarlar. Sıcaklık arttıkça çivilenmenin neden olduğu manyetizasyon azalır [110]. Sıcaklığın yükselmesi ile süperiletken içindeki vorteks hareketi başlar, bu da flux ların manyetik düzenlenmesinde bozulmaya neden olur.

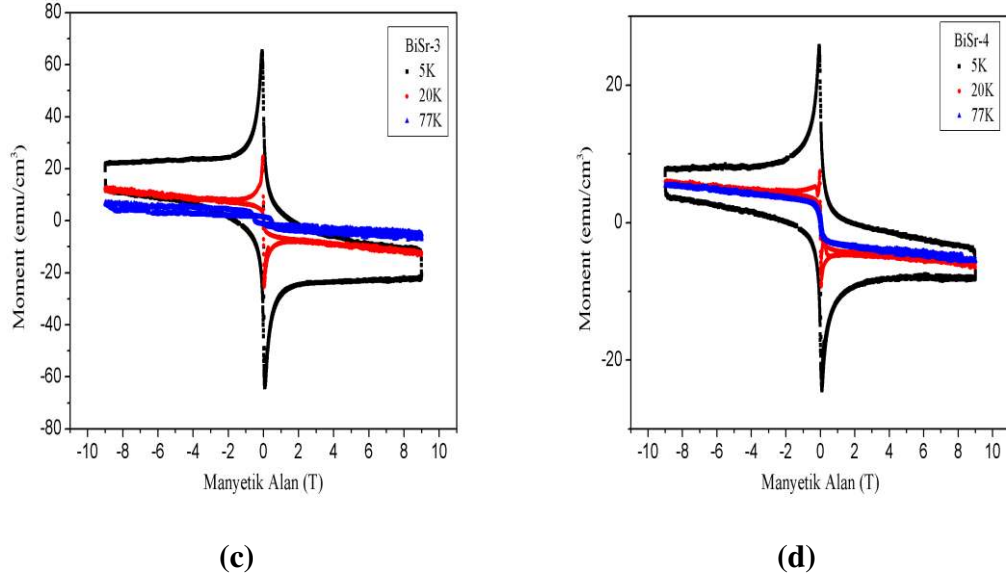
SrTiO₃ altlıklar üzerine kaplanan filmlerin M-H eğrileri Şekil 4.18’ de gösterilmektedir. Burada M-H ölçümleri 5 K, 20 K ve 77 K’ de manyetik alan film yüzeyine dik uygulanarak alınmıştır.



(a)



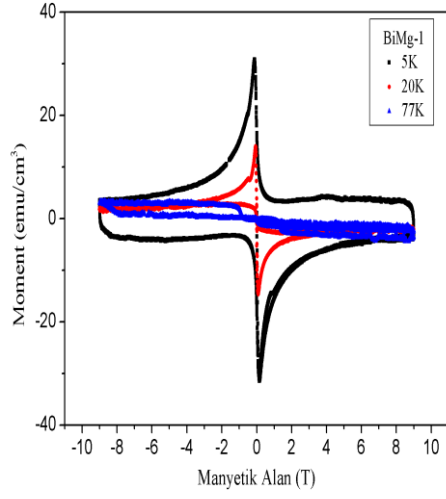
(b)



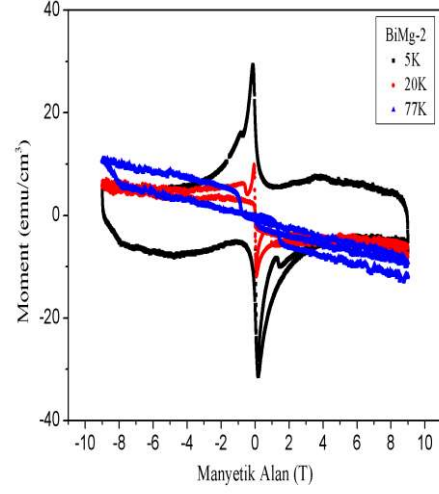
Şekil 4.18. *SrTiO₃ altlıklar üzerine üretilen 870 °C’ de a) 30 dk b) 30 dk+30 dk c) 75 dk d) 120 dk ısıtma işlem görmüş filmlere ait M-H grafikleri ($H \perp$ Film yüzeyi).*

SrTiO₃ altlık üzerine kaplanmış filmlerde de MgO (100) altlıklar üzerine kaplanmış filmlerdeki gibi manyetizasyon değeri sıcaklığın ve uygulanan manyetik alanın artması ile azalmıştır. Bu durum yine sıcaklığın ve manyetik alanın artması ile flux hareketine bağlanabilir [111-112].

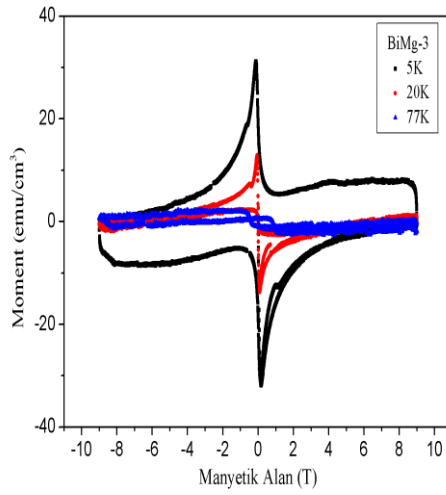
Film yüzeyine paralel manyetik alan uygulanarak ölçüm alınan MgO (100) ve SrTiO₃ altlıklar üzerine kaplanan filmlerin M-H eğrileri Şekil 4.19 ve Şekil 4.20’ de gösterilmektedir. M-H ölçümleri 3 farklı sıcaklıkta (5 K, 20 K ve 77 K) gerçekleştirilmiştir.



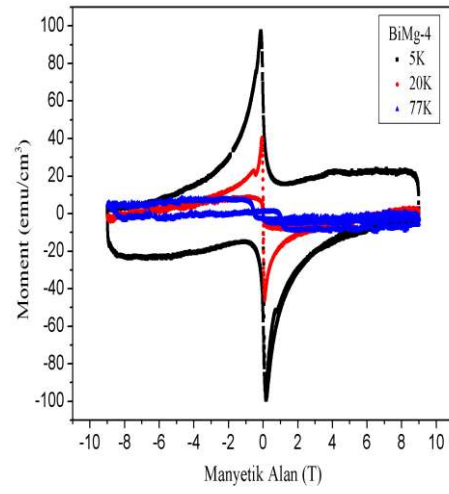
(a)



(b)

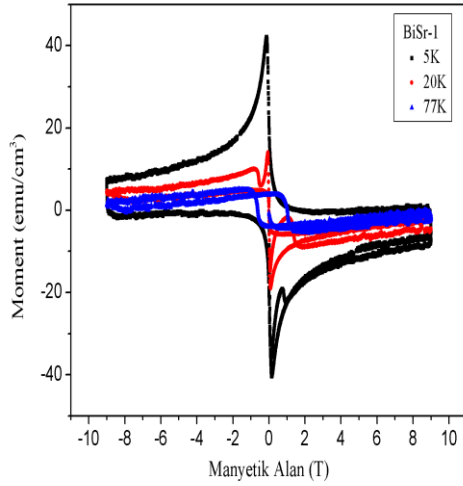


(c)

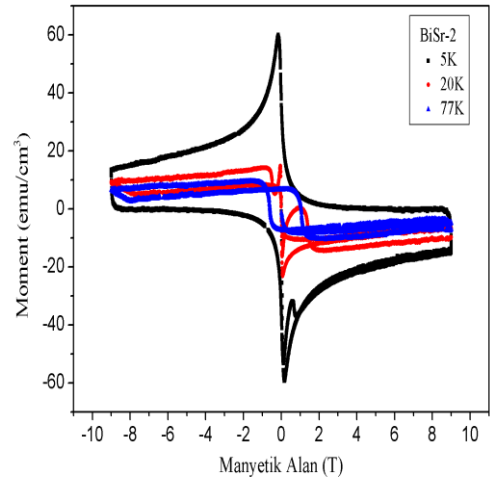


(d)

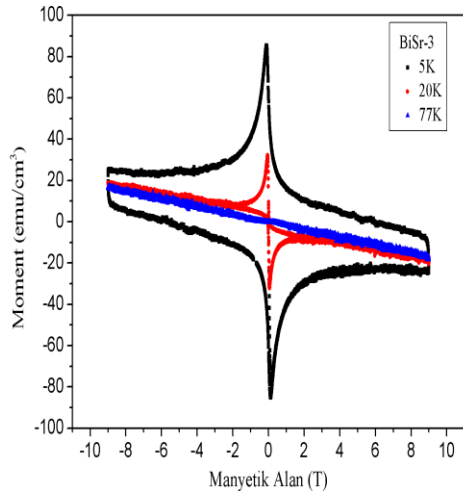
Şekil 4.19. MgO altlıklar üzerine üretilen 870°C ' de **a)** 30 dk **b)** 30 dk+30 dk **c)** 75 dk **d)** 120 dk ısıtıl işlem görmüş filmlere ait M-H grafikleri ($H // \text{Film yüzeyi}$).



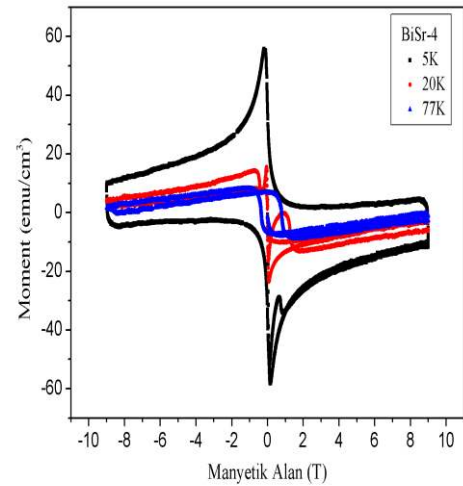
(a)



(b)



(c)



(d)

Şekil 4.20. SrTiO_3 altlıklar üzerine üretilen 870°C ' de **a)** 30 dk **b)** 30 dk+30 dk **c)** 75 dk **d)** 120 dk ısıt işlem görmüş filmlere ait M-H grafikleri ($H \parallel \text{Film yüzeyi}$).

$H \perp$ film yüzeyi için manyetizasyon değerlerinin $H \parallel$ film yüzeyi için olan manyetizasyon değerlerinden daha büyük olduğu görüldü. Bu durum eksensel anizotropiye bağlanabilir. Buna ilaveten, $H \parallel$ film yüzeyi için M-H eğrisinin şekli de değişti. Bu tipten bir davranış kristallerin film yüzeyine normal olacak şekilde büyümelerinden kaynaklanmaktadır. Aynı zamanda intrinsic çivilenme de filmlerde baskın rol oynar ve bu tip bir davranışa neden olabilir [113-115].

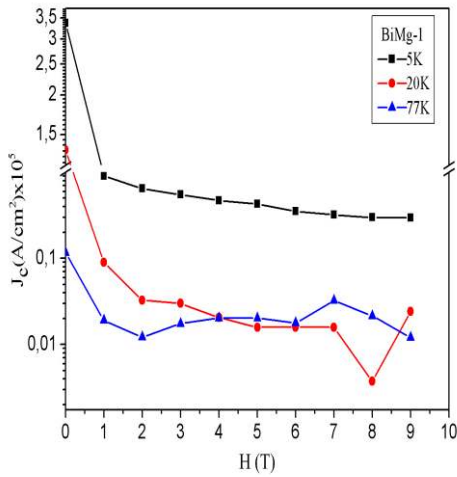
4.6. Kritik Akım Yoğunluğu Hesaplamaları

Aynı ısıtım işlem sıcaklığında farklı sürelerde ısıtım işlem görmüş BSCCO filmlerinin J_c değerleri M-H dataları kullanılarak hesaplandı. Filmlerin J_c değerleri denklem 4.1’ de verilen Bean modeli kullanılarak hesaplanmıştır [116-117];

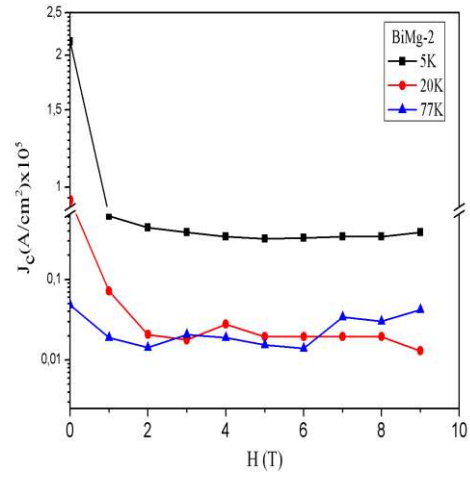
$$J_c = \frac{20 \Delta M}{\left[a \left(1 - \frac{a}{3b} \right) \right]} \quad (4.2)$$

Burada ΔM değeri histeresiz eğrisinden elde edilen $M_+ - M_-$ (M_+ pozitif manyetizasyonu ve M_- negatif manyetizasyonu gösterir) değerine karşılık gelen mıknatıslanma değeri, a ve b ise filmlerin boyutlarıdır.

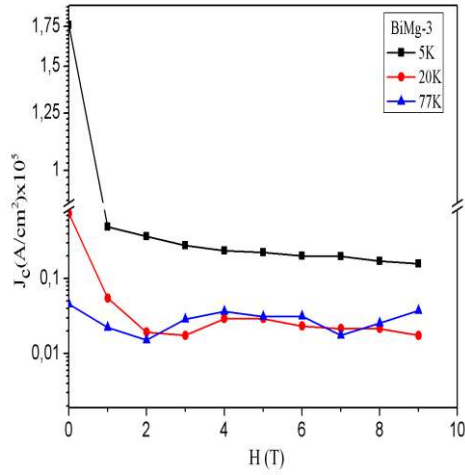
MgO (100) altlıklar üzerine kaplanan filmlerin ($H \perp$ film yüzeyi) J_c -H eğrileri Şekil 4.21’ de ve hesaplanan kritik akım yoğunluğu değerleri ise Tablo 4.4’ de gösterilmektedir.



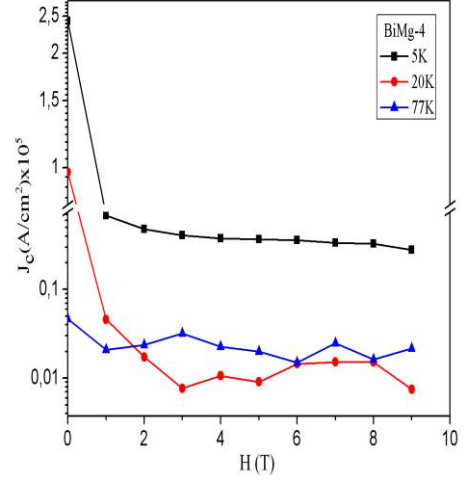
(a)



(b)



(c)



(d)

Şekil 4.21. $H \perp$ Film yüzeyi için MgO (100) altlık üzerinde **a)** 870 °C' de 30 dk **b)** 870 °C' de 30 dk+870 °C' de 30 dk **c)** 870 °C' de 75 dk **d)** 870 °C' de 120 dk ısıtıl işlem görmüş filmlere ait J_c - H eğrileri.

Tablo 4.4. MgO (100) altlık üzerinde üretilen filmlerin sıcaklık ve manyetik alana bağlı J_c değerleri ($H \perp$ Film yüzeyi).

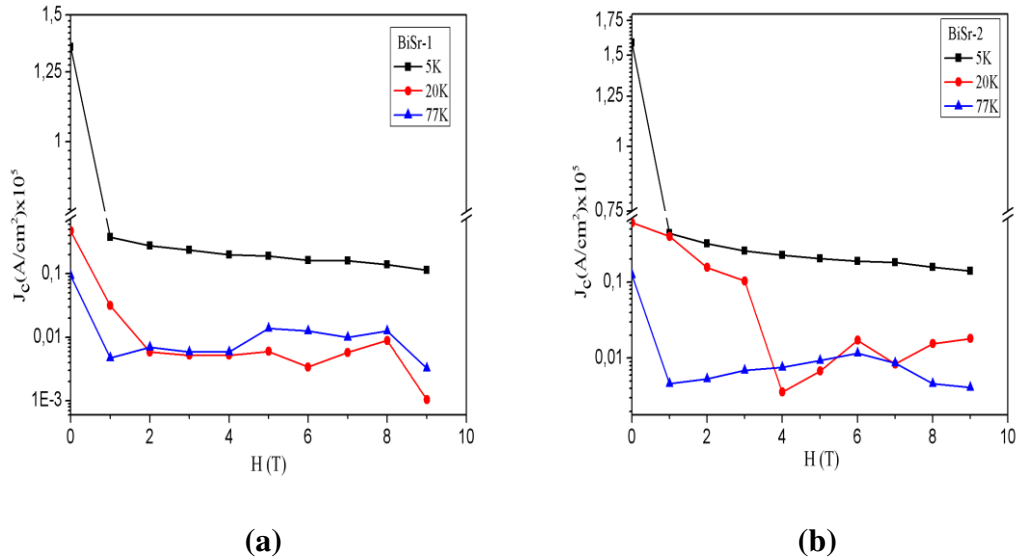
Film	H(T)	5K	20K	77K
BiMg-1	0T	3.364×10^5	1.341×10^5	1.166×10^4
	1T	0.904×10^5	0.898×10^4	0.190×10^4
	2T	0.646×10^5	0.327×10^4	0.121×10^4
	3T	0.548×10^5	0.301×10^4	0.174×10^4
	4T	0.471×10^5	0.205×10^4	0.202×10^4
	5T	0.425×10^5	0.159×10^4	0.202×10^4
	6T	0.350×10^5	0.159×10^4	0.177×10^4
	7T	0.320×10^5	0.159×10^4	0.324×10^4
	8T	0.297×10^5	0.374×10^3	0.214×10^4
	9T	0.296×10^5	0.243×10^4	0.120×10^4
	0T	2.151×10^5	0.934×10^5	0.484×10^4
	1T	0.610×10^5	0.717×10^4	0.189×10^4

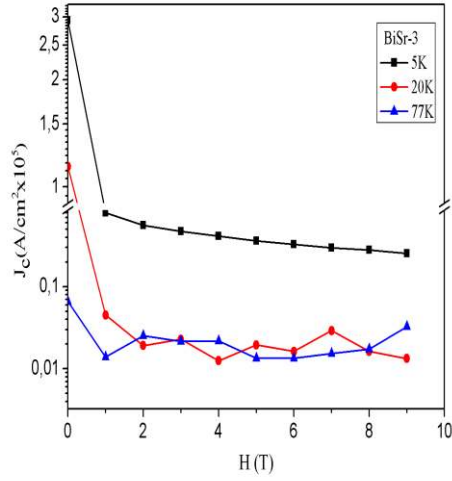
BiMg-2	2T	0.441x10 ⁵	0.207x10 ⁴	0.141x10 ⁴
	3T	0.384x10 ⁵	0.177x10 ⁴	0.207x10 ⁴
	4T	0.338x10 ⁵	0.278x10 ⁴	0.189x10 ⁴
	5T	0.318x10 ⁵	0.194x10 ⁴	0.153x10 ⁴
	6T	0.326x10 ⁵	0.194x10 ⁴	0.138x10 ⁴
	7T	0.339x10 ⁵	0.194x10 ⁴	0.340x10 ⁴
	8T	0.339x10 ⁵	0.194x10 ⁴	0.301x10 ⁴
	9T	0.386x10 ⁵	0.129x10 ⁴	0.421x10 ⁴
BiMg-3	0T	1.759x10 ⁵	0.741x10 ⁴	0.459x10 ⁴
	1T	0.494x10 ⁵	0.550x10 ⁴	0.222x10 ⁴
	2T	0.364x10 ⁵	0.193x10 ⁴	0.151x10 ⁴
	3T	0.276x10 ⁵	0.175x10 ⁴	0.287x10 ⁴
	4T	0.235x10 ⁵	0.291x10 ⁴	0.364.x10 ⁴
	5T	0.223x10 ⁵	0.291x10 ⁴	0.309x10 ⁴
	6T	0.200x10 ⁵	0.233x10 ⁴	0.314x10 ⁴
	7T	0.199x10 ⁵	0.215x10 ⁴	0.175x10 ⁴
	8T	0.170x10 ⁵	0.215x10 ⁴	0.256x10 ⁴
	9T	0.158x10 ⁵	0.175x10 ⁴	0.372x10 ⁴
BiMg-4	0T	2.427x10 ⁵	0.972x10 ⁵	0.465x10 ⁴
	1T	0.679x10 ⁵	0.458x10 ⁴	0.209x10 ⁴
	2T	0.476x10 ⁵	0.172x10 ⁴	0.235x10 ⁴
	3T	0.406x10 ⁵	0.768x10 ³	0.320x10 ⁴
	4T	0.373x10 ⁵	0.106x10 ⁴	0.227x10 ⁴
	5T	0.366x10 ⁵	0.908x10 ³	0.198x10 ⁴

6T	0.359×10^5	0.144×10^4	0.150×10^4
7T	0.335×10^5	0.151×10^4	0.246×10^4
8T	0.327×10^5	0.151×10^4	0.161×10^4
9T	0.280×10^5	0.751×10^3	0.216×10^4

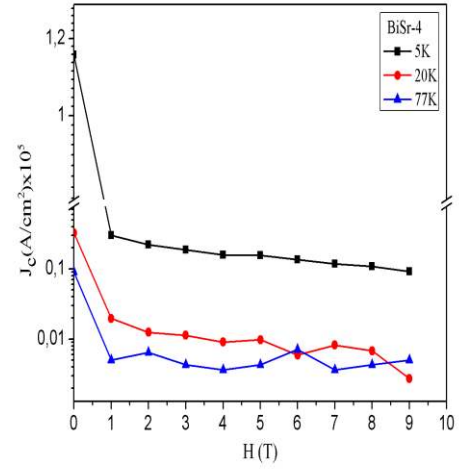
$H \perp$ Film yüzeyi için MgO (100) altlık üzerinde üretilmiş filmler içerisinde en büyük J_c değeri BiMg-1 filmi için 0 T manyetik alan altında ve 5 K sıcaklıkta 3.36×10^5 Acm⁻² olarak elde edilmiştir. BiMg-1 filmindeki tanecikli oluşum yapıdaki flux çivilenmesi miktarını arttırmaktadır ve bu da J_c ' de bir artmaya neden olmaktadır. Filmlerin J_c değerleri exponansiyel manyetik alan bağılılığı sergilemektedir. Flux ların intrinsic çivilenme durumu J_c ' deki bu exponansiyel davranıştan sorumludur. Filmlerin J_c ' si sıcaklıkla azalmıştır. Sıcaklık arttıkça flux ların hareket etmesi J_c ' de azalmaya neden olmuştur.

SrTiO₃ altlıklar üzerine kaplanan filmlerin ($H \perp$ Film yüzeyi) J_c -H eğrileri Şekil 4.22' de ve hesaplanan kritik akım yoğunluğu değerleri ise Tablo 4.5' de gösterilmektedir.





(c)



(d)

Şekil 4.22. $H \perp$ Film yüzeyi için SrTiO_3 altlık üzerinde **a)** 870°C ' de 30 dk **b)** 870°C ' de 30 dk+ 870°C ' de 30 dk **c)** 870°C ' de 75 dk **d)** 870°C ' de 120 dk ısıt işlem görmüş filmlere ait J_c - H eğrileri.

Tablo 4.5. SrTiO_3 altlık üzerinde üretilen filmlerin sıcaklık ve manyetik alana bağlı J_c değerleri ($H \perp$ Film yüzeyi).

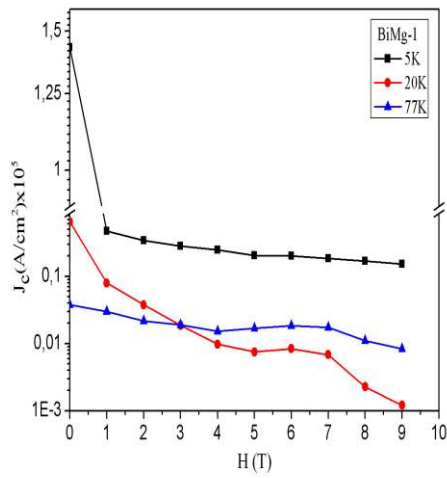
Film	H(T)	5K	20K	77K
BiSr-1	0T	1.353×10^5	0.469×10^5	0.927×10^4
	1T	0.375×10^5	0.314×10^4	0.471×10^3
	2T	0.276×10^5	0.583×10^3	0.696×10^3
	3T	0.235×10^5	0.519×10^3	0.583×10^3
	4T	0.200×10^5	0.519×10^3	0.583×10^3
	5T	0.189×10^5	0.598×10^3	0.137×10^4
	6T	0.163×10^5	0.340×10^3	0.125×10^4
	7T	0.159×10^5	0.576×10^3	0.988×10^3
	8T	0.140×10^5	0.890×10^3	0.125×10^4
	9T	0.113×10^5	0.104×10^3	0.324×10^3
	0T	1.584×10^5	0.602×10^5	0.123×10^5
	1T	0.437×10^5	0.398×10^5	0.464×10^3

BiSr-2	2T	0.321x10 ⁵	0.155x10 ⁵	0.530x10 ³
	3T	0.257x10 ⁵	0.103x10 ⁵	0.690x10 ³
	4T	0.226x10 ⁵	0.358x10 ³	0.756x10 ³
	5T	0.203x10 ⁵	0.676x10 ³	0.929x10 ³
	6T	0.189x10 ⁵	0.171x10 ⁴	0.115x10 ⁴
	7T	0.180x10 ⁵	0.836x10 ³	0.862x10 ³
	8T	0.158x10 ⁵	0.155x10 ⁴	0.464x10 ³
	9T	0.139x10 ⁵	0.191x10 ⁴	0.411x10 ³
BiSr-3	0T	2.934x10 ⁵	1.140x10 ⁵	0.659x10 ⁴
	1T	0.794x10 ⁵	0.451x10 ⁴	0.139x10 ⁴
	2T	0.559x10 ⁵	0.192x10 ⁴	0.251x10 ⁴
	3T	0.469x10 ⁵	0.229x10 ⁴	0.216x10 ⁴
	4T	0.415x10 ⁵	0.125x10 ⁴	0.218x10 ⁴
	5T	0.359 x10 ⁵	0.194x10 ⁴	0.135x10 ⁴
	6T	0.326x10 ⁵	0.162x10 ⁴	0.134x10 ⁴
	7T	0.297x10 ⁵	0.162x10 ⁴	0.153x10 ⁴
	8T	0.280x10 ⁵	0.161x10 ⁴	0.172x10 ⁴
	9T	0.253x10 ⁵	0.133x10 ⁴	0.326x10 ⁴
BiSr-4	0T	1.154x10 ⁵	0.326x10 ⁵	0.903x10 ⁴
	1T	0.301x10 ⁵	0.197x10 ⁴	0.499x10 ⁴
	2T	0.219x10 ⁵	0.125x10 ⁴	0.648x10 ³
	3T	0.186x10 ⁵	0.113x10 ⁴	0.432x10 ³
	4T	0.159x10 ⁵	0.908x10 ³	0.366x10 ³
	5T	0.155x10 ⁵	0.978x10 ³	0.432x10 ³

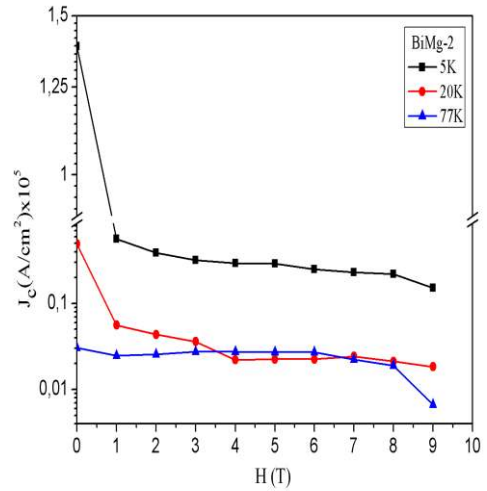
6T	0.134×10^5	0.593×10^3	0.715×10^3
7T	0.118×10^5	0.821×10^3	0.366×10^3
8T	0.108×10^5	0.681×10^3	0.432×10^3
9T	0.912×10^5	0.275×10^3	0.499×10^3

H $\perp$ Film yüzeyi için SrTiO₃ altlık üzerine üretilmiş filmler içerisinde en büyük J_c değeri BiSr-3 filmi için 5 K sıcaklığında ve 0 T manyetik alan altında 2.93×10^5 Acm⁻² olarak bulunmuştur. Uygulanan manyetik alan değeri arttıkça manyetizasyon farkının azaldığı ve filmlerin taşıyabileceği maksimum akım değerinin de azaldığı görülmüştür.

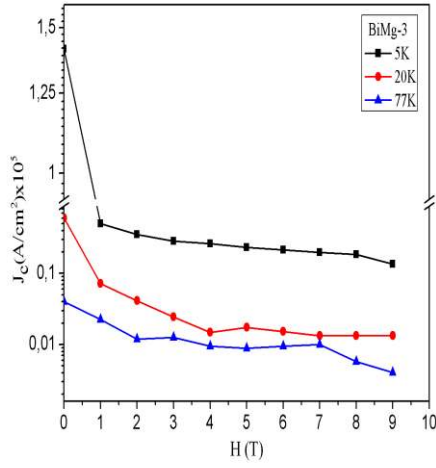
MgO (100) altlıklar üzerine kaplanan filmlerin (H// Film yüzeyi) J_c-H eğrileri Şekil 4.23' de ve hesaplanan kritik akım yoğunluğu değerleri ise Tablo 4.6' da gösterilmektedir.



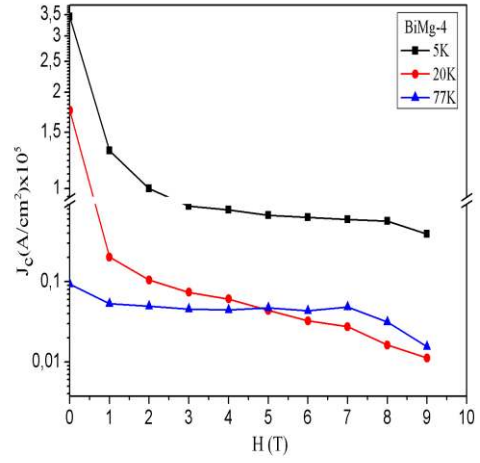
(a)



(b)



(c)



(d)

Şekil 4.23. $H //$ Film yüzeyi için MgO (100) altlık üzerinde **a)** 870°C ' de 30 dk **b)** 870°C ' de 30 dk + 870°C ' de 30 dk **c)** 870°C ' de 75 dk **d)** 870°C ' de 120 dk ısıtılmış filmlere ait J_c - H eğrileri.

Tablo 4.6. MgO (100) altlık üzerinde üretilen filmlerin sıcaklık ve manyetik alana bağlı J_c değerleri ($H //$ Film yüzeyi).

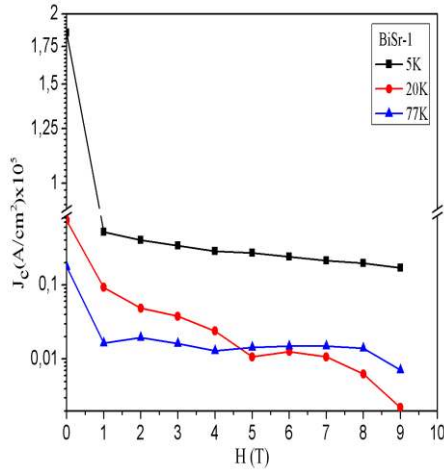
Film	H(T)	5K	20K	77K
BiMg-1	0T	1.430×10^5	0.647×10^5	0.379×10^4
	1T	0.472×10^5	0.792×10^4	0.298×10^4
	2T	0.342×10^5	0.376×10^4	0.215×10^4
	3T	0.281×10^5	0.186×10^4	0.190×10^4
	4T	0.246×10^5	0.978×10^3	0.152×10^4
	5T	0.203×10^5	0.751×10^3	0.168×10^4
	6T	0.199×10^5	0.838×10^3	0.183×10^4
	7T	0.182×10^5	0.681×10^3	0.174×10^4
	8T	0.168×10^5	0.227×10^3	0.110×10^4
	9T	0.151×10^5	0.121×10^3	0.835×10^3
	0T	1.387×10^5	0.492×10^5	0.306×10^4
	1T	0.563×10^5	0.558×10^4	0.248×10^4

BiMg-2	2T	0.390x10 ⁵	0.436x10 ⁴	0.255x10 ⁴
	3T	0.320x10 ⁵	0.360x10 ⁴	0.275x10 ⁴
	4T	0.295x10 ⁵	0.221x10 ⁴	0.275x10 ⁴
	5T	0.290x10 ⁵	0.225x10 ⁴	0.271x10 ⁴
	6T	0.251x10 ⁵	0.225x10 ⁴	0.271x10 ⁴
	7T	0.229x10 ⁵	0.242x10 ⁴	0.221x10 ⁴
	8T	0.220x10 ⁵	0.211x10 ⁴	0.188x10 ⁴
	9T	0.151x10 ⁵	0.183x10 ⁴	0.668x10 ³
BiMg-3	0T	1.413x10 ⁵	0.604x10 ⁵	0.399x10 ⁴
	1T	0.499x10 ⁵	0.720x10 ⁴	0.223x10 ⁴
	2T	0.353x10 ⁵	0.414x10 ⁴	0.118x10 ⁴
	3T	0.284x10 ⁵	0.244x10 ⁴	0.125x10 ⁴
	4T	0.260x10 ⁵	0.148x10 ⁴	0.951x10 ³
	5T	0.232x10 ⁵	0.174x10 ⁴	0.881x10 ³
	6T	0.215x10 ⁵	0.152x10 ⁴	0.951x10 ³
	7T	0.198x10 ⁵	0.133x10 ⁴	0.995x10 ³
	8T	0.183x10 ⁵	0.133x10 ⁴	0.577x10 ³
	9T	0.134x10 ⁵	0.133x10 ⁴	0.405x10 ³
BiMg-4	0T	3.445x10 ⁵	1.754x10 ⁵	0.938x10 ⁴
	1T	1.314x10 ⁵	0.202x10 ⁵	0.530x10 ⁴
	2T	0.999x10 ⁵	0.104x10 ⁵	0.494x10 ⁴
	3T	0.868x10 ⁵	0.734x10 ⁴	0.457x10 ⁴
	4T	0.787x10 ⁵	0.607x10 ⁴	0.446x10 ⁴
	5T	0.672x10 ⁵	0.436x10 ⁴	0.471x10 ⁴

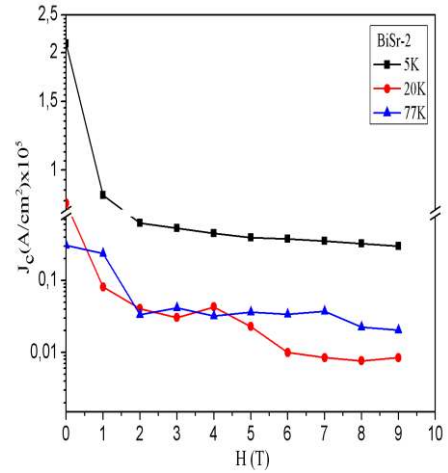
6T	0.632×10^5	0.324×10^4	0.435×10^4
7T	0.593×10^5	0.274×10^4	0.485×10^4
8T	0.566×10^5	0.162×10^4	0.313×10^4
9T	0.393×10^5	0.112×10^4	0.155×10^4

$H \perp$ Film yüzeyi için MgO (100) altlıklar üzerine kaplanan tüm filmlerde sıcaklığın artması ile kritik akım yoğunluğu değerlerinde azalma görülmektedir. MgO altlık üzerinde üretilmiş filmlerde en büyük J_c değerini BiMg-4 filmi için 0 T manyetik alan altında ve 5 K sıcaklıkta $3.44 \times 10^5 \text{ Acm}^{-2}$ olarak hesaplanmıştır.

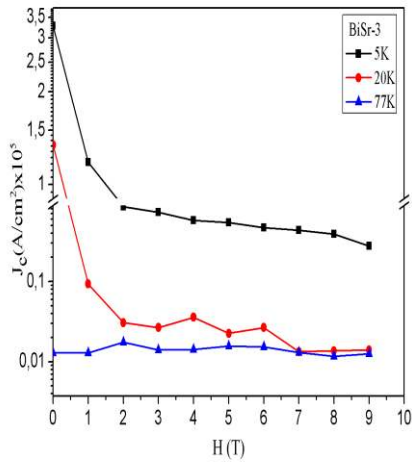
SrTiO₃ altlıklar üzerine kaplanan filmlerin ($H //$ Film yüzeyi) J_c -H eğrileri Şekil 4.24' de ve hesaplanan kritik akım yoğunluğu değerleri ise Tablo 4.7' de gösterilmektedir.



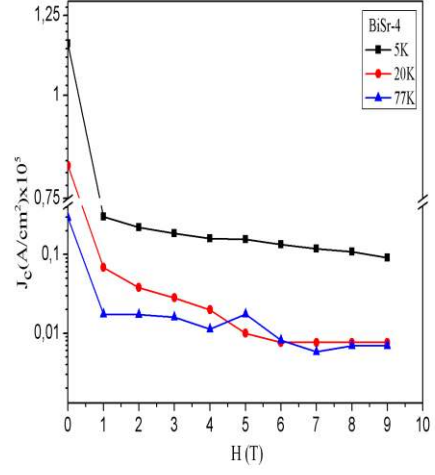
(a)



(b)



(c)



(d)

Şekil 4.24. $H //$ Film yüzeyi için SrTiO_3 altlık üzerinde **a)** 870°C ' de 30 dk **b)** 870°C ' de 30 dk + 870°C ' de 30 dk **c)** 870°C ' de 75 dk **d)** 870°C ' de 120 dk ısıtış işlem görmüş filmlere ait J_c - H eğrileri.

Tablo 4.7. SrTiO_3 altlık üzerinde üretilen filmlerin sıcaklık ve manyetik alana bağlı J_c değerleri ($H //$ Film yüzeyi).

Film	H(T)	5K	20K	77K
BiSr-1	0T	1.851×10^5	0.744×10^5	0.177×10^5
	1T	0.520×10^5	0.927×10^4	0.164×10^4
	2T	0.404×10^5	0.485×10^4	0.194×10^4
	3T	0.337×10^5	0.378×10^4	0.163×10^4
	4T	0.286×10^5	0.239×10^4	0.128×10^4
	5T	0.269×10^5	0.106×10^4	0.143×10^4
	6T	0.241×10^5	0.126×10^4	0.149×10^4
	7T	0.213×10^5	0.106×10^4	0.149×10^4
	8T	0.197×10^5	0.631×10^3	0.140×10^4
	9T	0.170×10^5	0.222×10^3	0.708×10^3
	0T	2.109×10^5	0.821×10^5	0.308×10^5
	1T	0.862×10^5	0.807×10^4	0.237×10^5

BiSr-2	2T	0.628x10 ⁵	0.405x10 ⁴	0.333x10 ⁴
	3T	0.530x10 ⁵	0.305x10 ⁴	0.417x10 ⁴
	4T	0.450x10 ⁵	0.427x10 ⁴	0.321x10 ⁴
	5T	0.394x10 ⁵	0.228x10 ⁴	0.361x10 ⁴
	6T	0.378x10 ⁵	0.998x10 ³	0.336x10 ⁴
	7T	0.354x10 ⁵	0.847x10 ³	0.371x10 ⁴
	8T	0.322x10 ⁵	0.763x10 ³	0.225x10 ⁴
	9T	0.298x10 ⁵	0.847x10 ⁵	0.203x10 ⁴
BiSr-3	0T	3.375x10 ⁵	1.345x10 ⁵	0.129x10 ⁴
	1T	1.180x10 ⁵	0.933x10 ⁴	0.129x10 ⁴
	2T	0.859x10 ⁵	0.307x10 ⁴	0.174x10 ⁴
	3T	0.725x10 ⁵	0.266x10 ⁴	0.139x10 ⁴
	4T	0.577x10 ⁵	0.359x10 ⁴	0.142x10 ⁴
	5T	0.546x10 ⁵	0.225x10 ⁴	0.156x10 ⁴
	6T	0.466x10 ⁵	0.266x10 ⁴	0.152x10 ⁴
	7T	0.433x10 ⁵	0.133x10 ⁴	0.130x10 ⁴
	8T	0.389x10 ⁵	0.136x10 ⁴	0.116x10 ⁴
	9T	0.277x10 ⁵	0.140x10 ⁴	0.126x10 ⁴
BiSr-4	0T	2.396x10 ⁵	0.822x10 ⁵	0.294x10 ⁵
	1T	0.833x10 ⁵	0.685x10 ⁴	0.174x10 ⁴
	2T	0.611x10 ⁵	0.380x10 ⁴	0.171x10 ⁴
	3T	0.520x10 ⁵	0.281x10 ⁴	0.160x10 ⁴
	4T	0.420x10 ⁵	0.199x10 ⁴	0.113x10 ⁴
	5T	0.411x10 ⁵	0.996x10 ³	0.174x10 ⁴

6T	0.383×10^5	0.761×10^3	0.817×10^3
7T	0.342×10^5	0.761×10^3	0.584×10^3
8T	0.328×10^5	0.761×10^3	0.689×10^3
9T	0.267×10^5	0.761×10^3	0.689×10^3

H $\perp$ Film yüzeyi için SrTiO₃ altlık üzerinde üretilmiş filmler içerisinde en büyük J_c değeri BiSr-3 (870 °C’ de 75 dk ısıtıl işlem görmüş) filmi için 0 T manyetik alan altında ve 5 K sıcaklıkta 3.37×10^5 Acm⁻² olarak elde edilmiştir. BiSr-3 filmindeki tanecikli oluşum yapıdaki flux çivilenmesi miktarını arttırmaktadır ve bu da J_c değerinin artmasını sağlamaktadır.

5. SONUÇ ve YORUM

Bu tezde Ultrasonik Sprey Piroliz (USP) yöntemi kullanılarak MgO (100) ve SrTiO₃ altlıklar üzerine BiSrCaCuO (BSCCO) filmler hazırlanmıştır. Elde edilen filmlerin yapısal/ mikroyapısal, elektriksel ve manyetik özellikleri araştırılmıştır.

MgO (100) ve SrTiO₃ altlık üzerine kaplanmış BSCCO filmlerin XRD sonuçlarına göre, değişik ısıtma sürelerinde hazırlanmış bütün filmlerde Bi-2212 ve Bi-2223 aynı zamanda safsızlık fazlarının da oluştuğu belirlenmiştir. En şiddetli pik 870 °C’ de 30 dakika + 870 °C’ de 30 dakika ısıtma işlem görmüş (BiMg-2 ve BiSr-2) filmler için elde edilmiştir. Bu durum en iyi kristalleşmenin bu filmlerde olduğunu ortaya koymaktadır.

MgO (100) ve SrTiO₃ altlıklarda ısıtma sürelerinin değiştirilmesi ile mikroyapıda değişiklikler meydana gelmiştir. SEM sonuçlarına göre ısıtma süresinin artırılmasıyla tanecikler arasındaki bağların kuvvetlendiği görülmüştür. Genel olarak BiMg-2 ve BiSr-2 filmlerinde oldukça büyük kesit alanına sahip, levha şeklinde kristallerin oluştuğu gözlenmiştir. Bu tip bir morfoloji düşük açılı kristaller arası sınırlardan dolayı süperiletken filmlerde tercih edilen bir kristal yapılanıdır. SEM sonuçlarından bulunan film kalınlıklarının her iki altlık üzerine kaplanan filmler için hemen hemen aynı olduğu görülmüş ve bu durum hazırlama şartlarının (başlangıçta her iki altlığı da beş kaplama yapılarak) benzer olduğu doğrulanmıştır.

Direnç-sıcaklık ölçümlerinde MgO (100) ve SrTiO₃ altlıklar üzerine üretilen filmlerin birçoğu çift fazlı süperiletken geçiş gösterdikleri gözlenmiştir. Filmler oda sıcaklığından T_c sıcaklığına kadar metalik davranış göstermiştir. Filmlerin T_c değerleri 73 K-87 K arasında elde edilmiştir. Manyetizasyon eğrisinden bulunan T_c sıcaklığına kıyasla öz direnç-sıcaklık eğrisinden bulunan T_c sıcaklığı daha yüksek değerlerde elde edilmiştir.

Genel olarak M-H ölçüm sonuçlarına göre filmin manyetizasyon değeri, sıcaklık azaldıkça artmaktadır. Bunun sebebi, sıcaklığın düşmesiyle çivileme kuvvetinin artmasıdır. Dolayısıyla akı girdaplarının sürüklenmesi azalmaktadır. Bu durum da filmlerin mıknatıslanma değerini yükselmekte ve daha büyük manyetik alanlara karşı süperiletkenlik özelliğini koruyabilmektedir.

Filmlerin M-H eğrileri incelendiğinde MgO (100) ve SrTiO₃ altlıklar üzerine kaplanan filmlerin M-H ölçümleri 5 K, 20 K ve 77 K’ de manyetik alan film yüzeyine dik ve paralel uygulanarak alınmıştır. Her bir filmde manyetizasyon değerleri sıcaklığın

ve manyetik alanın artışı ile büyük oranda azalmıştır. Bu durum sıcaklığın ve manyetik alanın artması ile flux çivilenmesi kuvvetinde azalmaya dolayısı ile flux ların hareketine bağlanmıştır.

Filmlerin kritik akım yoğunluğu (J_c) Bean formülü kullanılarak hesaplanmıştır. MgO (100) altlıklar üzerine kaplanan filmlerde en iyi J_c değeri H // Film yüzeyinde 5 K' de 0 T manyetik alanda BiMg-4 (870 °C' de 120 dk ısıtım işlem gören) filminde $3.44 \times 10^5 \text{ Acm}^{-2}$ ve SrTiO₃ altlıklar üzerine kaplanan filmlerde en iyi J_c değeri ise H // Film yüzeyinde 5 K' de 0 T manyetik alanda BiSr-3 (870 °C' de 75 dk ısıtım işlem gören) filminde $3.37 \times 10^5 \text{ Acm}^{-2}$ olarak elde edilmiştir. Histerisiz ilmeği geniş olduğunda tuzaklama şiddetinin büyük olduğu dolayısıyla kritik akım yoğunluğu değerinin de büyük olduğu görülmüştür. Buradan kritik akım yoğunluğu J_c ' nin süperiletken bir malzeme içerisindeki kusurlar ile ilişkili olduğu ve yüksek J_c değerinin malzemelerdeki yüksek akı çivilenmesinin varlığını gösterdiği anlaşılmaktadır. Buna bağlı olarak da sistemdeki çivileme etkisinin düşük sıcaklıklarda daha güçlü olduğu sonucuna ulaşılabilmektedir.

Genel olarak USP yöntemi basit, kullanışlı, herhangi bir adımda vakum gerektirmeyen ve düşük donanım maliyetine sahip bir yöntemdir. Bundan dolayı teknolojik uygulama alanlarında büyük avantajlar sağlamaktadır.

6. REFERANSLAR

- [1] H.K. Onnes, **Leiden Communications**, 120b, 122b, 124c, (1911)
- [2] H.K. Onnes, *Sur' les resistances electriques communications from the Physical Laboratory of University of Lieden*, **Supplement**, 29 (1911) 1
- [3] H.K. Onnes, **Leiden Communications**, 140b, c 141b (1913)
- [4] W. Meissner, H. Franz, *Supraleitfähigkeit von Niobium*, *Physicalisch-Technische Reichsanstalt, Mitteilung*, (1930) 558-559
- [5] W. Meissner, R. Ochsenfeld, **Naturwissenschaften**, 21 (1933) 787
- [6] F. London, H. London, **Proceeding of the Royal Society**, 71 (1935) 149
- [7] E. Maxwell, **Physical Review**, 78 (1950) 477
- [8] C.A. Reynolds, B. Serin, W.H. Wright, and L.B. Nesbitt, **Physical Review**, 78, (1950) 487
- [9] V.L. Ginzburg, L.D. Landau, **Journal of Experimental and Theoretical Physics**, 18 (1950) 241
- [10] J. Bardeen, L. Cooper, J.R. Schrieffer, *Theory of superconductivity*, **Physical Review**, 108 (1957) 1175
- [11] B.D. Josephson, **Physical Letters**, 1:251 (1962)
- [12] J.R. Gavaler, M.A. Janocko, C.J. Jones, **Applied Physics Letters**, 23 (1973) 480-483
- [13] J.G. Bednorz, K.A. Müller, *Possible high- T_c superconductivity in the Ba-La-Cu-O system*, **Z. Phys. B.**, 64 (1986) 189
- [14] M.K. Wu, J.R. Ashborn, C.J. Torng, L.R. Meng, L. Gao, Z.J. Huang, Y.Q. Wang and C.W. Chu, *Superconductivity at 95K in a new mixed phase YBaCuO compounds at ambient pressure*, **Physical Review Letters**, 58 (1987) 908-1002
- [15] H. Maeda, Y. Tanaka, M. Fukutumi, T. Asano, *A new high- T_c oxide superconductor without a rare-earth element*, **Japanese Journal of Applied Physics**, 27 (1988) L209
- [16] M.R. Hazen, T.C. Prewith, R.J. Angel, N.L. Ross, L.W. Finger, C.G. Hadidiacos, D.R. Veblen, P.J. Heaney, P.H. Hor, R.L. Meng, Y.Y. Sun, Y.Q. Wang, Y.Y. Xue, Z.J. Huang, L. Gao, J. Bechtold and C.W. Chu, *Superconductivity in the high- T_c BiSrCaCuO system and phase identification*, **Physical Review Letters**, 60 (1988) 1174
- [17] S.N. Putilin, E.V. Antipov, O. Chmaisnen, M. Marezio, *Superconductivity at 94K in HgBa₂CuO_{4+d}*, **Nature**, 362 (1993) 226
- [18] C.W. Chu, L. Gao, F. Chen, Z.J. Huang, R.L. Meng, Y.Y. Xue, *Superconductivity above 150K in HgBa₂Ca₂Cu₃O_{8+d} at high pressures*, **Nature**, 365 (1993) 323
- [19] J. Nagamatsu, N. Nakagawa, T. Murakana, Y. Zenitani and J. Akimitsu, *Superconductivity at 39K in magnesium diboride*, **Nature**, 410 (2001) 63
- [20] P.M. Aswathy, J.B. Anooja, P.M. Sarun and U. Syamaprasad, *An overview on iron based superconductors*, **Superconductor Science Technology**, 23 (2010)
- [21] F.J. Owens and C.P. Poole, *The New Superconductors*, **Kluwer Academic Publishers** (2002) 40
- [22] A.C. Rose-Innes, E.H. Rhoderic, *Introduction to Superconductivity*, **Pergamon**, New York (1978) 5
- [23] A. Mourachkine, *Room-Temperature Superconductivity*, **Cambridge International Science Publishing**, United Kingdom (2004) 141
- [24] V.L. Ginzburg, E.A. Andryushin, *Superconductivity*, 5, 25-29
- [25] A. Mourachkine, *High-Temperature Superconductivity in Cuprates*, **Kluwer Academic Publishers** (2002)

- [26] L.N. Cooper, **Physical Review**, 104, (1956) 1189
- [27] M.A. Aksan, “Bi bazlı HT_c süperiletkenlerde fiziksel özellikler ile birlikte termoelektrik güç ve termal iletkenlik karakteristiklerinin incelenmesi” Doktora tezi, İnönü Üniversitesi, 2003
- [28] <http://library.thinkquest.org/08aug/02316/>
- [29] L.D. Landau, E.M. Lifshitz, *Statistical Physics*, **Pergaman Press**, Oxford (1976)
- [30] K.H. Bennemann, J.B. Ketterson, *Superconductivity; Conventional and Unconventional Superconductors*, **Springer-Verlag Berlin Heidelberg**, Germany (2008) 717-769
- [31] İ.N. Askerzade, *Süperiletkenlik Fiziğine Giriş*, **Gazi Kitabevi** (2005)
- [32] A.A. Abrikosov, **Sovient Physics JETP**, 5 (1957) 1174
- [33] P.W. Anderson, **Materials Research Bulletin**, 8 (1973) 153
- [34] A.K. Saxena, *High-Temperature Superconductors*, **Springer Heidelberg Dordrecht**, New York (2010) 123-210
- [35] M.E. Yakinci, " *Thick film glass-ceramic superconductor fabrication* " PhD thesis, University of Warwick, 1992
- [36] H. Kamimura, H. Ushio, S. Matsuno, T. Hamada, *Theory of Copper Oxide Superconductors*, **Spriger-Verlag Berlin Heidelberg**, Germany (2005) 9-11
- [37] K. Fossheim and A. Sudbo, *Superconductivity Physics and Applications*, **John Wiley & Sons**, England (2004) 37-39
- [38] P.J. Ford, G.A. Saunders, *The Rise of the Superconductors*, **CRC Press**, New York (2005) 53-62
- [39] Z.Z. Sheng, A.M. Hermann, *Superconductivity in the rare-earth-free Tl_δ - Ba_δ - Cu_δ -O system above liquid-nitrogen tempature*, **Nature**, 332 (1988) 55
- [40] Z.Z. Sheng, A.M. Hermann, *Bulk superconductivity at 120K in the Tl - Ca - Ba - Cu -O system*, **Nature**, 332 (1988) 138
- [41] M.R. Hazen, L.W. Finger, R.L. Angel, T.C. Prewitt, N.L. Ross and C.G. Hadidiacac, *100K Superconducting phases in the Tl - Ca - Ba - Cu -O system*, **Physics Review Letters**, 60 (1988) 1657
- [42] H. Kumakura, K. Togano, M. Uehara, H. Maeda, K. Takahasni and M. Nakao, *Magnetic properties and microstructure of sintered high- T_c Bi - Sr - Ca - Cu -O and Tl - Ca - Ba - Cu -O oxides*, **IEEE Transactions on Magnetism**, 25 (1989) 2546-2549
- [43] <http://accessscience.com/content/High-temperature-superconductivity/YB084240>
- [44] C.P. Poole, H.A. Farach, R.J. Creswick, R. Prozorov, *Superconductivity*, **Elsevier** (1995) 208-209
- [45] H. Koralay, “Farklı oranlarda vanadyum katkısı yapılmış Bi-tabanlı yüksek sıcaklık süperiletkenlerinin üretimi, yapısal ve fiziksel özelliklerinin incelenmesi” Doktora tezi, Gazi Üniversitesi, 2007
- [46] C.W. Mitchell, M. Hervieu, M.M. Borel, A. Grandin, F. Deslandes, J. Provost and B. Raveau, **Z. Phys. B** 4 (1986) 189
- [47] J.M. Tarascon, W.R. McKinnon, P. Barboux, D.M. Hwang, B.G. Bagley, L.H. Greene, G.W. Hull, Y. LePage, N. Stoffel, M. Giroud, *Preperation, structure, and properties of the superconducting compound series $Bi_2Sr_2Ca_{n-1}Cu_nO_y$ with $n=1, 2$ and 3*, **Physics Review B**, 38 (1988) 2504
- [48] Y. Fujiwara, S. Hirata, M. Nishikubo, T. Kobayashi, *Improved superconductivity in $BiSrCaCuO$ single crystals by lithium doping*, **IEEE Transactions on Magnetism**, 27 (1991) 1150
- [49] http://borneinstein.tripod.com/physics_engineering/thinfilmm.html

- [50] T. Ishibashi, T. Kawata, S. Yufune, K. Sato, *Improvement of surface morphology of $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$ thin films by using nano-structured SrTiO_3 thin films*, **Journal of Physics**, 43 (2006) 255-258
- [51] A.N. Jannah, S.A. Halim, H. Abdullah, *Superconducting properties of BSCCO thin films by pulsed laser deposition*, **European Journal of Scientific Research**, 29 (2009) 438-446
- [52] K. Seshan, *Handbook of thin-film deposition processes and techniques*, **Noyes Publications**, U.S.A. (2002) 14-37
- [53] http://en.wikipedia.org/wiki/Thin_film
- [54] P. Oldier, Z. Supardi, D.D. Barros, L. Vergnieres, J.R. Castellanos, J.M.G. Calbet, M.V. Regi, C. Villard, C. Peroz and F. Weiss, *Spray pyrolysis for high T_c superconductor films*, **Superconductor Science Technology**, 17 (2004) 1303-1310
- [55] N. Khare, *Handbook of high-temperature superconductor electronics*, **Marcel Dekker Inc.**, U.S.A. (2003) 18-4
- [56] H.J. Scheel, T. Fukuda, *Crystal growth technology*, **Springer**, New York (2003) 145-165
- [57] J. Will, A. Mitterdorfer, C. Kleinlogel, D. Perednis, L.J. Gauckler, *Fabrication of thin electrolytes for second-generation solid oxide fuel cells*, **Solid State Ionics**, 131 (2000) 79-96
- [58] M.E. Yakinci, in; M. Altunbaş, *II. Ulusal Yüksek Sıcaklık Süperiletkenler Sempozyumu*, Malatya, Temmuz 11-13 (2001), 28-38
- [59] http://en.wikipedia.org/wiki/Pulsed_laser_deposition
- [60] J.A. Venables, *Introduction to surface on thin film processes*, **Cambridge University Press**, New York (2000) 57-60
- [61] Y. Hakuraku, S. Koba, S. Higo, A. Nakao and T. Ogushi, *Ultrathin film preparation of superconducting $2223 \text{ Bi(Pb)SrCaCuO}$ by sputter deposition and rapid annealing*, **Superconductor Science Technology**, 9 (1996) 23-28
- [62] J.H. Park, *Chemical vapor deposition*, **ASM International**, Canada (2001) 23-26
- [63] H.J. Kim, J. Joo, S.G. Park, S.K. Hong, S.W. Lee, S.W. Lim, G.W. Hong, H.G. Lee, *Effect of deposition conditions on the phase formation of YBCO films prepared by spray pyrolysis method*, **Physica C**, 445-448 (2006) 598-602
- [64] J.W. Ko, J. Yoo, Y.K. Kim, K.C. Chung, S.I. Yoo, X.L. Wang, S.X. Dou, *MgB_2 powder preparation through a spray pyrolysis process*, **Physica C**, 445-448 (2006) 797-800
- [65] P.K. Siwach, H.K. Singh, O.N. Srivastava, *Magneto-transport characteristics of $\text{La}_{1.4}\text{Ca}_{1.6}\text{Mn}_2\text{O}_7$ thin film deposited by spray pyrolysis*, **Journal Physics D: Applied Physics**, 39 (2006) 3731-3737
- [66] A. Kumar, P. Singh, D. Kaur, *Low cost synthesis of high- T_c superconducting films on metallic substrates via ultrasonic spray pyrolysis*, **Cryogenics**, 46 (2006) 749-758
- [67] D. Perednis, L.J. Gauckler, *Thin film deposition spray pyrolysis*, **Journal of Electroceramics**, 14 (2005) 103-111
- [68] M.A. Montero, M.R.G. Chialvo, A.C. Chialvo, *Preparation of gold nanoparticles supported on glassy carbon by direct spray pyrolysis*, **Journal of Materials Chemistry**, 19 (2009) 3276-3280
- [69] K.C. Pingali, D.A. Rockstraw and S. Deng, *Silver nanoparticles from ultrasonic spray pyrolysis of aqueous silver nitrate*, **Aerosol Science and Technology**, 39 (2005) 1010-1014

- [70] S.E. Skrabalak, *Porous materials prepared by ultrasonic spray pyrolysis*, **Journal of the American Chemical Society**, 128 (2006) 12642-12643
- [71] D. Janackovic, V. Jokanovic, C.K. Gvozdeovic, D. Uskokovic, *Synthesis of mullite nanostructured spherical powder by ultrasonic spray pyrolysis*, **Nano Structured Materials**, 10 (1998) 341-348
- [72] T. Fukui, S. Ohara, M. Naito, K. Nogi, *Synthesis NiO-YSZ composite particles for an electrode of solid oxide fuel cells by spray pyrolysis*, **Powder Technology**, 132 (2003) 52-56
- [73] Y.L. Song, S.C. Tsai, C.Y. Chen, T.K. Tseng, C.S. Tsai, J.W. Chen and Y.S. Yao, *Ultrasonic spray pyrolysis for synthesis of spherical zirconia particles*, **Journal of the American Ceramic Society**, 87 (2004) 1864-1871
- [74] C.Y. Chen, T.K. Tseng, S.C. Tsai, C.K. Lin, H.M. Lin, *Effect of precursor characteristics on zirconia and ceria particle morphology in spray pyrolysis*, **Ceramics International**, 34 (2008) 409-416
- [75] M. Okuya, K. Shiozaki, N. Horikawa, T. Kosugi, G.R.A. Kumara, J. Madarasz, S. Kaneko, G. Pokol, *Porous TiO₂ thin films prepared by spray pyrolysis deposition (SPD) technique and their application to UV sensors*, **Solid State Ionics**, 172 (2004) 527-531
- [76] S.C. Tsai, Y.L. Song, C.S. Tsai, C.C. Yang, W.Y. Chiu, H.M. Lin, *Ultrasonic Spray pyrolysis for nanoparticles synthesis*, **Journal of Materials Science**, 39 (2004) 3647-3657
- [77] J.M. Bian, X.M. Li, T.L. Chen, X.D. Gao, W.V. Yu, *Preparation of high quality MgO thin films by ultrasonic spray pyrolysis*, **Applied Surface Science**, 228 (2004) 297-301
- [78] A. Nakaruk, D. Ragazzon, C.C. Sorrell, *Anatase thin films by ultrasonic spray pyrolysis*, **Journal of Analytical and Applied Pyrolysis** (2008) 1-13
- [79] L. Liu, G.Y. Kim, A.C. Hillier, A. Chandra, *Microstructural and electrochemical impedance study of nickel-Ce_{0.9}Gd_{0.1}O_{1.95} anodes for solid oxide fuel cells fabricated by ultrasonic spray pyrolysis*, **Journal of Power Sources** (2010) 1-7
- [80] J. Will, A. Mitterdorfer, C. Kleinlogel, D. Perednis, L.J. Gauckler, *Fabrication of thin electrolytes for second-generation solid oxide fuel cells*, **Solid State Ionics**, 131 (2000) 79-96
- [81] B. Avvaru, M.N. Patil, P.R. Gogate, A.B. Pandit, *Ultrasonic atomization: Effect of liquid phase properties*, **Ultrasonics**, 44 (2006) 146-158
- [82] F. Barreras, H. Amaveda, A. Lozano, *Transient high-frequency ultrasonic water atomization*, **Experiments in Fluids**, 33 (2002) 405-413
- [83] S. Wisutmethangoon, T. Pookphol, P. Sungkhaphaitoon, *Production of SAC305 powder by ultrasonic atomization*, **Powder Technology**, 209 (2011) 105-111
- [84] M. Jergel, *Synthesis of high-T_c superconducting films by deposition from an aerosol*, **Superconductor Science Technology**, 8 (1995) 67-78
- [85] V. Jokanovic, Z. Nedic, *Nano-designing of Mg doped phosphate tungsten bronzes and SiO₂ composite obtained by ultrasonic spray pyrolysis method*, **Ultrasonic Sono Chemistry**, 17 (2010) 228-233
- [86] E.D. Valdes, M. Jergel, C.F. Guajardo, F. Morales, J.A. Osorio, *Bi-Pb-Sr-Ca-Cu-O/MgO superconducting thin films*, **Thin Solid Films**, 373 (2000) 122-128
- [87] R.L. Henry, E.J. Cukauskas, S.B. Quadri, A.H. Singer, G.G. Campisi, *Thin film growth of oxide superconductor materials*, **IEEE Transactions on Magnetics**, 25 (1988) 2352-2355

- [88] M. Jergel, F. Hanic, V. Strbik, J. Liday, G. Plesch, T. Melisek, M. Kubranova, *Thin BSCCO films prepared by deposition from aerosol*, **Superconductor Science Technology**, 5 (1992) 663-670
- [89] D.L. Schultz, P.A. Parilla, D.S. Ginley, J.A. Voight, E.P. Roth, E.L. Venturini, **IEEE Transactions on Applied Superconductivity**, 5 (1995) 1962-1965
- [90] K. Konstantinov, I. Stambolova, P. Peshev, A. Souleva, T. Tsacheva, G. Gyurov, I. Khristova, *Variations in the chemical composition of Bi(Pb)-Sr-Ca-Cu-O films deposited by spray pyrolysis method*, **Journal of Analytical and Applied Pyrolysis**, 42 (1997) 89-94
- [91] H.K. Singh, O.N. Srivastava, *Cadmium induced growth of 2223 phase and T_c enhancement in TBCCO high T_c thin films*, **Physics Letters A**, 240 (1998) 253-256
- [92] R. Abraham, F. Guenard, K. Lebbou, S. Trosset, M.T.C. Adad, J.L. Jorda, M. Couach, *Elaboration of $Tl_{0.5}Pb_{0.5}Sr_2CaCu_2O_x$ superconducting phases by an ultrasonic Spray pyrolysis process*, **Materials Research Bulletin**, 23 (1998) 253-260
- [93] L. Mancic, O. Milosevic, B. Mrinkovic, M.F.S. Lopes, F. Rizzo, *The influence of urea on the formation process of BiPbSrCaCuO superconducting ceramics synthesized by spray pyrolysis method*, **Materials Science and Engineering**, B76 (2000) 127-132
- [94] H.K. Singh, O.N. Srivastava, *Investigations on Tl-2223 thin films fabricated through ultrasonic spray pyrolysis under oxygen deficient condotions*, **Bulletin of Material Science**, 23 (2000) 475-481
- [95] J.L.M. Driscoll, A. Ferreri, J.J. Wells, J.G.A. Nelstrop, *In-plane aligned YBCO thick films grown in-situ by high temperature ultrasonic spray pyrolysis*, **Superconductor Science Technology**, 14 (2001) 96-102
- [96] A. Ferreri, J.A.G. Nelstrop, A.D. Caplin, J.L.M. Driscoll, *Fabrication and post-annealing studies of ultrasonically spray pyrolysed Y-Ba-Ca-Cu-O films*, **IEEE Transactions on Applied Superconductivity**, 11 (2001) 2742-2745
- [97] A. Ferreri, J.A.G. Nelstrop, A.D. Caplin, J.L.M. Driscoll, *Microstructure and superconducting properties of ultrasonically spray pyrolysed $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ films*, **Physica C**, 351 (2001) 58-61
- [98] T.C. Shields, K. Kawano, T.W. Button, J.S. Abell, *Spray pyrolysis of epitaxial YBCO films on (100) single crystal $SrTiO_3$ substrates*, **Superconductor Science Technology**, 15 (2002) 99-103
- [99] S. Phok, Ph. Galez, J.L. Jorda, Z. Supardi, D.D. Barnos, P. Odier, A. Sin, F. Weiss, *Tl and (Hg,Re)-1223 oxide films by spray pyrolysis for pratical applications*, **Physica C**, 372-376 (2002) 876-879
- [100] A. Ferreri, A. Berenov, Y. Bugoslavsky, G. Perkins, J.L.M. Driscoll, *Deposition of high J_c $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ thin films by ultrasonic spray pyrolysis*, **Physica C**, 372-376 (2000) 873-875
- [101] K.T. Wojcienchowski, J. Oblakowski, *Preparation and characterisation of nanostructured spherical powders for thermoelectric Applications*, **Solid State Ionics**, 157 (2003) 341-347
- [102] M. Liu, M.L. Zhou, L.H. Zhai, D.M. Liu, X. Gao, W. Liu, *A newly designed ultrasonic spray pyrolysis device to fabricate YBCO tapes*, **Physica C**, 386 (2003) 366-369
- [103] L. Min, L. Danmin, Z. Meiling, Z. Yue, G. Xin, L. Jinxia, *Fabrication of YBCO tapes on Ag substrates by the ultrasonic spray pyrolysis method*, **Superconductor Science Technology**, 17 (2004) 676-680

- [104] J. Yoo, S. Kim, J.W. Ko, Y.K. Kim, *The fabrication of fine and homogenous Bi-2223 precursor powder by a spray pyrolysis process*, **Superconductor Science Technology**, 17 (2004) 538-542
- [105] Z.D. Yakinci, Y. Aydoğdu, *Thickness dependence of critical current density in MgB₂ films prepared by thermal evaporation method*, **Journal of Superconductivity Novel Magnetism**, 24 (2011) 523-527
- [106] Z.D. Yakinci, Y. Aydoğdu, *Synthesis and characterization of MgB₂ thin films prepared by 2.4 MHz ultrasonic spray pyrolysis system*, **Journal Superconductivity Novel Magnetism**, 24 (2011) 529-534
- [107] M.E. Yakinci, Y. Aydoğdu, M.A. Aksan, Y. Balci, S. Altin, *Effects of in-situ and ex-situ heat-treatment procedures on the transport properties of the MgB₂ superconducting thin films fabricated by ultrasonic spray pyrolysis (USP) system*, **Journal Superconductivity Novel Magnetism**, 24 (2011) 241-245
- [108] F. Aksoy, "Kimyasal püskürtme yöntemiyle elde edilen InP ince filmlerinin elektrik, optik ve yapısal özelliklerinin incelenmesi" Yüksek lisans tezi, Niğde Üniversitesi, 2005
- [109] B.D. Cullity, *Elements of X-ray diffraction*, **Adison-Wesley Publishing Company INC.**, USA (1978) 102
- [110] R.H. Patel, A. Nabialek, M. Niewczas, *Characterization of superconducting properties of BSCCO powder prepared by attrition milling*, **Superconductor Science Technology**, 18 (2005) 317-324
- [111] Y. Feng, L. Zhou, J.G. Wen, N. Konshizuka, A. Sulpice, J.L. Tholence, J.C. Vallier, P. Monceau, *Fishtail effect properties and critical current density of Gd-added PMP YBCO*, **Physica C**, 297 (1998) 75-84
- [112] P. Badica, K. Togano, S. Awaji, K. Watanabe, H. Kumakura, *Review on Bi-Sr-Ca-Cu-O whiskers*, **Superconductor Science Technology**, 19 (2006) R81-R99
- [113] N.H. Duc, D.T.H. Giang, V.N. Thuc, N.T. Minh Hong, N. Chau, *Magnetisation process and magnetostriction in Fe/TerfecoHan/Fe sandwich films with perpendicular magnetic anisotropy*, **Physica B**, 327 (2003) 328-333
- [114] Y.G. Ma, R.S. Li, Z. Yanga, M. Matsumoto, A. Morisako, S. Takei, *Effects of additive elements (Cu, Zr, Al) on morphological and magnetic properties of NdFeB thin films with perpendicular magnetic anisotropy*, **Materials Science and Engineering B**, 117 (2005) 287-291
- [115] A. Nishida, C. Taka, S. Chromik, R. Durny, *Critical properties of MgB₂ thin films on NbN/Si substrate under perpendicular magnetic films*, **Physica C**, 426-431 (2005) 340-344
- [116] C.P. Bean, *Magnetization of high-field superconductors*, **Modern Physics**, 36 (1962) 31-39
- [117] M.E. Yakinci, M.A. Aksan, Y. Balci, *Fabrication and properties of (Hg_{0.8}Re_{0.2})Ba₂Ca₂Cu₃O_x*, **Superconductor Science Technology**, 18 (2005) 494-502

ÖZGEÇMİŞ

1987 yılında Diyarbakır’ da doğdu. İlk, orta ve lise eğitimini Diyarbakır’ da tamamladı. 2005 yılında İnönü Üniversitesi Fen Edebiyat Fakültesi Fizik Bölümünde başladığı eğitimini 2009 yılında tamamladı. Aynı yıl İnönü Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Fizik Anabilim dalında yüksek lisans eğitimine başladı.

KATILDIĞI VE BİLDİRİLİ SUNDUĞU BİLİMSEL TOPLANTILAR

- 1- 24. Uluslararası Fizik Kongresi, Malatya, 2007
- 2- 2. Ulusal Bor Çalıştayı, Ankara, 2008
- 3- International Conferance on Superconductivity and Magnetism (ICSM), Antalya, 2008
- 4- International Student Workshop on Condensed Matter and Materials Physics (ISWCMMP), Antalya, 2009
- 5- International Spring School and Educational Courses (SSEC-2010), Antalya, 2010
- 6- International Conferance on Superconductivity and Magnetism (ICSM), Antalya, 2010
- 7- 5. Ulusal Süperiletkenlik Sempozyumu (USS5), İzmir, 2011

YAYINLANDIĞI MAKALELER

- 1- S. Altin, M.A. Aksan, S. Turkoglu, M.E. Yakinci, Fabrication of NdCeCuO and effects of binding on the growth, microstructural and electrical properties, Phsica C, 471 (2011) 1692-1698.